



245

Universidad Nacional Autónoma de México

FACULTAD DE CIENCIAS

CALIBRACION Y EFICIENCIA DE UN SISTEMA
ELECTROQUIMICO MULTICELULAR PARA NEUTRONES.

T E S I S

Que para obtener el título de
LICENCIADO EN FISICA
p r e s e n t a

MARIA EUGENIA ALBERTA CAMACHO LOPEZ



Universidad Nacional
Autónoma de México



UNAM – Dirección General de Bibliotecas Tesis Digitales Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS © PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

Todo el material contenido en esta tesis está protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

TESIS CON FALLA DE ORIGEN

INDICE

| | |
|---|----|
| Introducción | |
| I Fuentes de neutrones | 1 |
| 1.1 Formas de producción de neutrones | 1 |
| II Detección de neutrones y partículas cargadas con polímeros | 4 |
| 2.1 Interacción de la radiación con la materia | 5 |
| 2.1.1 Partículas cargadas pesadas | 5 |
| 2.1.2 Neutrones | 8 |
| 2.1.2 Interacción de la radiación con polímeros | 13 |
| 2.2 Grabado Químico | 16 |
| 2.3 Eficiencias de detección | 22 |
| III Grabado electroquímico de trazas nucleares | 25 |
| 3.1 Grabado Electroquímico | 25 |
| 3.2 Dispositivo Experimental | 29 |
| IV Método automático de conteo | 34 |
| 4.1 Analizador de Imágenes | 34 |
| 4.2 Medida de parámetros de interés | 36 |
| V Calibración de la Fuente Electroquímica | 41 |
| 5.1 Calibración con alfas monoenergéticas | 41 |
| 5.2 Calibración con pastilla de uranio | 48 |
| 5.3 Calibración con fuente de neutrones | 51 |
| VI Conclusiones y perspectivas | 62 |
| Referencias | 67 |

INTRODUCCION

Debido a que el hombre siempre está expuesto a la radiación natural y ahora que ha aprendido a utilizar esta radiación para su beneficio, ha sido necesario desarrollar métodos para medir esta radiación. Existe una gran cantidad de instrumentos de medida que varían en su eficiencia de detección y en el tipo de partículas que detectan.

En particular los detectores ⁽¹⁾ de neutrones se pueden dividir, de acuerdo con su funcionamiento, en dos grandes grupos: los que requieren de electrónica asociada durante la medición de la carga producto de la ionización y los que no la requieren durante la detección. Al primer grupo, conocido también como detectores activos, pertenecen las cámaras de fisión, las esferas de Bonner, los detectores de barrera superficial y centelladores líquidos; en el segundo grupo se tienen los detectores pasivos e incluye a los termoluminiscentes, hojas de activación, películas fotográficas y detectores sólidos de trazas nucleares.

La elección del detector adecuado dependerá del campo de radiación, su intensidad, espectro de energía, el número de detectores para usarse en un área dada, las facilidades de colocación, el costo, etc.

Se ha observado que la detección de neutrones utilizando detectores sólidos de trazas nucleares tratados mediante un grabado electroquímico satisface varias de las características an-

tes mencionadas , por ello se ha diseñado y construido en el Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares (ININ) una Fuente Electroquímica, aparato que permite procesar a los detectores por este método.

El objetivo de la Tesis es la calibración de esta Fuente para neutrones usando como detector el polímero CR39.

Esta calibración se realiza variando los parámetros involucrados en el grabado electroquímico hasta encontrar las condiciones óptimas para una mayor eficiencia de registro de la radiación incidente.

Adicionalmente, se presenta la ventaja de este detector CR39, al cuantificarlo automáticamente con un analizador de imágenes.

Capítulo I

FUENTES DE NEUTRONES

Introducción

El hombre está expuesto continuamente a la radiación natural, esta radiación tiene dos orígenes: cósmica y terrestre. La radiación cósmica proviene del espacio, principalmente son rayos cósmicos los cuales transmiten su energía e interactúan con partículas en la atmósfera creando rayos cósmicos secundarios, los cuales llegan a la superficie de la tierra. La radiación terrestre es emitida por núcleos radiactivos presentes en la tierra, en rocas, en la atmósfera y la hidrosfera. Algunos radionúclidos son transferidos al hombre a través de la comida o por inhalación y son depositados en sus tejidos. Existen otros núcleos radiactivos llamados artificiales que han sido creados por el hombre.

1.1 Formas de producción de neutrones

Excepto por algunos radioisótopos que decaen por fragmentos de fisión, no hay radioisótopos que emitan neutrones. Todas las fuentes de neutrones se obtienen de reacciones nucleares.⁽²⁾

Los neutrones son producidos por cuatro formas:

- a) En fuentes de radionúclidos en las reacciones (α, n) , (γ, n) y por fisión espontánea.
- b) En reacciones en aceleradores de partículas involucrando protones y deuterones incluyendo producción fotonuclear de neutrones.

c) En reactores nucleares.

d) En plantas de reprocesamiento de combustible, en las cuales ocurren reacciones (α, n) y fisión espontánea en el combustible nuclear que ha estado expuesto a una irradiación prolongada.

Las reacciones (α, n) y (γ, n) en elementos ligeros como litio y berilio generan neutrones rápidos. Las fuentes (α, n) son las que se emplean más frecuentemente; en esta familia se encuentran las de radio-berilio, polonio-berilio o fuentes de americio-berilio, que constan de una mezcla de un emisor alfa con uno o más elementos ligeros.

Dependiendo de su composición, las fuentes de neutrones varían en el espectro de energía de los neutrones emitidos, la sección transversal, su vida media y la radiación gamma emitida adicionalmente.

La tabla 2.1 presenta datos aproximados correspondientes a varias fuentes de neutrones (α, n) .⁽³⁾

Las fuentes de neutrones originalmente usan reacciones (α, n) con ^{239}Pu o ^{241}Am como fuentes de partículas alfa y berilio como blanco, combinados en una cerámica.

Las reacciones (α, n) dan como resultado un amplio espectro de neutrones que depende de la densidad y contenido de la fuente. Un moderador eficiente puede ser agregado para dar neutrones térmicos.

| FUENTE | Energía Neutrón (Mev) | | Producción Neutrón (n/seg) | Vida Media (a = años) (d = días) |
|-----------------------------------|-----------------------|--------|----------------------------|-------------------------------------|
| | Promedio | Máxima | | |
| $^{210}\text{Po-Li } (\alpha, n)$ | 0.48 | 1.32 | 0.05×10^6 | 138.4 d |
| $^{238}\text{Pu-F } (\alpha, n)$ | 0.8 | 3 | | 24 000 a |
| $^{210}\text{Po-F } (\alpha, n)$ | 1.4 | 2.8 | 0.2×10^6 | 138.4 d |
| $^{210}\text{Po-B } (\alpha, n)$ | 2.5-3 | 5-6 | 0.6×10^6 | 138.4 d |
| $^{210}\text{Po-Be } (\alpha, n)$ | 4.2 | 10.87 | 2.5×10^6 | 138.4 d |
| $^{221}\text{Ra-Be } (\alpha, n)$ | 3.9 | 10.08 | 15×10^6 | 1622 a |
| Rad, E, F-Be(α, n) | 4.5 | 10.87 | 2.5×10^6 | 19.4 a |
| $^{238}\text{Pu-Be } (\alpha, n)$ | 4.5 | 10.74 | 1.5×10^6 | 24 400 a |
| $^{227}\text{Ac-Be } (\alpha, n)$ | 4.6 | 12.79 | 20×10^6 | 21.8 a |
| $^{241}\text{Am-Be } (\alpha, n)$ | 4.4 | | 1.34×10^6 | 462 a |

Tabla 2.1 Fuentes de Neutrones por reacción (α, n).

Además con los neutrones existe una componente de rayos gamma en algunas fuentes, los rayos γ de 60 Kev del ^{241}Am puede reducirse empleando una recubierta de plomo.

Los neutrones son producidos en la atmósfera sólo por rayos cósmicos y representan un pequeño incremento a la exposición del hombre.

En los únicos lugares donde existen neutrones en el ambiente son: en reactores, aceleradores e industrias donde se realizan neutrografías.

Capítulo II

DETECCION DE NEUTRONES Y PARTICULAS CARGADAS CON POLIMEROS

Introducción

Todo proceso para medir radiaciones consta de dos etapas: primero la detección, basada en la interacción de la radiación con la materia y segunda la medición del efecto de dicha radiación detectada, en la que generalmente se utilizan instrumentos electrónicos. Es posible detectar la radiación cuando interacciona con la materia, ya que un porcentaje de las radiaciones emitidas por los radionucleidos colisionan con los átomos del medio que atraviesan ionizándolos. Los fenómenos derivados de la interacción dependen del tipo de radiación, de la energía y de la naturaleza de la materia con la que interacciona.

Existe un gran número de sistemas de detección en los cuales el detector y los instrumentos de medida están integrados en un solo equipo (llamados detectores activos); cuando la detección se realiza en lugares donde las condiciones no son apropiadas para estos equipos como en cráteres de volcanes, pozos geotérmicos, etc., resultan útiles los detectores pasivos que al ser expuestos a la radiación cambian sus propiedades permanentemente, pudiéndose analizar posteriormente. Estos materiales que cambian sus propiedades físicas o químicas permanentemente, son llamados detector sólido de traza nucleares (DSTN).

2.1 Interacción de la radiación con la materia.

La radiación se manifiesta de dos formas: como radiación electromagnética y como radiación corpuscular.

La radiación electromagnética comprende a la luz, el calor, rayos X y rayos γ . Los rayos X y γ son ondas lo suficientemente energéticas que al interactuar con la materia pueden producir ionización en el material. Los tres tipos de interacción más importantes son: efecto fotoeléctrico, efecto Compton y producción de pares.

La radiación corpuscular se divide en proveniente de partículas cargadas y de partículas neutras. Entre las partículas cargadas existen las pesadas y las ligeras, partículas cargadas pesadas son aquellas cuyo peso es mayor al del protón y ligeras menor como el electrón o radiación beta; y entre las partículas neutras está el neutrón y el neutrino.

2.1.1 Partículas cargadas pesadas

Las partículas cargadas pesadas, como son las partículas alfa, interactúan primero a través de fuerzas coulombianas entre sus cargas positivas y las negativas de los electrones orbitales en los átomos absorbentes. Dependiendo de la interacción, el impulso puede ser suficiente para excitar el electrón llevándolo a un nivel más alto en el átomo absorbente o removiéndolo completamente del átomo (ionización). La energía transferida al electrón, representa un gasto de energía para la

particula cargada pesada, decreciendo su velocidad como resultado de estas interacciones.

La maxima energia que puede transferir un ion positivo de masa m con energia cinetica E a un electron de masa m_e en una colision, es $4Em_e/m$, esto es alrededor de 1/500 de la energia de la particula por nucleon ⁽⁴⁾. Como esta es una pequena fraccion de la energia total de la particula y esta pierde energia en cada interaccion, despues de interactuar con muchos electrones el efecto neto sera un decremento continuo en su velocidad de la particula hasta que se detenga.

La trayectoria tiende a ser una linea recta ya que el ion no sufre deflexiones en las interacciones. Las interacciones ocurren en todas direcciones a lo largo de la trayectoria.

Los productos de la interaccion son atomos excitados y pares de iones, estos ultimos tienden a recombinarse para formar atomos neutros, pero en algunos tipos de detectores esta recombinacion no se realiza, pudiendose usar estos pares de iones como la respuesta basica en el detector.

En ciertas interacciones los electrones que han sido expulsados del atomo, tienen suficiente energia cinetica para crear mas iones por el mismo mecanismo. Estos electrones energeticos son llamados rayos delta y son un medio indirecto por el cual la energia de la particula cargada es transferida al medio. El alcance del rayo delta es muy pequeno comparado con el del ion incidente.

Existen dos conceptos importantes en la interacción de la radiación con la materia, el rango o alcance de la partícula y el poder de frenamiento. Al atravesar la materia las partículas pierden paulatinamente su energía por colisiones sucesivas con los átomos que se encuentran durante su recorrido y también sufren deflexiones sucesivas cambiando su dirección inicial. El recorrido después del cual las partículas han perdido toda su energía cinética es decir quedan en reposo, se denomina rango y depende de la energía inicial de cada partícula.

Por otro lado la disminución en la energía de las partículas al incidir en la materia es debida a las interacciones con los átomos de la materia. El poder de frenado lineal S para partículas cargadas en un absorbedor se define como la diferencial de la energía perdida de la partícula en el material dividida por la diferencial de la longitud recorrida.

$$S = - \frac{dE}{dx} \quad \text{y} \quad - \frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^2 z^2}{m_0 v^2} N B$$

donde

$$B = z \left[\ln \frac{2 m_0 v^2}{I} - \ln \left(1 - \frac{v^2}{c^2} \right) - \frac{v^2}{c^2} \right]$$

- v = velocidad de la partícula incidente
- ze = carga de la partícula incidente
- N = densidad del absorbedor
- z = número atómico de los átomos absorbedores
- m_0 = masa en reposo del electrón
- e = carga del electrón
- I = potencial de ionización del absorbedor y es determinado para cada elemento

En particular para las partículas alfa:

$$\frac{dE}{dx} \approx \frac{1}{E}$$

2.1.2 Neutrones

Como los neutrones carecen de carga interactúan principalmente con el núcleo atómico y a diferencia de la radiación γ y de los electrones no producen ionización en el material. Los productos de la interacción neutrón-materia si producen ionización en el material. Los productos de esta interacción son protones e iones positivos, por ello las reacciones químicas que se inducen en el material son similares a las que ocurren cuando se irradia el material con partículas pesadas positivas.

Debido a la neutralidad eléctrica de los neutrones, se tiene que el daño que causan no es superficial, sino que pueden penetrar considerablemente en el material, esto va a depender de la energía de los neutrones y del material en sí.

La importancia de la energía del neutrón en la interacción con la material hace necesaria una clasificación de los neutrones de acuerdo a su energía:

- a) Neutrones relativistas: la energía mínima para estos neutrones es de 20 Mev. Dan lugar a reacciones nucleares y predomina la dispersión elástica.
- b) Neutrones rápidos: son neutrones cuya energía cinética es superior a algunas decenas de kev.
- c) Neutrones intermedios: estos son neutrones con una energía cinética entre 0.5 ev y algunas decenas de kev.
- d) Neutrones lentos térmicos: Los neutrones son llamados len-

los cuando estan en equilibrio térmico con la materia que los rodea.

Los neutrones interaccionan de 4 formas principalmente:

- i) Colisión elástica.
- ii) Colisión inelástica.
- iii) Reacciones nucleares.
- iv) Captura de neutrones.

Colisión elástica.- Cuando los neutrones son muy rápidos la forma en que pierden gran cantidad de su energía es mediante colisiones elásticas e inelásticas, pero cuando disminuyen su velocidad, la energía restante se pierde por colisiones elásticas.

Debido a las fuerzas de corto alcance, cuando el neutrón se acerca a un núcleo atómico estos chocan, cediendo parte de su energía, hasta bajar a energías térmicas en donde sigue chocando. En algunas de estas colisiones perderá energía, pero en otras ganará.

Dado esto, se tiene una distribución de Maxwell para las velocidades, en donde la fracción de neutrones con velocidades entre v y $v + dv$ se expresan como:

$$F(v)dv = 4\pi^{-1/2} \left[\frac{m}{2KT} \right]^{3/2} v^2 e^{-mv^2/2KT} dv$$

donde T = Temperatura absoluta.
k = Constante de Boltzman.
m = masa del neutrón.
F(v) = fracción.

Desarrollando se obtiene que la velocidad mas probable está

dada por

$$V_m = \left(\frac{2kT}{m} \right)^{1/2}$$

Por otro lado la velocidad promedio está dada por

$$V = \frac{\int_0^{\infty} V F(v) dV}{\int_0^{\infty} F(v) dV} = \left(\frac{8kT}{\pi M} \right)^{1/2} = \frac{2V_m}{\pi^{1/2}}$$

Y la energía cinética promedio de los neutrones será

$$E = \frac{E}{N} = \int_0^{\infty} u F(u) du = \frac{3}{2} kT$$

donde u = Energía de cada neutrón.

N = Número total de neutrones.

Colisión inelástica: El neutrón colisiona inelásticamente con el núcleo si este último absorbe al neutrón, dando lugar a la emisión de un neutrón menos energético (estado excitado) emitiendo uno o más rayos gamma al regresar a su estado base. Este fenómeno ocurre cuando los neutrones incidentes tienen energía suficiente para que el núcleo pase de su estado base a su primer estado excitado, esta energía es de algunos cientos de KeV, quedando en ocasiones el neutrón menos energético perdiendo su energía mediante colisiones elásticas.

Con el objeto de describir las colisiones elásticas e inelásticas con neutrones se analiza el caso general de una reacción nuclear.

Una reacción nuclear es el proceso de transformación de todo núcleo al ser expuesto a un bombardeo de partículas o de radiación

electromagnética, y se expresa por la ecuación:



donde X: núcleo inicial.
a: partícula incidente.
b: partícula emitida.
Y: núcleo final.

En una reacción nuclear deben conservarse; la carga eléctrica, el número de nucleones, la energía, la paridad y la cantidad de movimiento.

Teniendo en cuenta esto y suponiendo al núcleo blanco en reposo y la ausencia de fuerzas externas sobre el sistema



se puede escribir como

$$m_x c^2 + \frac{1}{2}(m_a v_a^2 + m_a c^2) = \left(\frac{1}{2} m_y v_y^2 + m_y c^2 \right) + \left(\frac{1}{2} m_b v_b^2 + m_b c^2 \right)$$

Y definiendo Q a la diferencia entre la energía cinética de los productos de la reacción y la de la partícula incidente, Q se puede expresar como:

$$Q = \frac{1}{2} m_y v_y^2 + \frac{1}{2} m_b v_b^2 - \frac{1}{2} m_a v_a^2 \\ = (m_x + m_a - m_y - m_b) c^2$$

donde Q es llamado el balance energético de la reacción y se pueden considerar 3 casos.

i) $Q > 0$ la reacción se llama exoenergética, existe desprendimiento de energía durante la reacción.

ii) $Q < 0$ es llamada endoenergética y existe consumo de energía.

iii) $Q = 0$ en la reacción no existe consumo ni pérdida de energía, y es del tipo de dispersión elástica.

Por consiguiente si $Q \neq 0$ se dice que se tiene dispersión inelástica.

Reacciones nucleares: En este tipo de reacciones el núcleo absorbe a un neutrón y posteriormente el núcleo emite otra partícula. Este fenómeno ocurre cuando los neutrones incidentes son muy energéticos (unos cuantos Mev). A la energía en que la reacción comienza a tener lugar, se le llama energía umbral.

Existen diferentes tipos de reacciones y se les ha clasificado según la partícula que emite el núcleo, las dos más importantes son las reacciones (n,p) y (n,α) .

Captura de neutrones: Cuando los neutrones son térmicos, la forma más común en que interaccionan con la materia es mediante su captura por los núcleos atómicos del material que se está exponiendo.

Al capturar un neutrón, el núcleo se convierte en un isótopo del elemento que se irradió. Y esto puede llevar a formar un núcleo compuesto en estado excitado, posteriormente regresa a su estado base, emitiendo uno o más rayos γ (reaccionan (n,γ)).

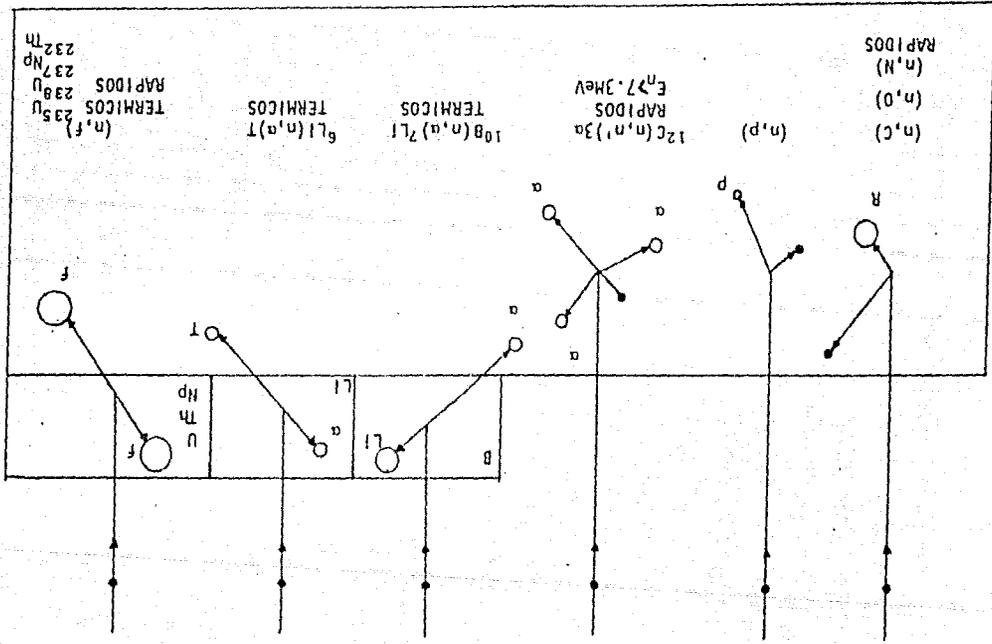
2.1.3 Interacción de la radiación con polímeros

En polímeros al igual que en otros materiales al interactuar la partícula pesada con el sólido, se producen dos tipos de ionización; primaria debida a la interacción coulombiana de la radiación con electrones de los átomos y secundaria debida a la ionización y excitación producida por los rayos delta. La ionización y excitación dan origen a la ruptura de las cadenas largas del polímero, dando lugar a la formación de radicales libres y a reacciones de iones moleculares (5-7).

La interacción de neutrones con los núcleos atómicos de la materia, es a través de dispersiones elásticas (retrocesos) e inelásticas (reacciones nucleares). La probabilidad de que estas dispersiones ocurran, depende, tanto de la energía del neutrón incidente, como de la carga y masa del núcleo. La energía total involucrada en la colisión, es la suma de la energía del neutrón y la Q de la reacción involucrada; esta energía impartida a los iones positivos dispersados, es empleada por éstos en producir ionización en la materia. Por lo tanto, la detección de neutrones se logra por el registro de estos procesos indirectos de ionización. Si la sección y la energía total son conocidas, es posible relacionar la cantidad de carga producida por la ionización con el flujo de neutrones.

El neutrón, al carecer de carga, posee una trayectoria libre media muy grande, ya que la pérdida de energía de éste se debe totalmente a colisiones con núcleos de la materia. La figura 2.1

MECANISMOS DE DETECCIÓN DE NEURONES CON DIELECTRICOS



14

Fig. 2.1 Interacción de neuronas con DSTN.

(n,f) 235 U
 TERMICOS 238 U
 RAPIDOS 237 Mp
 232 Th

6L1 (n,a) T
 TERMICOS

10B (n,a) 7LI
 TERMICOS

12C (n,n) 3a
 RAPIDOS
 E_n 27.3 MeV

(n,c)
 (n,0)
 (n,n)
 RAPIDOS

muestra los mecanismos de registro de neutrones en un DSIN. En los casos uno y dos, el registro es por retrocesos (n,R) con los componentes de un detector plástico, siendo K núcleos de C, O, N o H ⁽⁴⁾; en los siguientes cuatro casos, el neutrón produce una reacción nuclear, ya sea en el interior del plástico $G(n,n')\alpha$, o en un material reflector colocado sobre la superficie de este como $B(n,\alpha)^7Li$, $^6Li(n,\alpha)T$. (n,f).

Una forma de obtener medidas cuantitativas de la radiación en estos detectores es agrandar los daños originales (30 a 100 Å)⁽⁵⁾ por el método de grabado químico, con el cual se obtienen dimensiones del daño visible al microscopio óptico; los daños así agrandados se llaman trazas nucleares.

En particular el plástico CR39 utilizado en esta tesis está compuesto por $C_{12}H_{18}O_6$, al interactuar el neutrón con este polímero la reacción que se da en mayor proporción es la del neutrón con el hidrógeno (n,p).

En particular el polímero utilizado como detector en esta tesis está hecho a base de dietilglicol bis (alil carbonato) cuyo nombre comercial es CR39, el cual está compuesto por $C_{12}H_{18}O_6$.

Las características de este polímero son:

Claridad

Tiene propiedades ópticas comparables a las de algunos vidrios como son: superficies pulidas, uniformidad y resistencia química.

Estabilidad

Mantiene sus propiedades ópticas al variar las condiciones ambientales. No se agrieta con el tiempo, ni al aplicar fuerzas externas, ni por contacto con solventes.

Resistencia a la abrasión

Es 30 ó 40 veces más resistente que los acrílicos, bajo ciertas condiciones su resistencia se compara a la de los vidrios.

Resistencia a los impactos

Es resistente a los impactos a muy bajas temperaturas.

Resistencia al calor

Resiste temperaturas hasta de 150⁰C sin distorsionarse.

Resistencia a radiación gamma

No sufre cambios al estar sujeto a esta radiación.

Bajo peso

Su peso específico es menor que el de otros polímeros, es aproximadamente la mitad que el del vidrio.

2.2 Grabado Químico

Ciertas sustancias químicas disuelven o degradan las regiones dañadas por la radiación más rápidamente que al resto del material, formando un hoyo (traza), el cual continúa agrandándose en todas direcciones hasta alcanzar dimensiones visibles al microscopio óptico. El introducir detectores después de que han

sidó irradiados en una solución, un determinado tiempo y a cierta temperatura se denomina grabado químico.

La rapidez con que se disuelve el material a lo largo de la traza, en el grabado químico al grabar químicamente es llamada velocidad de grabado de la traza V_r , y el material que no se encuentra dañado es atacado con una velocidad de grabado V_n . La velocidad V_n es constante para un material dado y para un grabado bajo ciertas condiciones fijas de temperatura y concentración.

Las partículas incidentes en los detectores son caracterizadas por su carga, masa y velocidades relativas β , donde:

$$\beta = \frac{v}{c} = \frac{\text{velocidad del ión}}{\text{velocidad de la luz}}$$

Las variaciones en estas características se manifiestan como cambios en la longitud de la traza latente R (Fig 2.2) y en la velocidad de grabado de la traza V_r , así como en la variación de esta velocidad a lo largo de la traza.

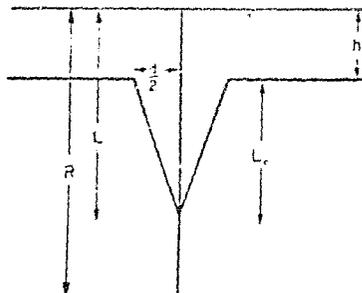


Fig 2.2 Perfil de una traza.

Los parámetros utilizados para describir la geometría de la traza son de fácil cálculo, cuando V_r es constante a lo largo de la traza. Así se considera cuando la ionización de la partícula no varía rápidamente. En los casos en que la partícula incide normalmente sobre la superficie del detector y la velocidad de ataque de la traza es V_r en un tiempo de grabado, la traza se extiende una distancia L desde el punto original como se observa en la figura 2.2, la superficie empieza a removerse a una velocidad V y la longitud de la traza grabada está dada por ⁽⁸⁾:

$$L_e = V_r t - V_d t \approx L - b$$

En la figura 2.3 se observa un cono de traza, donde δ es el ángulo de la mitad del cono.

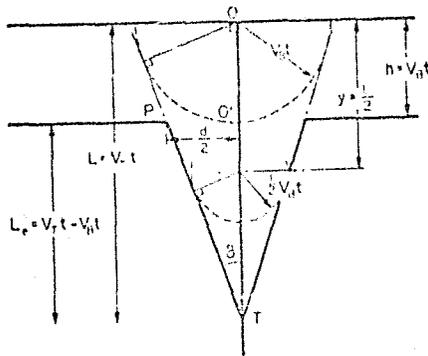


Fig. 2.3 Geometría de la traza.

Es posible expresar este ángulo como:

$$\text{sen } \delta = \frac{V_B t}{L} = \frac{V_B t}{V_T t} = \frac{V_B}{V_T}$$

Por otro lado

$$\text{tan } \delta = \frac{d/2}{L_0}$$

$$\text{tan } \delta = \frac{V_B}{\sqrt{(V_T^2 - V_B^2)}}$$

El diámetro lo podemos expresar como:

$$\begin{aligned} d &= \frac{2V_B L_0}{\sqrt{(V_T^2 - V_B^2)}} \\ &= \frac{2 V_B (V_T - V_B) t}{\sqrt{(V_T^2 - V_B^2)}} \\ &= 2 V_B t \sqrt{\frac{V_T - V_B}{V_T + V_B}} \end{aligned}$$

Cuando la partícula incide con un ángulo θ con respecto a la superficie del detector, la forma de la traza en la superficie, no es un círculo como en la incidencia normal, sino una sección elíptica con eje mayor D y eje menor d (Fig. 2.4). En este caso la longitud de la traza L_0 es medida para el cono ladeado, desde la superficie grabada hasta la punta del cono.

$$L_0 = V_T t - \frac{V_B t}{\text{sen } \delta}$$

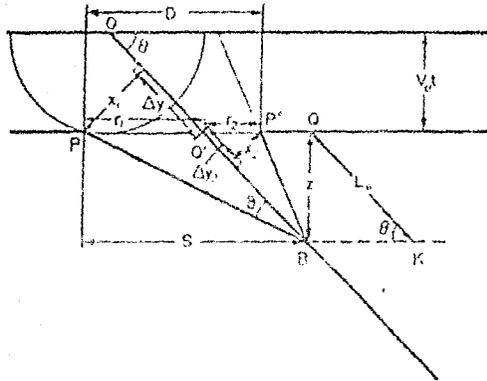


Fig. 2.4 Geometría de la traza cuando la partícula no tiene incidencia normal.

Para calcular el eje mayor D y el eje menor d , de la sección elíptica del cono en función de los parámetros de la traza se realiza el siguiente desarrollo analítico.

$$r_1 = x_1 / \text{sen } \theta \qquad r_2 = x_2 / \text{sen } \theta$$

$$\Delta y_1 = r_1 \cos \theta \qquad \Delta y_2 = x_2 \cos \theta$$

$$\tan \delta = \frac{x_1}{V_T t - (V_B t / \text{sen} \theta) - \Delta y_2} = \frac{x_2}{V_T t - (V_B t / \text{sen} \theta) + \Delta y_2}$$

$$D = \frac{2 V_B t (V_T^2 - V_B^2)}{V_T \text{sen } \theta + V_B}$$

$$\text{definiendo } V = \frac{V_T}{V_B}$$

$$D = \frac{2 V_B t (V^2 - 1)}{V \text{sen } \theta + 1}$$

$$d = 2 V_0 t \sqrt{\frac{V \operatorname{sen} \theta - 1}{V \operatorname{sen} \theta + 1}}$$

Cuando el tiempo de grabado ha sido apenas suficiente para que toda la zona dañada sea removida, la traza tendrá forma de cono. Pero si se continua grabando la traza, esta comenzará a redondearse como se observa en la figura 2.5, ya que en todos los puntos la velocidad de grabado será la misma pues no existirán zonas preferenciales. La forma de la traza en este caso se puede expresar por las siguientes ecuaciones (20):

$$s = L \cos \delta + r B \tan 1/2(\delta - \theta)$$

$$r = s - L \cos \delta - B \tan 1/2(\delta - \theta)$$

donde $B = L \operatorname{sen} \theta + r$.

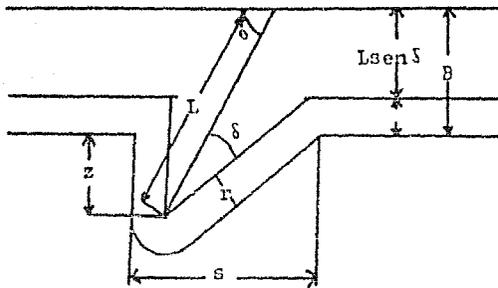


Fig. 2.5 Traza redondeada de la punta.

2.3 Eficiencias de Grabado

Una condición para que la traza sea grabada químicamente es que la velocidad V_T sea mayor que V_B ($V_T > V_B$)⁽¹⁰⁾. Cuando las partículas inciden a ángulos menores que el $\arcsen(V_B/V_T)$ (ángulo crítico) la condición no se cumple, ya que la superficie del detector es removida a una velocidad mayor que la componente normal de la velocidad a lo largo de la traza (Fig 2.6) provocando que no se forme cono alguno.

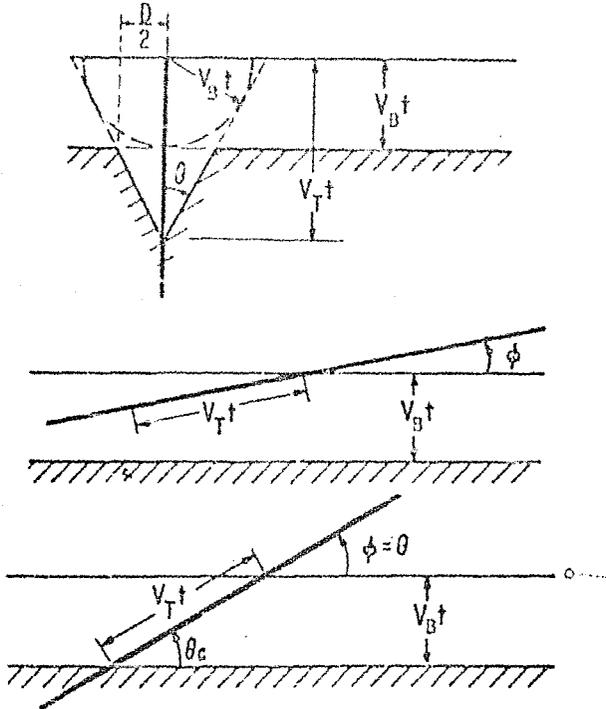


Fig. 2.6 a) En este caso como $V_T > V_B$, sí se forma cono a lo largo del daño latente. b) Como $\theta < \arcsen(V_B/V_T)$, no se forma cono. c) En este caso $\theta_c = \arcsen(V_B/V_T)$, arriba de este ángulo se forma cono.

La forma de la traza varía en función del tiempo de grabado, ya que para un tiempo determinado puede obtenerse una especie de cono pero si este tiempo se prolonga el cono comienza a redondearse como se observa en la figura 2.7.

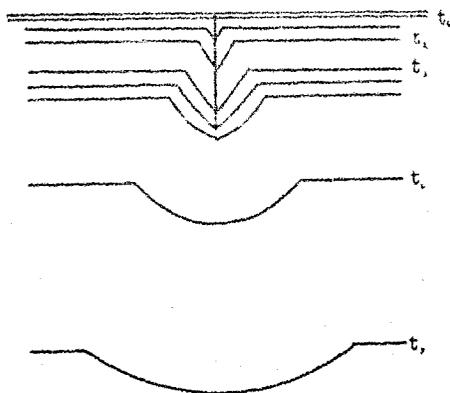


Fig. 2.7 Forma de la traza para diferentes tiempos.

La energía de las partículas también influye en la formación de la traza ya que al incidir estas en el detector pierden energía a lo largo de su trayectoria, y para que la traza sea revelada es necesario rebasar un valor umbral $(dE/dx)_u$, tal que:

$$\frac{dE}{dx} > \left(\frac{dE}{dx} \right)_u$$

La pérdida de energía por unidad de longitud dE/dx no es constante sobre la trayectoria.

Por ejemplo, la figura 2.8 representa 2 casos contrastantes de partículas incidiendo a 90° : la pérdida de energía es muy grande en la superficie del detector (1) y la pérdida de energía es pequeña (3). En el caso (1) el número de radicales libres formados es mayor que en el caso (3) teniendo una velocidad $V_r(1) > V_r(3)$ para tiempos de grabado t_1 y t_2 . Las trazas 2 y 4 corresponden a los mismos casos pero la partícula incide a un ángulo con respecto a la superficie. Es de hacerse notar que en la traza 4 se cumple que $V_r = V_n$ para t_1 y por consiguiente no existe formación de cono.

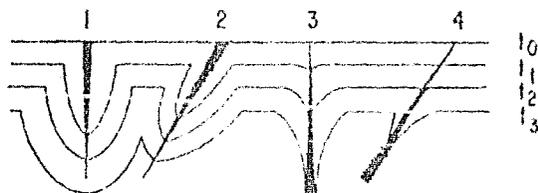


Fig. 2.8 Partículas cuya energía no es constante a lo largo de la trayectoria.

Por tanto para que el grabado sea eficiente se debe considerar el tipo de partícula que se desea detectar, rango de energía y ángulo de incidencia.

Capítulo III

GRABADO ELECTROQUIMICO DE TRAZAS NUCLEARES

Introducción

Además de la técnica de grabado químico usada para amplificar los daños latentes originados por partículas cargadas pesadas, se ha desarrollado la técnica del grabado electroquímico. El grabado electroquímico amplifica el daño, formando una especie de árbol en la punta de las trazas.

Después de tratar los detectores irradiados mediante este sistema, las trazas alcanzan dimensiones de cientos de micras. Por esta razón se ha implementado el dispositivo necesario para grabar electroquímicamente detectores, en el laboratorio de Trazas Nucleares del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares.

3.1 Grabado Electroquímico

Teóricamente al aplicar un potencial en un material conductor, son creados campos eléctricos en las vecindades de puntos picudos o en esquinas dando lugar al Efecto Punta. Si se aplica un campo eléctrico a un detector donde haya trazas con forma de conos, las líneas de campo se concentran en la punta del cono de las trazas hasta ocasionar rompimientos internos en el material. Si además el campo eléctrico es oscilante, produce microrompimientos adicionales en los ya existentes ocasionando un daño sobre un volumen considerable alrededor de la traza (Fig 3.1).

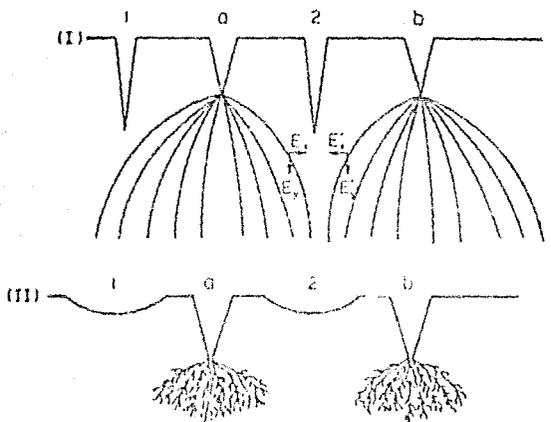


Fig. 3.1 I LINEAS DE CAMPO ELECTRICO EN LA PUNTA DE LA TRAZA.

II ROMPIMIENTO EN LA PUNTA DE LA TRAZA.

La intensidad del campo eléctrico al final de la traza se puede obtener de la ecuación de Mason ⁽¹⁴⁾ que es aplicable a electrodos puntuales o planos en un medio dieléctrico.

$$\frac{E_1}{E_2} = \frac{2 d}{r \ln(1+4d/r)} \quad \text{si } d > 10r$$

$$= \frac{2 d}{r \ln(4d/r)} \quad \text{si } d \gg r$$

E_1 = intensidad del campo eléctrico en la punta de la traza

E_2 = intensidad del campo eléctrico promedio aplicado entre la punta de la traza y la superficie opuesta.

r = radio en la punta de la traza

d = distancia entre la punta de la traza y la superficie opuesta

Si E_1 excede un valor crítico E_c característico de cada material para una temperatura dada se producen rompimientos.

De las ecuaciones de la sección 2.2 para el grabado químico,

$$r = s - L \cos\theta - B \tan 1/2(\delta - \theta)$$

sustituyendo

$$E_1 = \frac{2 d E_2}{s - L \cos\theta - B \tan 1/2(\delta - \theta) \ln(1 + d/s - L \cos\theta - B \tan 1/2(\delta - \theta))}$$

se obtiene el campo eléctrico en función de los parámetros de la traza.

Para que se produzcan rompimientos, el radio en la punta de la traza al aplicar el campo eléctrico, debe aproximarse a cero. En la práctica se ha observado ¹⁸⁾ que se forman arbolamientos cuando $0.5 \leq r \leq 1 \mu\text{m}$.

Cuando se introduce el detector en una solución grabante (NaOH) al mismo tiempo que se aplica el campo eléctrico oscilante, la solución penetra por las grietas al producirse el rompimiento, disolviendo el material y agrandando el árbol. De esta forma los árboles resultantes alcanzan dimensiones superiores a las de las trazas grabadas químicamente.

En el grabado electroquímico, los efectos que produce el campo eléctrico sobre la traza después de que se ha producido el rompimiento son prolongar el arbolamiento. La aplicación prolongada del campo no afecta las trazas ya arboladas.

Cuando las trazas están muy próximas, los árboles se deforman (Fig 3.2) debido a la distorsión del campo eléctrico, ya que en la punta de cada traza se crea un campo eléctrico alto que al estar cerca de otro se ve afectado. Cuando la densidad de partículas es muy alta este fenómeno se observa con mayor frecuencia.

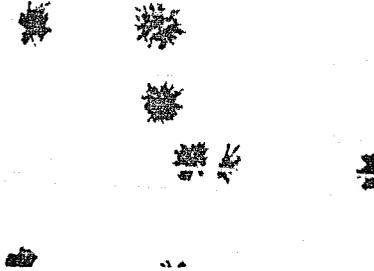


Fig. 3.2 Traza deforme.

El material utilizado como detector para el grabado electroquímico debe ser uniforme ya que las imperfecciones pueden iniciar arbolamientos en zonas que no han sido dañadas por la radiación. En la práctica los materiales utilizados no son totalmente uniformes debido a pequeñas burbujas, ello da origen a formación de arbolamientos en las imperfecciones. Los arbolamientos así producidos se consideran como fondo.

3.2 Dispositivo Experimental

Un diagrama esquemático del dispositivo experimental para el grabado electroquímico se puede observar en la figura 3.3. Sus componentes principales son:

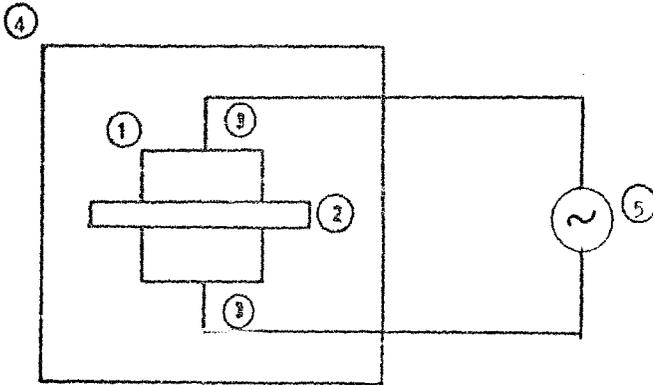


Fig. 3.3 Diagrama de bloques del Sistema Electroquímico

1) Celda electroquímica

Es una cavidad en la que se coloca el detector de tal forma que queda dividida en dos cavidades más pequeñas, sin conexión entre ellas y en cada una de estas cavidades se deposita la solución grabante. Para conseguir que no exista conexión entre las cavidades, la celda consta de dos partes en medio de las cuales se coloca el detector y se cierra a presión para que no se fugue la solución. Esta está construida de lucita, un material que no reacciona con la solución. Existen tres tamaños de celda: una en la que se pueden grabar áreas con forma circular con un diámetro

de 1 cm, otra con diámetro de 3 cm y una rectangular con un área de 40 cm^2 . (Fig. 3.4) Una de las ventajas de este tipo de celdas es que pueden ser fabricadas de diferentes formas y tamaños.

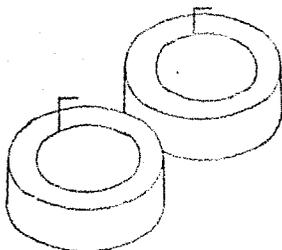


Fig. 3.4 TIPOS DE CELDAS.

2) Detector

Se utilizan generalmente materiales aislantes en este experimento se usa el polímero CR39.

3) Electrodo

En cada una de las cavidades de la celda se encuentra un electrodo, este se prolonga hasta la cavidad de manera que una parte del electrodo queda inmerso en la solución. Al ser el detector un dieléctrico funge como aislante y al aplicar el voltaje uno de los lados de la celda queda momentáneamente cargado positivamente, el otro negativamente y se genera el campo eléctrico.

4) Horno

Su función es mantener el sistema a la temperatura deseada. La

temperatura puede variarse desde la temperatura ambiente a 100°C con una precisión de $\pm 1^{\circ}\text{C}$.

B) Fuente Electroquímica

Su función es generar un campo eléctrico oscilante. La fuente de voltaje y el generador de onda están unidos en un mismo dispositivo llamado fuente electroquímica que se diseñó y construyó en el Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares. El diagrama de bloques se observa en la figura 3.6.

Las características de la fuente electroquímica son las siguientes:

- Forma de onda de salida senoidal.
- Voltaje de operación 0-1500 Vpp.
- Frecuencia de la señal 0-25 KHz.
- Corriente máxima de salida 10 mA.

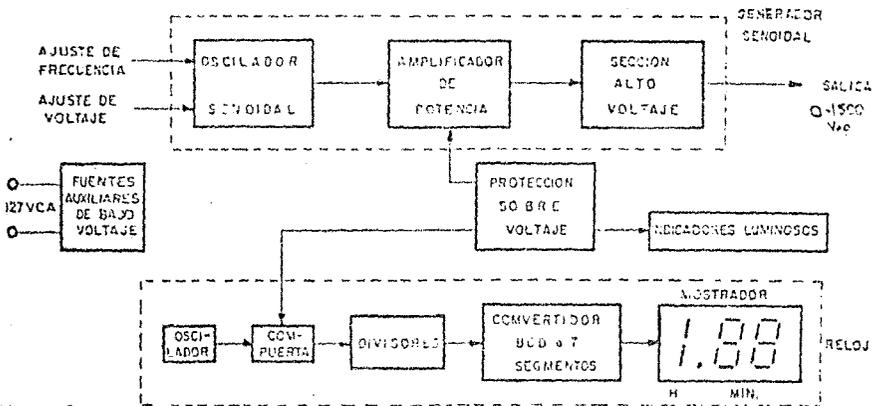


Fig. 3.6 DIAGRAMA DE BLOQUES DE LA FUENTE ELECTROQUIMICA.

El dispositivo cuenta con las siguientes características:

- 1.- Control continuo para ajuste de voltaje de salida.
- 2.- Selector de frecuencia mediante perilla graduada.
- 3.- Salida opcional para medir frecuencia con osciloscopio.
- 4.- Reloj digital.
- 5.- Protección a sobrecorriente que adicionalmente detiene el conteo del reloj y desconecta la fuente al sobrepasar un valor de corriente de 15 mA.
- 6.- Interruptores independientes para la fuente de alto voltaje y el reloj digital.
- 7.- Indicadores luminosos para cada función.

El equipo está destinado para uso en el laboratorio, teniendo disponible la alimentación de línea de 127 VCA.

El sistema multicelular es la unión de varias celdas electroquímicas conectadas en paralelo. La fuente electroquímica es conectada a este sistema y alimenta a todas las celdas. El objeto de este sistema es grabar varios detectores al mismo tiempo.

Generalmente para grabar los detectores por este método se realiza una combinación de grabado químico y grabado electroquímico, el procedimiento consta básicamente de tres pasos.

i) Pregrabado químico

ii) Grabado electroquímico

iii) Post-grabado químico

i) Pregrabado químico; después de que ha sido irradiado el material, se graba químicamente hasta que las trazas toman forma de cono. Proceso que disminuye el tiempo de grabado electroquímico.

ii) Grabado electroquímico; entonces se aplica el grabado electroquímico hasta que se forman los arbolamientos.

iii) Post-grabado; en algunos casos estos arboles no tienen forma simétrica y no es fácil obtener medidas de los diámetros, por ello se graban químicamente después del grabado electroquímico.

Las condiciones se eligen de manera que el proceso se lleve un mínimo de tiempo sin que se destruya la información ni se deteriore el detector.

Después de que han sido grabados electroquímicamente los detectores se pueden cuantificar tanto las dimensiones de las trazas como su densidad con un microdensitómetro o con un analizador de imágenes.

Capítulo IV

METODO AUTOMATICO DE CONTEO

Introducción

Para contar el número de arbolamientos producidos en los detectores grabados electroquímicamente y analizar sus dimensiones, se utilizan microscopios ópticos convencionales. Con el objeto de agilizar el proceso y obtener datos más uniformes se ha complementado un método automatizado de conteo en el que las medidas de densidad y diámetros de las trazas se obtienen utilizando un Analizador de Imágenes.

4.1 Analizador de Imágenes

El analizador de imágenes LEITZ TAS PLUS es un instrumento que evalúa imágenes ópticamente y procesa la información automáticamente. Este aparato tiene la capacidad de analizar objetos tanto macroscópicos como microscópicos y lo que hace básicamente es: obtener una imagen, procesarla y evaluarla automáticamente. Consta de un circuito cerrado de televisión en el que una cámara de video se coloca en la parte superior de un microscopio y las señales obtenidas son enviadas a una microcomputadora para su procesamiento. Incluye un lápiz de luz que puede interactuar con la pantalla modificando las imágenes.

El microscopio cuenta con un sistema mecánico que es programado desde la computadora para mover la muestra y analizar varias áreas secuencialmente, en este proceso la imagen es enfocada automáticamente. Después del enfoque, la información es enviada a

la computadora. El criterio que adopta la máquina para enfocar es tomar el plano de la última imagen superior, para eliminar la posibilidad de daños en el objetivo o en la muestra por contacto causado en el proceso de enfoque.

Una vez que se tiene un buen enfoque se envía la señal a la computadora y es desplegada en la pantalla. La imagen óptica consiste de un número finito de puntos.

La imagen en la pantalla está formada por hexágonos llamados píxeles (Fig. 4.1), cada punto o hexágono se introduce a la computadora como un punto individual con una tonalidad de gris. Existe una conversión de los niveles de gris en la imagen a valores numéricos; esto se realiza mediante el software de la computadora. La máquina posee una resolución de 256 niveles de grises, aquí el valor de gris es el criterio utilizado para realizar el análisis de las imágenes ya que se selecciona un nivel de gris umbral en el aparato y todas las regiones o puntos arriba de este umbral son consideradas en la medición.

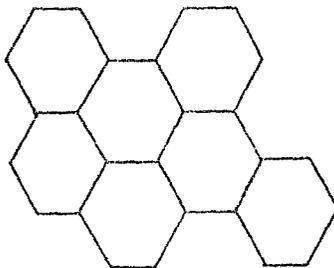


Fig. 4.1 PIXES QUE FORMAN LA PANTALLA

Es posible modificar la imagen obtenida usando el lápiz de luz, mediante 60 instrucciones ya establecidas en la máquina con programas previos. Con el lápiz se selecciona la operación y basta con tocar la imagen en la pantalla para realizar la operación.

A la pantalla de la computadora, al igual que a un monitor de televisión puede modificarse el contraste, la resolución, iluminación, etc. Esto es importante ya que sobre la imagen que aparece en la pantalla se realizan las mediciones. La imagen, los datos y las gráficas son mostradas en el mismo monitor y toda esta información puede ser impresa.

4.2 Medidas de Parámetros de Interés

Utilizando el Analizador de Imágenes Leitz Tas Plus se obtienen las medidas de los diámetros de los árboles y la densidad para realizar la calibración de la Fuente Electroquímica.

Para realizar la calibración de la Fuente Electroquímica se analizan dos características en los detectores grabados electroquímicamente: el tamaño del árbol y la eficiencia de registro η_e , donde la eficiencia de registro en el caso del grabado electroquímico se define como el cociente del número de trazas grabadas electroquímicamente entre el número de trazas grabadas químicamente. Esto en función de los parámetros de la fuente electroquímica como campo eléctrico, frecuencia y tiempo de electroquímico.

Utilizando el Analizador de Imágenes Leitz Tas Plus se realizarán las medidas necesarias: tamaño de la traza, número de

trazas grabadas químicamente (conos) y número de trazas grabadas electroquímicamente (árboles).

Para analizar el tamaño del árbol como no son exactamente circulares, como se observa en la figura 3.3, se adoptó el siguiente criterio para obtener este diámetro la máquina transforma el área ocupada por el árbol a un círculo con área equivalente y calcula el diámetro de este círculo.

El área que puede analizar el aparato es un rectángulo con la forma de la pantalla, pues como ya se dijo las mediciones se realizan sobre la imagen de la pantalla. Para el aumento elegido en el microscopio del aparato, el rectángulo tiene dimensiones de: 9052 micras de ancho por 7839 micras de largo (Fig 4.2).

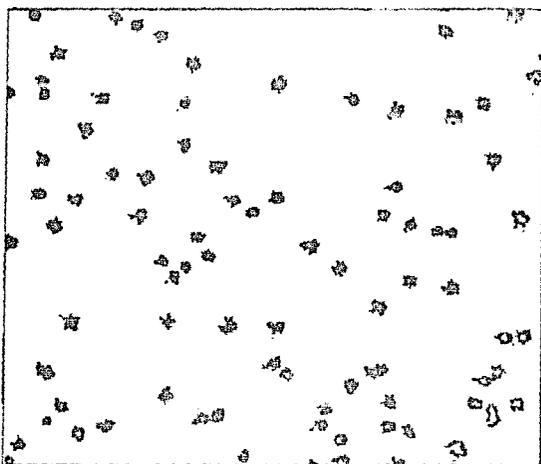


Fig. 4.2 Imagen que se observa en la pantalla.
(Impresa por la computadora)

En cada detector el area irradiada es un circulo de 1 cm de diámetro, para analizar toda el area se programó el analizador de manera que recorra y analice 16 campos, cada campo tiene las dimensiones antes mencionadas. Entre campo y campo se dejan 1000 micras, el recorrido se observa en la figura 4.3. Después de recorrer los 16 campos, el aparato muestra una estadística con los datos.

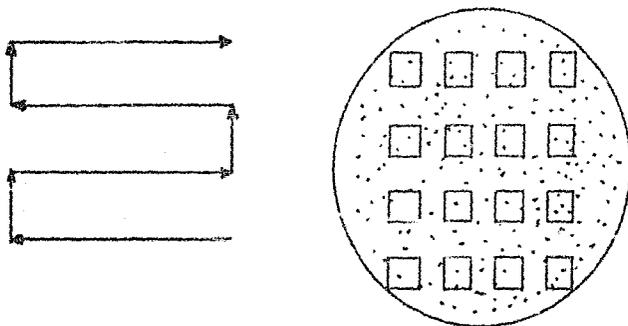


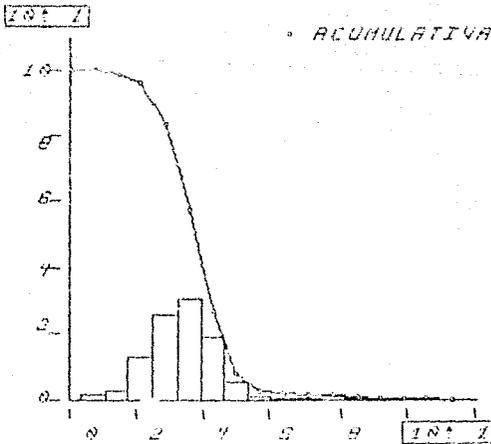
Fig. 4.3 RECORRIDO SOBRE LA MUESTRA.

La forma en que la máquina presenta los datos es en intervalos de diámetros promedio de 7.7 micras de longitud y el número de árboles cuyo diámetro se encuentra en ese intervalo. Finalmente realiza una gráfica acumulativa con el objeto de observar la distribución de diámetros (Fig. 4.4).

Al analizar las muestras, el aparato cuantifica todas las trazas, tanto las trazas sin arbola como los árboles.

NO. DE CAMPOS : 8.
 AREA TOTAL MEDIDA: 0.560E+07
 MUESTRA : 4
 NUMERO DE
 PARTICULAS MEDIDAS : 840.

| DIAMETRO PROMEDIO | NUMERO | PORCENTAJE |
|----------------------|--------|------------|
| 3.54 | 0. | 0. |
| 10.61 | 10. | 1. |
| 17.68 | 23. | 3. |
| 24.75 | 109. | 13. |
| 31.82 | 219. | 26. |
| 38.90 | 250. | 31. |
| 45.97 | 160. | 19. |
| 53.04 | 42. | 5. |
| 60.11 | 8. | 1. |
| 67.18 | 2. | 0. |
| 74.25 | 2. | 0. |
| 81.32 | 6. | 1. |
| 88.40 | 3. | 0. |
| 95.47 | 1. | 0. |
| 102.54 | 0. | 0. |
| 109.61 | 1. | 0. |
| 116.69 | 0. | 0. |



PROMEDIO : 37.37
 ± DESVIACION STANDARD : 10.8058
 50% VALOR : 37.09

Fig. 4.4 Estadística impresa por el Analizador de Imágenes.

El número de trazas grabadas electroquímicamente y de trazas grabadas químicamente se selecciona visualmente en el histograma.

El número de trazas grabadas electroquímicamente (árboles), son todas aquellas cuyo diámetro d es superior al diámetro del árbol más pequeño d_1 , el valor d_1 se determinó para cada muestra en forma óptica.

El número de trazas grabadas químicamente son el número total medido por el analizador menos el número de árboles. De esta forma se analizaron todos los detectores.

Capítulo V

CALIBRACION DE LA FUENTE ELECTROQUIMICA

Introducción

El objetivo de la calibración es encontrar el valores de los parámetros involucrados en el grabado electroquímico para los cuales, el mayor número de partículas que inciden en el detector sean reveladas.

Se busca que el sistema electroquímico sea eficiente en cuanto al registro de partículas pero también al tamaño y definición de los árboles, para analizar sus dimensiones.

5.1 Calibración con alfas monoenergéticas

El calibrar el sistema con neutrones resulta complicado ya que los neutrones carecen de carga y no producen ionización directamente en el material. Pero sí es posible detectarlos ya que los productos de la interacción del neutrón con la materia sí producen ionización. Los productos son principalmente protones e iones positivos, por ello las reacciones químicas que se inducen durante el grabado son similares a las que ocurren cuando se irradia el material con partículas pesadas positivas. Las partículas secundarias producidas por choques elásticos tienen todo un espectro continuo de energías con una geometría 2fl.

Por esta razón y para simplificar el problema se calibra primero para alfas monoenergéticas provenientes de una fuente es-

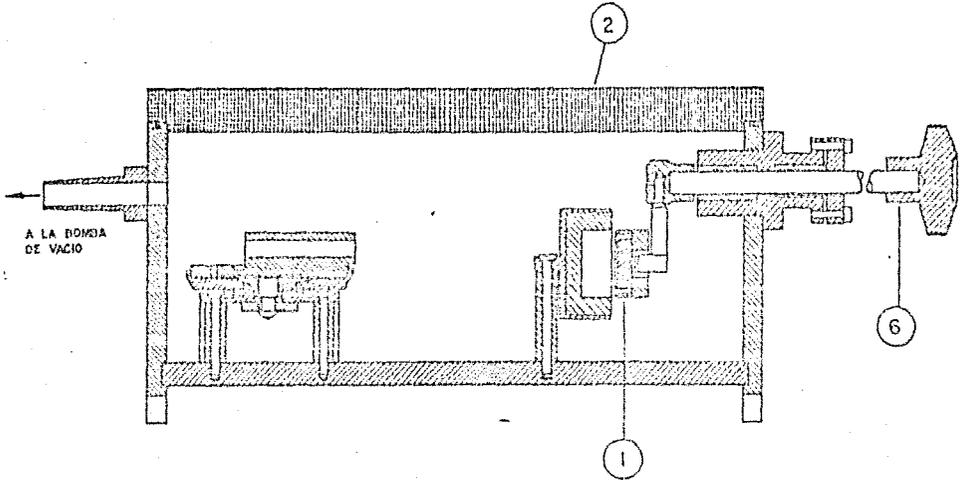
pectroscópica de americio 241. Esta fuente decae emitiendo partículas alfa de 5.48 Mevs con una vida media de T=432 años.

Para realizar la irradiación, se hizo uso de una cámara versátil de irradiación, Fig. 5.1, construida de aluminio y lucita que permite manipular fuentes radiactivas en condiciones de vacío. El vacío permite que las partículas cargadas provenientes de la fuente, no pierdan energía al chocar con las moléculas de aire. La cámara alcanza una presión de 10^{-3} mm. de Hg.

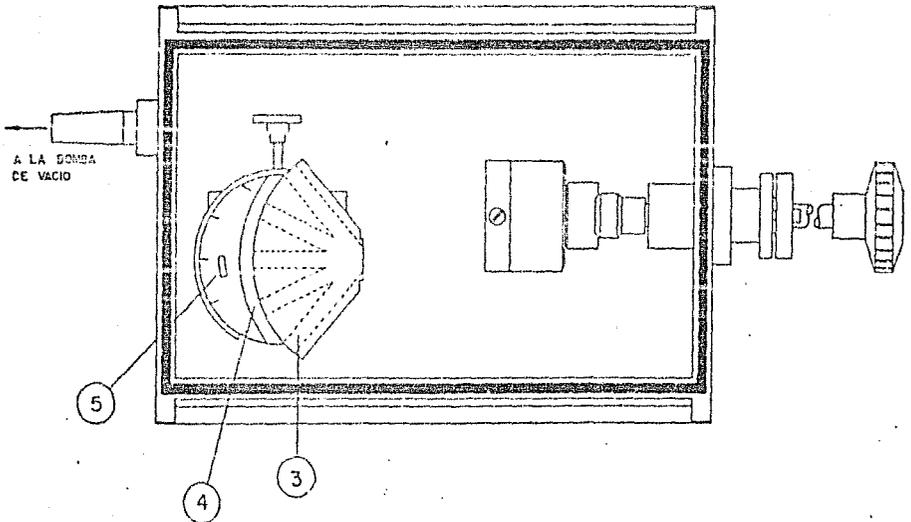
Para la calibración de este detector, se utilizaron muestras cuadradas de 15 cm de lado. El tiempo de irradiación de estas muestras fué de 30 seg, eligiéndose de manera que la densidad de partículas incidentes en el detector fuese de aproximadamente 300 trazas/cm². Se encontró que con esa densidad casi no existe deformaciones en los árboles, pudiéndose observar cada uno de ellos como árboles aislados.

Una vez irradiadas las muestras se procedió a grabarlas electroquímicamente, este procedimiento como se dijo en el capítulo III consta básicamente de tres partes: pregrabado, grabado electroquímico y post-grabado. El grabado químico que se da en el pregrabado es una técnica que se ha venido desarrollando desde hace tiempo, existiendo trabajos en los que se ha determinado la respuesta del plástico CR39 a parámetros como: tiempo de grabado, solución química y temperatura. En base a estos trabajos se han escogido los valores óptimos de los parámetros (12-13).

La solución química utilizada es 25% NaOH en agua destilada,



(A)



(B)

Fig. 5.1 A) Vista lateral de la cámara de irradiación. B) Vista superior de la cámara. 1.-Soporte de fuentes radiactivas. 2.-Tapa de la cámara. 3.-Collimador del haz de partículas proveniente de la fuente. 4.-Portablancos para colocar el material a irradiar. 5.-Dispositivo que permite escoger el ángulo de incidencia de las partículas. 6.-Sistema mecánico para sacar las fuentes.

ya que ataca rápidamente el CR39 sin producir efectos indeseables como burbujas o pérdida de transparencia superficial. La temperatura es de 70°C , ya que a esta temperatura la velocidad de grabado reduce el tiempo de tratamiento, además es fácil obtener esta temperatura con hornos convencionales.

Se pregrabaron químicamente (pregrabado) las muestras durante tres horas, ya que con este tiempo la mayoría de las trazas toman forma de cono sin redondearse la punta para las energías que se manejaron en el experimento.

D Variación del campo eléctrico E.

Para observar la respuesta de las trazas al campo eléctrico, se fijó el valor de la frecuencia en 5 KHz y se varió el campo desde 5 hasta 50 KV/cm, durante 30 min manteniéndose fijos los otros parámetros del grabado electroquímico. Ya grabados los detectores se obtuvieron valores en el analizador de imágenes del diámetro promedio de los árboles y la densidad.

En la figura 5.2 se muestra la variación del diámetro de los árboles como función del campo eléctrico. Se observa un fuerte incremento del diámetro hasta el valor de 35 KV/cm, para valores cercanos a 50 no se registro incremento significativo. La curva tiende a estabilizarse para valores entre 35 y 50 KV/cm.

La eficiencia como función del campo eléctrico para los mismos detectores usados en la figura 5.2 es alrededor de 1 para todos los valores de campo eléctrico. Sin embargo debe notarse

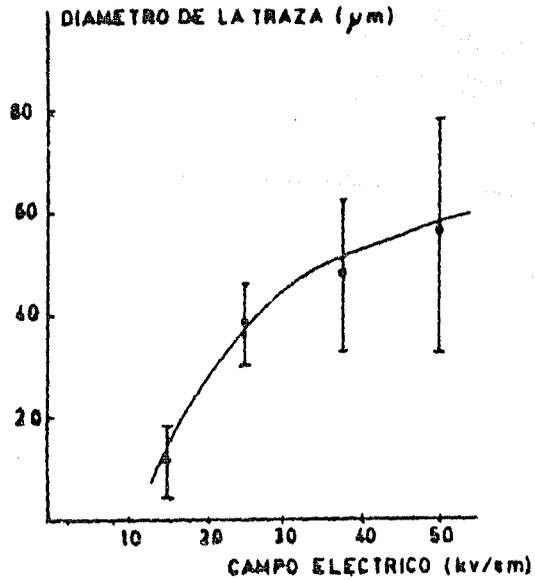


Fig. 5.2 Diámetro de la traza en función del campo eléctrico.

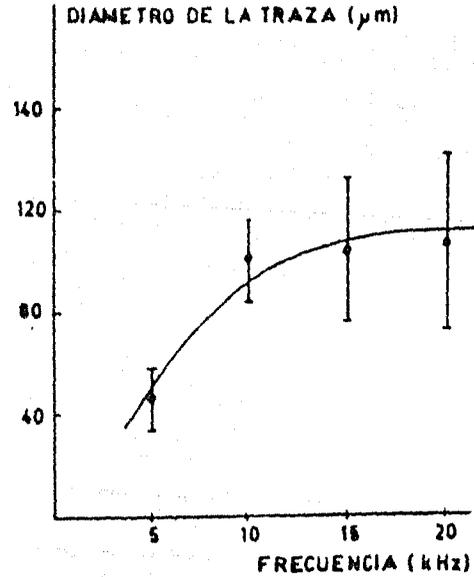


Fig. 5.3 Diámetro de la traza en función de la frecuencia.

que esta eficiencia corresponde sólo a los árboles producidos por partículas alfa monoenergéticas con un ángulo de incidencia de 90° .

ii) Variación de la frecuencia F

En este caso se fijó el valor del campo eléctrico en 40 KV/cm, ya que este valor se encuentra entre los valores en donde tiende a estabilizarse la curva de la figura 5.2, y se varió la frecuencia desde 5 hasta 25 KHz, se grabaron electroquímicamente durante 30 min y se analizaron los mismos parámetros que en el caso anterior. En la figura 5.3 se observa que la variación del diámetro con la frecuencia es menos pronunciada, en ambos casos las barras de error indican la gran variación en el tamaño de los árboles originada por los procesos aleatorios de rompimientos del dieléctrico. La eficiencia que se obtuvo para los detectores antes mencionados es igual que en el caso anterior, alrededor de 1 para todo el rango de frecuencias.

iii) Tiempo de grabado electroquímico.

El diámetro de los árboles en función del tiempo de grabado electroquímico se obtuvo grabando detectores a diferentes tiempos con $E=30$ KV/cm y $F=15$ KHz y 1 hora de pregrabado. En la figura 5.5 se graficó el resultado, se observa que el diámetro aumenta con el aumento en el tiempo de grabado electroquímico, tendiendo a un valor constante para tiempos mayores de 2 hrs. El tiempo de pregrabado para estos detectores fué menor que en los otros casos. Para agilizar el proceso se trabajó con tiempos de 30 min para todos los experimentos.

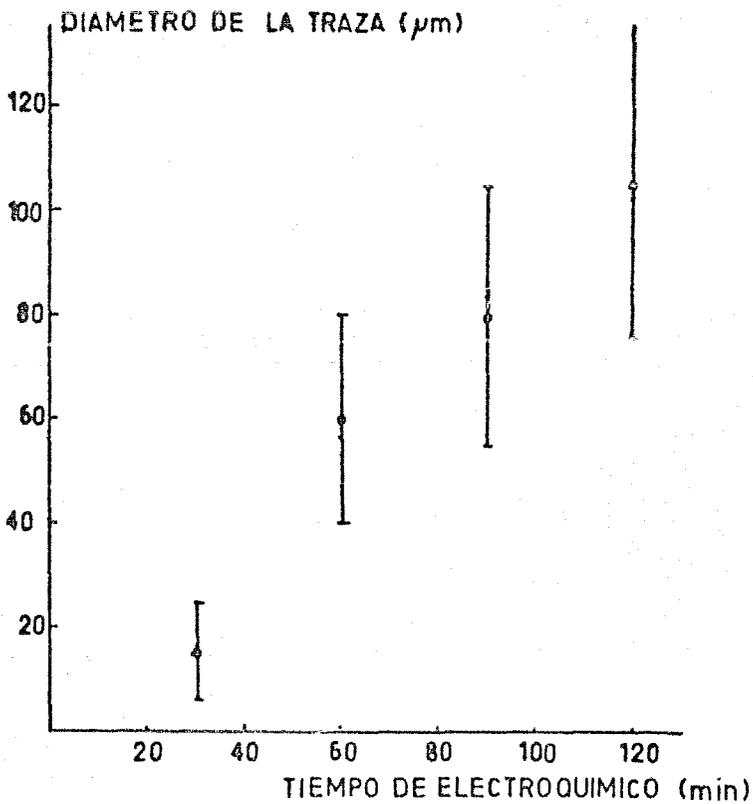


Fig. 5.5 Comportamiento del diámetro de la traza en función del tiempo de grabado electroquímico.

Este tiempo de pregrabado no es aplicable a todos los casos ya que si la energía de la partícula es muy grande, el cono no se forma hasta después de varias horas de grabado químico.

iv) Variaciones respecto al ángulo de incidencia.

Como ya se dijo en todos los casos anteriores, el ángulo θ de incidencia de las partículas ha sido de 90° . Un espectro continuo de energía con una geometría 2II presenta variaciones en η_e , para mostrar esta dependencia $\eta_e = \eta_e(\theta)$ se irradiaron detectores CR39 con alfas monoenergéticas de 5.48 Mev a ángulos de 15° , 30° , 45° , 60° , 75° y 90° , procesandolos química y electroquímica-mente con las condiciones ya elegidas $t_{pre} = 4$ hrs. $E = 35$ KV/cm, $F = 20$ KHz, $T = 70^\circ C$ y tiempo de electroquímico de 30 min.

La figura 5.6 muestra que la eficiencia para ángulos distintos de 90° es diferente de 1 y decae conforme disminuye el ángulo. Para ángulos menores de 45° no aparecen árboles.

5.2 Calibración con Pastilla de Uranio

Para una exposición con una geometría 2II y todo un espectro de energía, se utilizó un estándar emisor con 461.5 ppm (partes por millón) de uranio y 457.2 ppm de torio en una matriz de vidrio. Varios detectores CR39 fueron expuestos en contacto con el estándar por tiempos de 17 horas y tiempo de pregrabado de 1 hora.

La figura 5.7 muestra la variación de la eficiencia η_e como

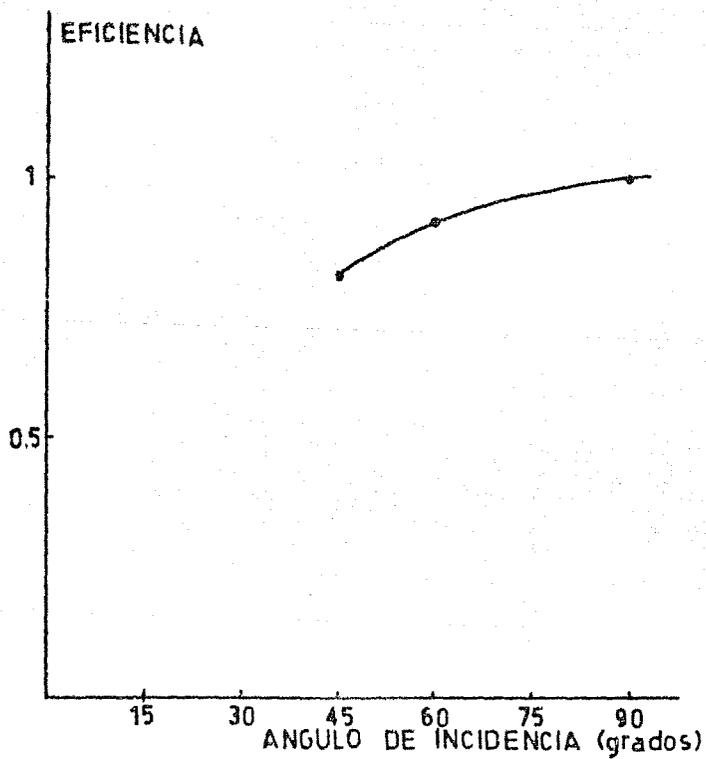


Fig. 5.6 Eficiencia de registro en función del ángulo de incidencia.

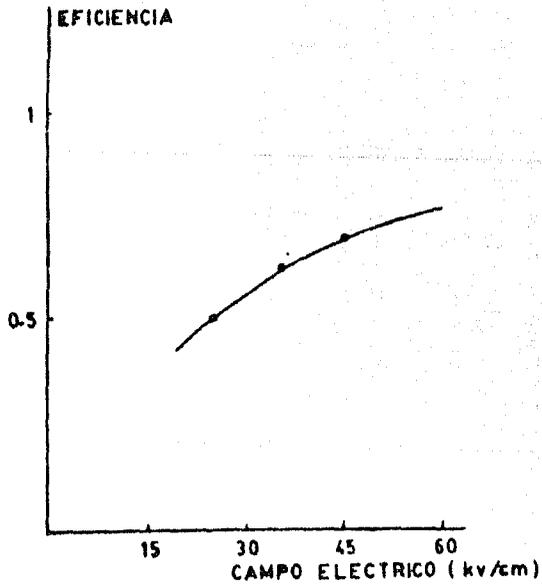


Fig. 5.7 Eficiencia de registro en función del campo eléctrico.

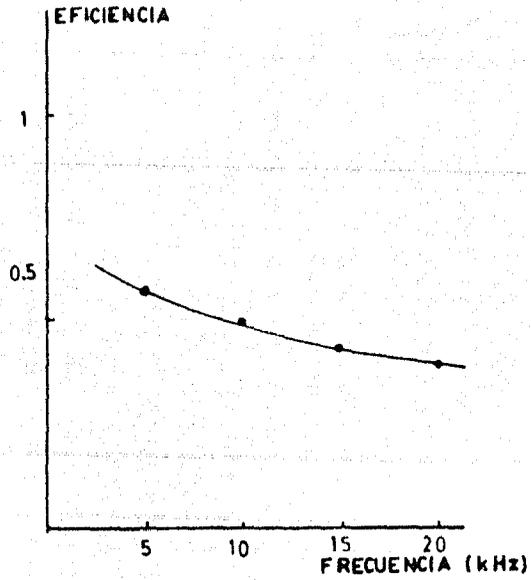


Fig. 5.8 Eficiencia de registro en función de la frecuencia.

función del campo eléctrico; para valores arriba de 35 KV/cm, η_0 alcanza casi su valor máximo, no encontrándose variaciones apreciables hasta valores de 50 KV/cm. No se obtiene eficiencia de 1 pero se observa una ligera tendencia ascendente conforme se incrementa el campo eléctrico.

La dependencia de la eficiencia en función de la frecuencia $\eta_0 = \eta_0(F)$ es mostrada en la figura 5.8. Se observa un decremento conforme se incrementa el valor de la frecuencia aunque no muy significativo.

No se elaboraron graficas de diámetros, ya que existen arboles de todos los diámetros debido a la variación en la energía y en el ángulo de incidencia.

5.3 Calibración con fuente de neutrones

Para realizar la calibración, se utilizó un campo de neutrones generado por una fuente de americio berilio de 3 Ci, con un flujo de 7.39×10^6 n/seg \pm 6 %. Estos datos son proporcionados por el fabricante (su espectro de energía se observa en la figura 5.9). Con el objeto de moderar los neutrones la fuente se encuentra inmersa en parafina (Fig. 5.10), el espectro de la fuente de Am-Be con el absorbedor de parafina fue determinado de la siguiente forma: su porcentaje de componentes térmicas abajo del corte de Cd (0.3 eV), intermedias entre el corte de Cd y el umbral de fisión de ^{235}U (1 MeV) y los rápidos para $E > 1$ MeV. Todo determinado por el método de la multiesfera de Bonner. El

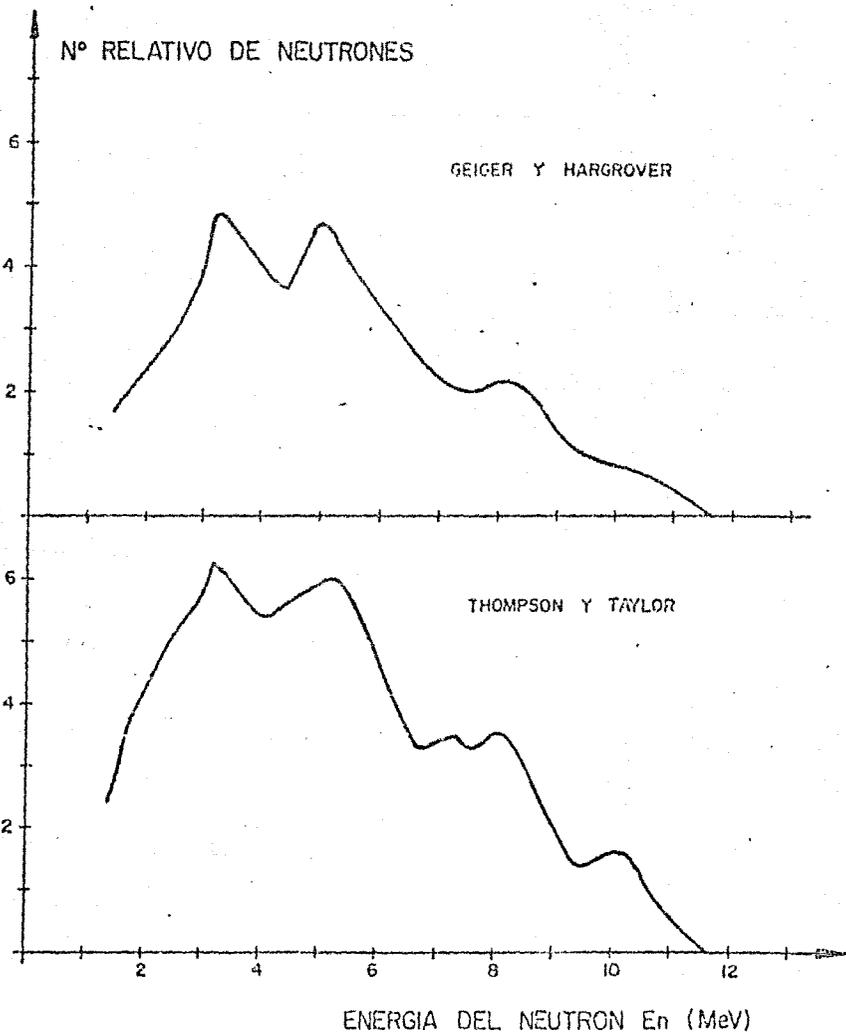


Fig. 5.9 Espectro de energia de la fuente de Am-Be.

flujo que recibió el detector es de 4.815×10^5 n/seg, donde el 20% de los neutrones son térmicos, el 54% intermedios y el 26% rápidos (14).

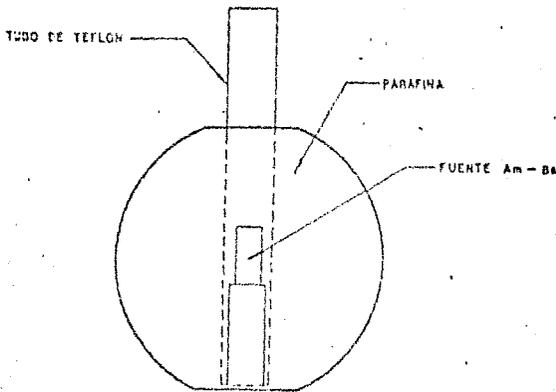


Fig. 5.10 Fuente de Am-Be inmersa en parafina.

Para realizar la irradiación la fuente y el detector fueron colocados en un arreglo experimental como el que se indica en la Fig 5.11, donde la distancia entre la fuente y el detector es de 26 cm. Con el objeto de reducir el rebote de neutrones por el piso, se colocó la fuente y el detector a 2m de altura.

Con este arreglo se encontró que el flujo es uniforme en un detector con area de 40 cm^2 , para areas mayores no se realizó la prueba por no ser de interes para el experimento.

Para la irradiación se colocaron dos detectores empalmados como lo muestra la figura 5.12, con el objeto de tener mas información por cada irradiación. Los detectores usados tienen forma

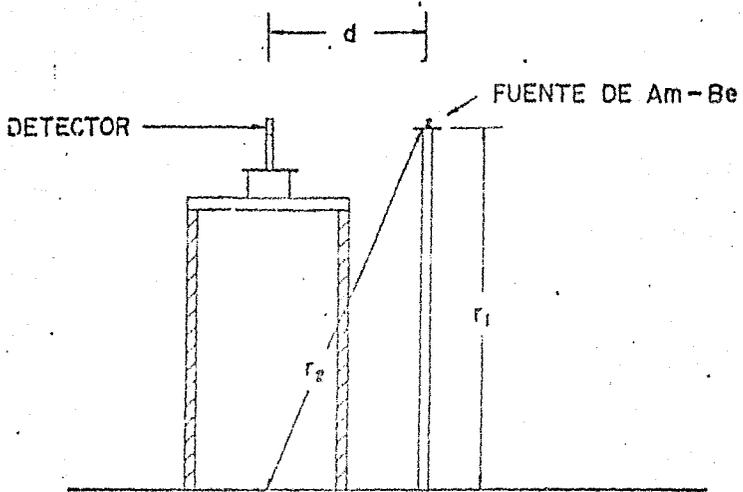


Fig. 5.11 Arreglo experimental para la irradiación con la fuente de Am-Be.

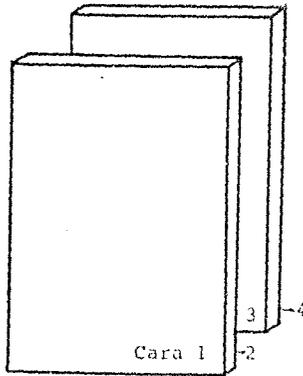


Fig. 5.12 Colocación de muestras al irradiar con neutrones.

rectangular y presentan un área de 40 cm^2 , estos se irradiaron obteniéndose un número total de partículas de $6.1 \times 10^8 \text{ n/cm}^2$ ⁽¹⁴⁾ en el tiempo que estuvieron expuestas, pero como el CR39 sólo detecta neutrones intermedios y rápidos, se considera el 80% de este flujo ⁽¹⁴⁾.

Los neutrones se detectan principalmente por la colisión elástica de neutrones con el protón de hidrógeno, el CR39 es sensible a protones desde 30 KeV hasta del orden de MeV dependiendo del tiempo que se pregrabó el detector y de las condiciones de grabado electroquímico.

Una vez irradiadas las muestras se dividieron en 6 partes para grabarlas electroquímicamente variando el tiempo de grabado químico desde 0 hasta 5 horas.

De la calibración con alfas monoenergéticas y con la pastilla de Uranio, se eligieron las condiciones para grabar electroquímicamente los detectores irradiados con neutrones: tiempo de electroquímico 30 min, $E=35 \text{ KV/cm}$ y $F=5 \text{ KHz}$.

Debido a que el polímero usado como detector es transparente, al leer las trazas con un microscopio se observan los árboles en las 2 caras. Cuando los detectores se analizan manualmente se puede saber cuales trazas corresponden a cada cara, pero si se utiliza el Analizador de Imágenes no es posible realizar esta distinción. Cuando se desea grabar un solo lado del detector, este se pone en contacto con una solución de 25% NaOH y del otro lado una solución salina. Con la solución salina no se forman

arbolamientos pero si permite la generación del campo eléctrico por ser solución electrolítica.

Ahora se analiza la eficiencia de registro para los neutrones, esta eficiencia se define como la densidad de trazas entre el número total de neutrones recibido en el detector.

En la gráfica 5.13 se muestra la eficiencia del detector como función del tiempo de pregrabado para la cara 1 mostrada en la figura 5.12. En la figura 5.14, 5.15 y 5.16 se observa esta misma variación para las caras 2, 3 y 4 respectivamente.

Finalmente se observa en la figura 5.17 el promedio de la densidad en las 4 caras para los diferentes tiempos de pregrabado. En las 5 figuras la variación en la pendiente es muy grande para valores entre 0 y 2 horas de pregrabado y la variación es más pequeña para los siguientes valores, tendiendo a un valor constante.

En todas las gráficas se observa que la eficiencia aumenta hasta en 2 ordenes de magnitud al variar en 3 horas el tiempo de pregrabado.

Finalmente se realiza el cálculo teórico del número de reacciones nucleares presentes en el polímero, inducidas por los neutrones incidentes.

Las reacciones nucleares R, ocurridas en el polímero se calculan con la relación:

$$R = \int_V \int_0^{\infty} N(x,y,z) \sigma(E) \phi(E,x,y,z) dV dE$$

Donde

$N(x,y,z)$ = Numero de átomos del material por unidad de volumen en el punto (x,y,z) .

$\sigma(E)$ = Sección transversal a una energía E.

$\phi(E,x,y,z)$ = Flujo de partículas con una energía E en el punto (x,y,z) .

Esta expresión es la más general; sin embargo en este caso $N(x,y,z)$ es independiente de la posición ya que se supone al polímero homogéneo. La estructura molecular del polímero CR3V es $(C_2 H_{10} O_2)$, y su densidad es 1.3 gr/cm^3 . Como el elemento más abundante es el hidrógeno supondremos que las interacciones de los neutrones son solo con los protones del hidrógeno. La energía empleada para los cálculos fue de 30 KeV para esta energía la sección transversal $\sigma(30 \text{ KeV})=20 \text{ barns}$, y el alcance del proton es de $1 \mu\text{m}$. El flujo total recibido en el detector fue de $6.1 \times 10^9 \text{ n/cm}^2$ donde el 54% son neutrones intermedios en este intervalo se encuentran los neutrones con energía de 30 KeV, por consiguiente el flujo considerado sera de $3.05 \times 10^9 \text{ n/cm}^2$.

La ecuación queda

$$R = N \sigma \phi$$

donde
$$N = \frac{N_A \rho}{M}$$

N_A = Numero de Avogadro

ρ = Densidad del material

M = Masa molecular

Por otro lado la densidad de reacciones esta dada por:

$$r_p = P(\theta, R_p) R \quad (15)$$

donde $P(\theta, R_p)$ es la probabilidad de encontrar protones considerando un elemento de volumen de la muestra y está dada por:

$$P(\theta, R_p) = \frac{R_p}{d}$$

donde θ es el ángulo de incidencia de la partícula y R_p es el alcance de los protones. En este caso para protones con energía de 30 KeV su alcance en CR39 es de 1 μ m

Sustituyendo $r_p = 0.01 \times 10^4$ trazas/cm²

Con estos datos se puede obtener la eficiencia η que está dada por:

$$\eta = \frac{r_p}{\phi}$$

$$\eta = 2.95 \times 10^{-4} \text{ trazas/neutron en } 1 \text{ cm}^2$$

Después de que ha interactuado el neutrón con el protón, la distancia que recorre el protón esta dada por:

$$R_p = 20,857 E_n^{1.552} (\text{sen } \theta)^{3.044} \quad 0 < E_n < 3 \text{ Mev} \quad (16)$$

donde E_n = es la energía del neutrón

θ = al ángulo entre la trayectoria del protón desplazado y la superficie del detector.

Considerando neutrones con energía de 0.5 Mev

$$R_p = 7.113 \mu\text{m}$$

Para realizar una comparación entre esta distancia y la distancia que recorre una partícula alfa con la misma energía que el neutrón, se calcula el alcance de las partículas alfa. Para este cálculo se utiliza la misma expresión pero considerando que $E_p = E_n \sin^2 \theta$ y $E_n = 4 E_p$.

Sustituyendo valores $R_\alpha = 0.827 \mu\text{m}$

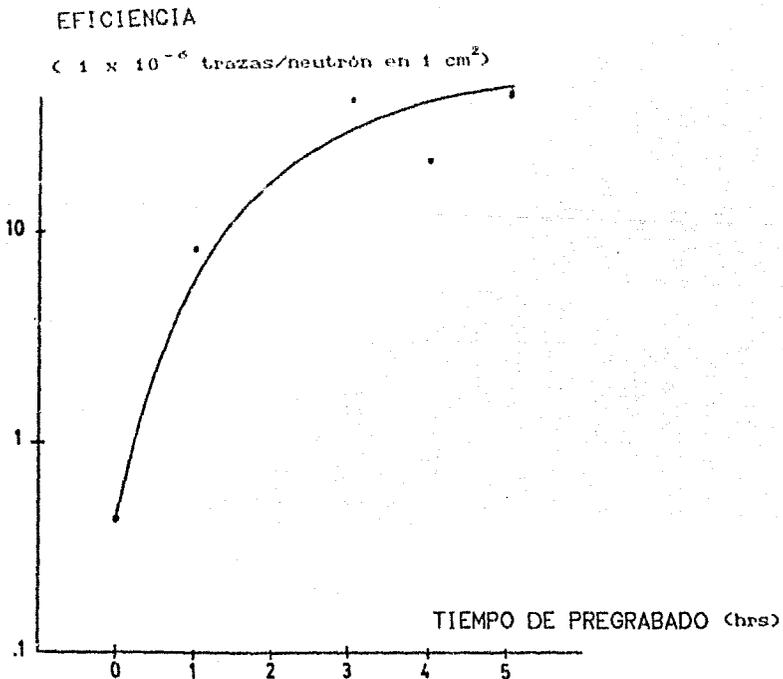


Fig. 5.13 Eficiencia de registro en función del tiempo de pregrabado para la cara f.

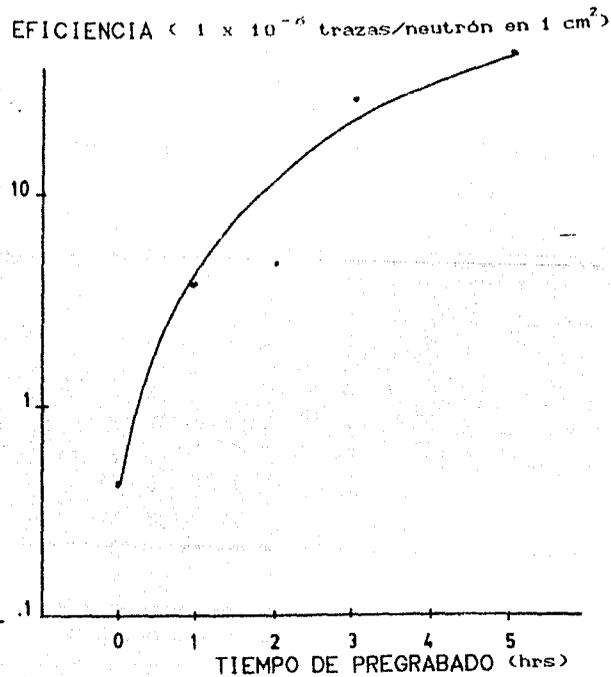
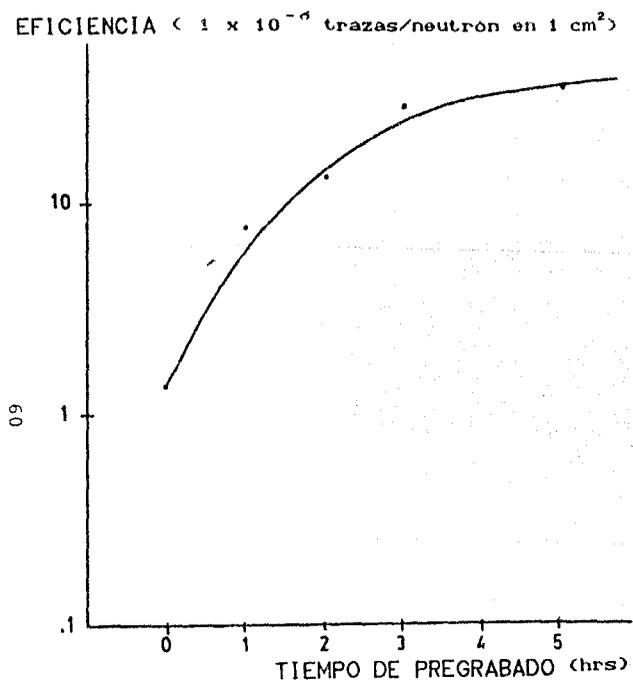


Fig. 5.14 Eficiencia de registro en función del tiempo de pregrabado para la cara 2.

Fig. 5.15 Eficiencia de registro en función del tiempo de pregrabado para la cara 3.

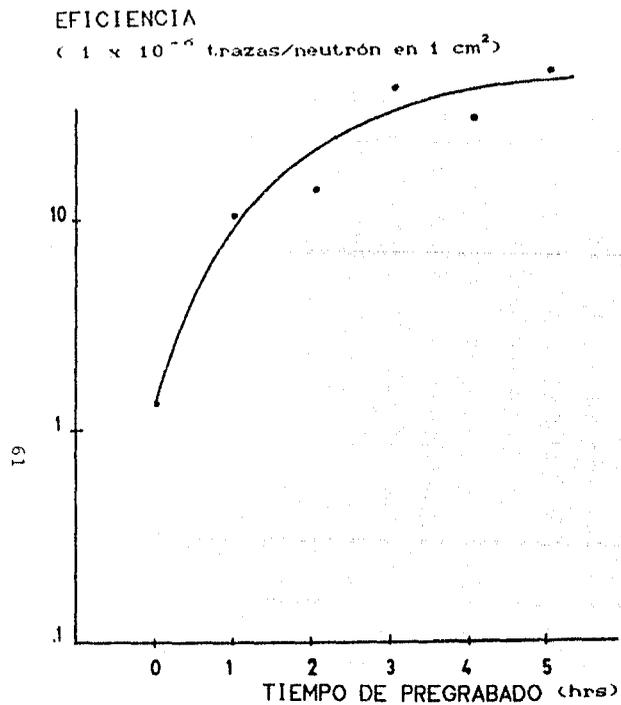


Fig. 5.16 Eficiencia de registro en función del tiempo de pregrabado para la cara 4.

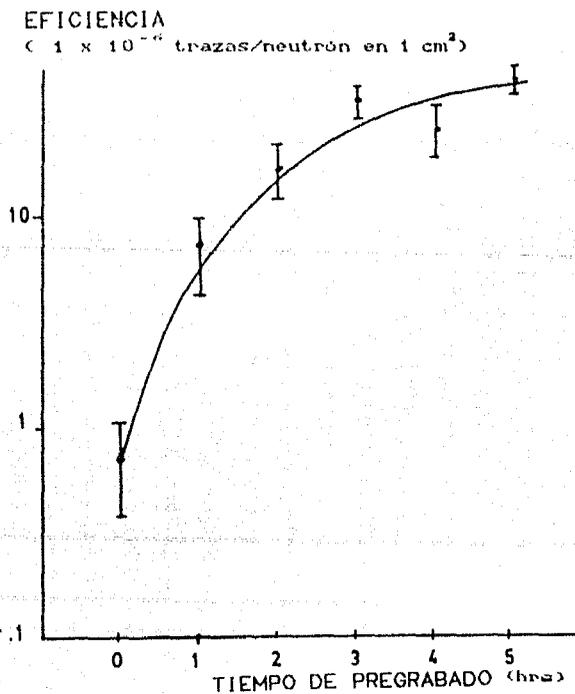


Fig. 5.17 Promedio de la eficiencia de registro en función del tiempo de pregrabado para las 4 caras.

Capítulo VI

CONCLUSIONES Y PERSPECTIVAS

Al no producir los neutrones ionización directamente en el material, estos se detectan a través de los productos de la interacción del neutrón con la materia. Estos productos producen reacciones similares a las que ocurren cuando se irradia el material con partículas cargadas pesadas. Por ello antes de calibrar el sistema con neutrones se siguieron varios pasos: se calibró primero para alfas monoenergéticas incidiendo a 90° .

Al irradiar con una fuente de americio 241, la cual emite partículas alfa de 5.48 Mev y grabando con una solución de 25% NaOH a una temperatura de 70° , los valores de la fuente electroquímica con los que se obtiene una mayor diámetro de las trazas y una mejor definición son: campo eléctrico entre 35 y 40 KV/cm y frecuencia de 5 KHz. La frecuencia es proporcional al diámetro de la traza, pero para valores grandes de frecuencia los árboles se ramifican demasiado, es por eso que se eligió el valor de 5 KHz.

Para realizar la lectura automática de los detectores utilizando el Analizador de Imágenes es importante que los árboles no se encuentren muy próximos, esto se logra con bajas densidades. Para obtener medidas más aproximadas de los diámetros de los árboles estos no deben estar demasiado ramificados, esto se logra con las condiciones de grabado electroquímico antes mencionadas.

Pero como los neutrones no solo inciden a 90° sino con una geometría 2D como segundo paso se calibró variando el ángulo de incidencia. Al variar el ángulo de incidencia de las alfas monoenergéticas se encontró que no se producen arbolamientos cuando las partículas inciden a ángulos menores de 45° ya que al pregrabar químicamente no se forma el cono por ser $V_r = V_0$

El tiempo que se graban electroquímicamente los detectores es proporcional al diámetro de la traza, los tiempos prolongados no afectan la forma del árbol, ya que siguen existiendo rompiéndose en todas direcciones.

Como los neutrones tiene todo un espectro de energía para simular esto se irradia con una pastilla de uranio. Al irradiar el CR39 con un estándar emisor con 461.5 ppm de uranio y 457.2 ppm de torio y grabando con las condiciones antes mencionadas la eficiencia aumenta al aumentar el campo eléctrico, teniendo un mejor comportamiento para valores alrededor de 5 KHz de frecuencia.

Finalmente se irradiaron los detectores con un campo de neutrones generado por una fuente de americio berilio inmersa en parafina y se grabaron electroquímicamente con las condiciones obtenidas en los casos anteriores. Se concluyó que para mejorar la eficiencia del detector al irradiarlo con neutrones es necesario pregrabar tiempos no menores de 3 horas, ya que conforme el tiempo de pregrabado del detector aumenta se observan trazas producidas por neutrones con más altas energías pero no solo estos sino

tambien neutrones con poca energia pero que no hayan tenido ninguna interacción con la materia hasta despues de viajar cierta distancia. Las densidades de trazas medidas y utilizadas para calcular la eficiencia incluyen trazas de todos tamaños, o sea trazas producidas por neutrones con todas las energias.

Se observa que la eficiencia calculada teóricamente ($\eta = 2.95 \times 10^{-4}$) tiene un orden de magnitud mayor que las obtenidas experimentalmente. El calculo teórico del alcance nos dice que con tiempo de pregrabado de 5 horas, podemos observar trazas producidas por neutrones con energias mayores de 0.5 Mev si su interacción comienza en la superficie del detector y si su choque es frontal con el proton, esto se puede decir ya que el alcance teórico del proton despues de su interacción con el neutrón es de 7.1 μm y el espesor removido en el detector despues de grabar 5 horas es de 6 μm pues la velocidad de grabado con las condiciones utilizadas es de 1.2 $\mu\text{m/hr}$.

Analisis preliminares de uranio en orina.

Los detectores solidos de trazas nucleares tienen un gran numero de aplicaciones y ventajas. Por su facilidad de manejo no cambiar sus propiedades a diferentes presiones, soportan altas temperaturas, bajo costo y facil proceso de revelado y análisis.

Pueden utilizarse en fisica de rayos cósmicos, reacciones nucleares y diversas aplicaciones biológicas.

El departamento de Vigilancia Ambiental del INM, preparo soluciones de orina con concentraciones de uranio de 50, 100, 500 y 1000 $\mu\text{g}/100\text{ml}$ (gramos de uranio por 100 ml de orina).

Estas fueron evaporadas en cajas de petri, exponiendo detectores CR39 sobre las sales residuales por espacio de 3 meses.

Estos detectores fueron procesados con el sistema electroquímico antes calibrado para su analisis. Las condiciones utilizadas fueron tiempo de pregrabado de 2 horas, $F=5\text{ KHZ}$, $E=35\text{KV/cm}$ y tiempo de electroquímico de 1 hora.

Una vez revelados se analizaron con el analizador de imagenes y se construyo la grafica de la figura 6.1. Debe notarse que la gran desviacion de las densidades de arboles con una funcion lineal se debe al hecho de que los cristales residuales de uranio en orina tienden a formar grupos con concentraciones de uranio no uniforme.

Para evitar este problema, se trabajó exponiendo los detectores a líquidos concentrados de las soluciones originales. Los resultados se observan en la figura 6.2. La distribución es más homogénea aunque con una significativa reducción de la eficiencia de detección.

Al ser este detector CR39, altamente eficiente para radiación α , se propone utilizarlo en el mapeo de Rn-222, de gran uso en: prospección de fuentes geotérmicas, vigilancia de zonas de riesgo en regiones sísmicas y volcánicas y monitoreo ambiental de radón.

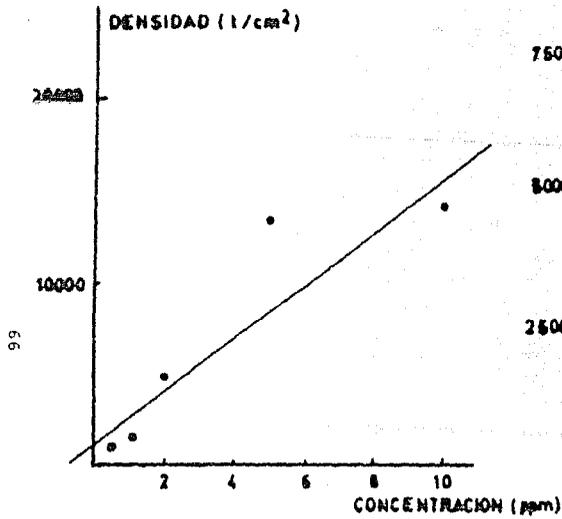


Fig. 6.1 Ajuste de recta por mínimos cuadrados de la densidad de trazas en función de la concentración de Uranio en orina deshidratada.

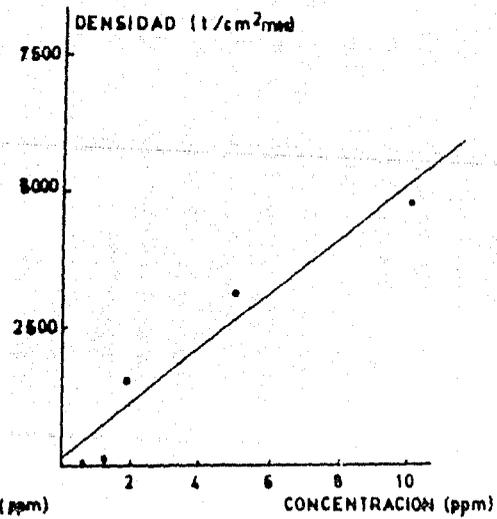


Fig. 6.2 Ajuste de recta por mínimos cuadrados de la densidad de trazas en función de la concentración de Uranio en orina diluida.

Referencias

- 1.- Balcázar M. et al., Detección y discriminación energética de neutrones, Memorias de la II Reunión Científica de la Soc. Mex.de S. R., México 1986.
- 2.- Gibson J. A. B., Neutron Monitoring for Radiological Protection; Technical Reports serie 254 (1985) p. 21-23.
- 3.- Vargas G. A., Detección de neutrones rápidos por trazas en pollicarbonatos, Tesis de Licenciatura, UNAM, 1982 p.34.
- 4.- Knoll G. F., Radiation detection and measurement, John Wiley and sons, 1975.
- 5.- Benton E. V., Report. USNRDL-TR-68-14 (1968).
- 6.- Monnin M; Report. PRCF; 68-RI 9. (1968)
- 7.- Katz R. and Kobetich E. J., Formation of Etchable Tracks in Dielectrics; Phys. Rev. 170 (1968), p. 401-405
- 8.- Durrani S. A., Bull R. K., Solid State Nuclear Track Detection Pergamon Press 1987.
- 9.- Henke R.P., Benton E. V., On Geometry of Tracks in Dielectric Nuclear Track Detectors; Nuclear Instruments and Methods 97 (1971), p. 483-489
- 10.- Fleischer R. L., Price P.B., Walker R. M., Nuclear Tracks in Solids; University of California Press, Berkeley, 1975.
- 11.- S. A. R. Al-Najjar, R. K. Bull and S. A. Durrani Tracks "Electrochemical Etching of CR-39 Plastic Applications to Radiation Dosimetry" 3 (1979) p. 169-183.
- 12.- Green et al., On the optimisation of etching conditions for CR39 and other plastic track detector, Solid State Nuclear Track Detectors, 1981.
- 13.- Avendaño E. M., Grabado electroquímico de plásticos dañados por partículas cargadas, Tesis de Licenciatura, Escuela de Química, UAEM 1981.
- 14.- Prototipo de detector de neutrones para asociar factores de calidad en un reactor, X Reunión anual de la Sociedad Mexicana de Seguridad Radiológica. Guanajuato, Marzo 1987.
- 15.- López M. A., Desarrollo de un método para la cuantificación y distribución de uranio en minerales y matrices., Tesis de Licenciatura, Escuela de Química UAEM 1982.
- 16.- M. Balcázar et al., Electrochemical etching and spark counting studies for $Li^{6}(n,\alpha)T$ registration in CR39, Nuclear Tracks, Int. J. Radiat., App. Inst., Part D. 12(1986)669.