

UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID
FACULTAD DE CIENCIAS FÍSICAS



TESIS DOCTORAL

**Diseño, construcción y caracterización de un contador
proporcional de ángulo sólido definido para la medida
absoluta de tasas de emisión de rayos X de baja energía**

MEMORIA PARA OPTAR AL GRADO DE DOCTOR

PRESENTADA POR

Víctor Hernández Elvira

Director

Miguel Roteta Ibarra

Madrid

UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID
FACULTAD DE CIENCIAS FÍSICAS



TESIS DOCTORAL

DISEÑO, CONSTRUCCIÓN Y CARACTERIZACIÓN DE UN CONTADOR
PROPORCIONAL DE ÁNGULO SÓLIDO DEFINIDO PARA LA MEDIDA ABSOLUTA DE
TASAS DE EMISIÓN DE RAYOS X DE BAJA ENERGÍA

MEMORIA PARA OPTAR AL GRADO DE DOCTOR

PRESENTADA POR

VÍCTOR HERNÁNDEZ ELVIRA

DIRECTOR

MIGUEL ROTETA IBARRA

Agradecimientos

En primer lugar, quiero agradecer a mi director de tesis, Miguel Roteta, su apoyo durante todos estos años, especialmente en los momentos en que más necesario ha sido, sus sabias enseñanzas y las largas horas luchando en el laboratorio con las mil dificultades que iban surgiendo.

A todo el resto de compañeros del LMRI, Marcos, Virginia, Nuria y Maite, que no han dudado nunca un instante a la hora de ayudarme con mi trabajo cuando lo he necesitado. Especial mérito tiene lo de Eduardo, que incluso después de jubilado ha continuado siendo un apoyo fundamental.

Poca gente quedará en el CIEMAT a quien no tenga que agradecerle de una u otra manera su ayuda para sacar adelante este trabajo. Probablemente no están en esta lista todos los que son, pero desde luego son todos los que están:

En primer lugar, a José Ignacio Martínez, Manuel Daniel y todos los compañeros del Taller General, por ayudarnos con el diseño mecánico, por sus sabios consejos, y sobre todo, por ser la mano ejecutora de la construcción de las cámaras del contador.

A Fernando de Aragón y sus compañeros del Taller de Fusión, cuya ayuda fue imprescindible para solventar los problemas de fugas que tuvimos en los primeros momentos de vida del contador.

A Aelio Arce y Rafa Muñoz, del Centro Español de Metrología, por las medidas dimensionales del diafragma. También a Daniel Plaza, del CIEMAT, que consiguió medir una de las dimensiones, prácticamente inaccesible, mediante un duplicado de resina.

A Pedro Méndez, que nos imprimió en *3D* la carcasa que diseñamos para las medidas de fluorescencia.

A Juan Cano, que nos construyó de la noche a la mañana un armazón a medida para el blindaje.

Por supuesto a Alba Fernández Sotillo, que con sus ventanas de grafeno nos libró de la tiranía del berilio.

Pero sin duda tengo que hacer extensivo mi agradecimiento al CIEMAT en su conjunto como institución, y al LMRI en particular.

Agradezco a Fernando Arqueros, de la Facultad de Física de la UCM, su labor como tutor durante estos años, y a todos los miembros del tribunal y revisores externos por aceptar esta tarea.

También quiero expresar mi agradecimiento a algunas personas que fueron importantes en etapas previas al comienzo de la tesis: Luis González MacDowell, de la facultad de Química de la UCM, que me ayudó a dar mis primeros pasos en la investigación, y a Cecilia Guillén y Juan Trigo, que me ayudaron a dar mis primeros pasos en el CIEMAT.

Je tiens à remercier d'une façon très spéciale la Dr. Marie-Christine Lépy et tous les collègues de l'LNHB de Paris-Saclay pour l'opportunité qu'ils m'ont donnée de travailler au laboratoire pendant trois mois, pour leur chaleureux accueil et pour le temps qu'ils ont voué à me donner un coup de main à chaque fois que j'en ai eu besoin. Cela a été une expérience énormément enrichissante à tous les égards et j'en suis vraiment reconnaissant.

Y, por supuesto, mil gracias a mi familia y amigos, por ayudarme a mantenerme cuerdo, que al fin y al cabo es un requisito bastante importante para terminar una tesis doctoral.

Índice general

Resumen	11
Abstract	13
1. Introduction	15
1.1. Ionizing radiation	16
1.2. Interaction of photons with matter	18
1.2.1. Types of interactions	18
1.2.2. Magnitudes for expressing the probability of interaction	22
1.2.3. Response of the detector to X - or γ -radiation	25
1.3. Detection of X - and γ -rays	27
1.3.1. Types of photon detectors	27
1.3.2. Electronics of radiation detection	30
1.3.3. Statistics of the detection	34
1.3.4. Counting statistics	38
1.3.5. Distribution of time intervals. Dead time	38
1.4. Detection geometry	40
1.5. Absolute measurement of emission rates. Correction factors on the counting rate.	43
1.5.1. Geometric efficiency	43
1.5.2. Probability of interaction of the radiation with the detector	44
1.5.3. Corrections for absorption	44
1.5.4. Corrections for scattering	48
2. Diseño y construcción del contador proporcional	53
2.1. Antecedentes	53
2.2. Consideraciones iniciales: elección del gas y dimensiones del contador. Probabilidad de interacción.	54
2.3. Construcción del contador	56

2.4.	Ventana del detector	58
2.5.	Sistema de control de gases	60
2.6.	Electrónica empleada	62
3.	Caracterización del contador: formación de la señal, cálculo de la eficiencia de detección y estabilidad de las medidas	65
3.1.	Formación de la señal: creación y recogida de carga	65
3.1.1.	Generación de carga	65
3.1.2.	Caracterización del campo eléctrico. Extensión de la región de multiplicación.	67
3.1.3.	Magnitud de la multiplicación de carga	74
3.1.4.	Transporte de carga hacia el ánodo	74
3.2.	Eficiencia geométrica	81
3.2.1.	Métodos para el cálculo del ángulo sólido	83
3.2.2.	Método elegido	89
3.2.3.	Geometría y dimensiones de la pieza utilizada	90
3.3.	Corrección por la probabilidad de interacción con el gas de recuento	96
3.4.	Atenuación en la ventana del detector. Caracterización de su composición y medida del espesor.	99
3.4.1.	Interacción de las partículas α con la materia	100
3.4.2.	Medida del espesor de la ventana utilizada	102
3.4.3.	Incertidumbre en el espesor	106
3.4.4.	Atenuación de la radiación en la ventana	108
3.5.	Absorción en la cámara de helio	112
3.6.	Cálculo de correcciones por dispersión	112
3.7.	Cálculo de la eficiencia intrínseca total y su incertidumbre . . .	117
3.8.	Pruebas de estabilidad	119
4.	Resultados. Aplicación a la medida de espectros de rayos X y a la determinación de tasas de emisión	123
4.1.	Preparación de fuentes	123
4.2.	Medida de espectros de rayos X	128
4.3.	Medida absoluta de la tasa de emisión	134
4.3.1.	Procedimiento experimental	135
4.3.2.	Análisis de incertidumbres	138
4.3.3.	El problema del pico de escape	139
4.3.4.	Medida de la tasa de emisión de una fuente de ^{65}Zn . .	141

4.3.5. Determinación de probabilidades de emisión mediante medidas independientes de la actividad	145
5. Conclusions	149
Bibliografía	163
Índice de figuras	165
Índice de tablas	173
Anexos	175
V. H. Elvira et al., Appl. Radiat. Isot. 160 : 109113, 2020	177
Puesta en marcha del contador proporcional del LNHB-CEA	189

RESUMEN

Durante los últimos años, se ha hecho patente que es necesario mejorar las medidas de rayos X de baja energía de las que se dispone hasta la fecha, en particular las medidas de probabilidades de emisión de algunos radionucleidos y de rendimientos de fluorescencia de algunos elementos. Para que las nuevas medidas sean verdaderamente independientes de cualquier medida previa de probabilidades de emisión, es necesario contar con una técnica capaz de medir de manera absoluta tasas de emisión; es decir, que no requiera ser calibrada mediante la medida de una fuente previamente medida por otra técnica. Esto requiere calcular de manera precisa su eficiencia de detección, lo cual hace de los detectores de ionización gaseosa una solución idónea.

En este contexto, el objetivo fundamental de esta tesis doctoral ha sido el diseño y construcción de un contador proporcional que opere como técnica absoluta para la determinación de tasas de emisión de rayos X de baja energía (entre 2 y 10 keV).

El contador consiste en una cámara cilíndrica llena de Ar/CH_4 (9:1) a $10^5 Pa$, con una cámara adyacente más pequeña, llena de helio a la misma presión, donde se aloja la muestra. Esto permite la medida con un bajo ángulo sólido, definido por la abertura de un diafragma que conecta las dos cámaras.

Los cálculos indicaron que un cilindro de 20 cm de diámetro y 25 cm de longitud son suficientes para mantener la eficiencia de detección por encima del 90% en todo el rango de energías considerado y para garantizar que la mayoría de la carga se crea cerca del centro, evitando así un efecto de pared.

La carga se recoge en un hilo de oro de 15 μm de radio al que se le aplica un voltaje positivo. Las pruebas experimentales indicaron que un voltaje de 1900 V permite una correcta detección de la radiación en el rango energético deseado, minimizando el ruido electrónico. Posteriormente, la modelización del campo eléctrico en el interior del contador mostró que se cumplen las condiciones para una multiplicación de carga reproducible.

Se ha diseñado también un sistema de control de gases que permite el vaciado del aire de las cámaras y su llenado simultáneo con sus respectivos gases, y que permite la operación del contador en flujo continuo de argón-metano, lo cual permite llevar a cabo medidas largas sin que el gas se vea contaminado.

Se ha diseñado un sistema de posicionamiento de la muestra que garantiza la reproducibilidad del ángulo sólido de medida. Se han medido las dimensiones en el Área de Longitud del Centro Español de Metrología, lo que, junto con la distribución de actividad de las muestras obtenida mediante una autorradiografía, permite el cálculo preciso del ángulo sólido, con una incertidumbre en torno

al 0,6%.

Se ha fabricado una lámina de óxido de grafeno reducido para su empleo como ventana de separación entre ambas cámaras, y se ha comprobado que posee ventajas mecánicas respecto a las de berilio, ampliamente utilizadas. Mediante XPS y ATR-FTIR se ha determinado su composición y mediante espectrometría alfa se ha medido su espesor, para calcular así la atenuación de rayos X .

Mediante simulaciones de Monte Carlo se han calculado la corrección por dispersión y la debida a la probabilidad de interacción con el gas del contador, que, junto con la atenuación en la ventana (y en el helio, aunque es despreciable en gran parte del rango), permiten calcular la eficiencia intrínseca de detección.

Una vez construido el contador proporcional, se han medido los espectros de emisión de rayos X de diversos radionucleidos entre 3 y 9 keV (^{41}Ca , ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{57}Co , ^{65}Zn), obteniendo una buena calidad espectral y la resolución esperada. También se han elaborado fuentes de fluorescencia mediante la fabricación por electrodeposición de una fuente de excitación de ^{55}Fe y el empleo de una serie de blancos de fluorescencia, que permiten medir rayos X de energías no disponibles con radionucleidos. De esta manera se ha podido medir el espectro de fluorescencia del cloro, por debajo de los 3 keV .

Para comprobar el funcionamiento del contador como técnica absoluta, se midió la tasa de emisión de varias fuentes de ^{55}Fe y se calculó su actividad empleando las probabilidades de emisión de la bibliografía, para comparar el resultado con el valor obtenido mediante otra técnica absoluta del laboratorio. Se ha encontrado que ambas técnicas arrojan el mismo resultado dentro de la incertidumbre experimental.

Se aborda también un tema crítico en la determinación absoluta de tasas de emisión: la cuantificación del área del pico de escape, algo que no es posible realizar experimentalmente para todos los radionucleidos. Por ello, se ha calculado mediante simulaciones de Monte Carlo su contribución al área total del espectro para diferentes energías. Puesto que para el ^{55}Fe sí es posible cuantificar experimentalmente esta contribución, se ha comparado el valor experimental con el valor calculado. Ambos resultados están en perfecta consonancia, un resultado que confirma que es posible determinar correctamente el área total del espectro cuantificando exclusivamente el área del pico principal y aplicando el correspondiente factor de corrección calculado por Monte Carlo. La tasa de emisión de una fuente de ^{65}Zn ha sido determinada mediante el empleo de este factor de corrección, y de nuevo el resultado obtenido está en consonancia con las medidas de actividad efectuadas por otras técnicas.

Por último, se ha llevado a cabo una medida preliminar de la probabilidad de emisión X_k del ^{65}Zn mediante coincidencias $X_k-\gamma$ en combinación con un detector de $NaI(Tl)$. El resultado obtenido abre la puerta al empleo de este contador proporcional para la determinación de probabilidades de emisión mediante este tipo de medidas, que no requieren el conocimiento de la actividad de la fuente.

ABSTRACT

Over the past years, it has become clear that it is necessary to improve measurement of low-energy X -rays, especially emission probabilities of some radionuclides and fluorescence yields of some elements. In order for new measurements to be truly independent of any previous measurement of emission probabilities, it is necessary to use a technique that is capable of absolute measurements of emission rates; that is to say, that does not need to be calibrated through the measurement of a source that has been previously calibrated by another technique. This requires the accurate calculation of its detection efficiency, which makes gas-filled detectors a very suitable choice.

In this context, the main goal of this doctoral thesis has been the design and construction of a proportional counter that operates as an absolute technique for the determination of low-energy X -ray emission rates (between 2 and 10 keV).

The counter consists of a cylindrical chamber filled with Ar/CH_4 (9:1) at $10^5 Pa$ and a smaller chamber, adjacent to the first one, filled with helium at the same pressure, where the source is placed. This allows the measurement under a low solid angle, defined by the aperture of a diaphragm that connects both chambers.

Calculations showed that a 20- cm -diameter and 25- cm -long cylinder suffices to keep the detection efficiency above 90% over the whole energy range considered, and to guarantee that the majority of the charge is created close to the center, thus avoiding a “wall effect”.

The charge is collected in a 15- μm -radius golden wire to which a positive voltage is applied. Experimental tests showed that a 1900- V tension allows an adequate detection of the radiation in the whole energy range, while minimizing the electronic noise. Afterwards, the modeling of the electric field inside the counter showed that the criteria for a reproducible charge multiplication are met.

A gas-control system has also been designed to create vacuum in both chambers and fill them with their respective gases simultaneously, and which also allows the operation of the counter under a continuous flow of argon-methane, which enables long measurements without the gas being polluted.

A source positioning system has been design that guarantees the reproducibility of the measurement solid angle. Its dimensions have been measured in the Division of Length in the Spanish Institute for Metrology, which, along with the activity distribution provided by a self-radiography, allows an accurate determination of the solid angle, with an uncertainty close to 0.6%.

A foil of reduced graphene oxide has been synthesized, which has been employed as a window to separate both chambers. It was found to have important mechanical advantages over beryllium, which is the most widely used material. Its composition was determined through XPS and ATR-FTIR and its mass thickness was measured by means of alpha spectrometry, in order to calculate its attenuation of X -rays.

Corrections for scattering and for the probability of interaction with the gas were calculated by means of Monte Carlo simulations. These corrections, along with the attenuation in the window (and in the helium, although it is negligible over the most part of the energy range) allow the determination of the intrinsic detection efficiency.

Once the counter was constructed, it was used to measure the emission spectra of several radionuclides between 3 and 9 keV (^{41}Ca , ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{57}Co , ^{65}Zn), and a good spectral quality and resolution were obtained. Fluorescence sources were tailored by combining the preparation of an ^{55}Fe excitation source by electrodeposition and the use of different fluorescence targets, which allow the measurement of X -rays whose energy is not accessible exclusively with radionuclides sources. Thanks to this system, an X -ray spectrum below 3 keV could be measured: the fluorescence spectrum of chlorine.

In order to test the performance of the counter as an absolute technique, the emission rate of several ^{55}Fe sources were measured, and their activity was calculated by applying the emission probabilities from the bibliography, to compare the result with the value obtained by a different well-established absolute technique in the laboratory. It has been found that both techniques give the same result within the experimental uncertainty.

A critical issue for the absolute determination of emission rates is addressed: the quantification of the escape-peak area, which is not possible to carry out for all radionuclides in a reliable way. For this reason, its contribution to the total area was calculated by Monte Carlo simulations for different energies. Since it is possible to quantify this contribution experimentally for ^{55}Fe , the result obtained by Monte Carlo was compared to the experimental value. Both results were found to be in good agreement, which confirms that it is possible to determine the total area of a spectrum by exclusively measuring the main-peak area and applying a correction factor for escape calculated by Monte Carlo. The emission rate of a ^{65}Zn source has been determined by applying this correction factor, and the value obtained is in good agreement with the activity measurements carried out by other techniques.

To conclude, a preliminary measurement of ^{65}Zn X_k -emission probability has been carried out by X_k - γ coincidence in combination with a $NaI(Tl)$ detector. The result obtained opens the door to the employment of this counter for the determination of emission probabilities by this kind of measurements, which are fully independent of any previous knowledge of the activity of the source.

Capítulo 1

Introduction

The accurate measurement of ionizing radiations is of paramount importance in widely diverse fields such as nuclear medicine (both radiodiagnosis and radiotherapy) or environmental radiological protection, in numerous industrial processes and of course in basic scientific research. It has become clear over the past years that it is necessary to improve measurements of low-energy X -rays [1], which in some cases present large uncertainties or significant discrepancies between different measurements or with calculated values. Further progress in some areas of science and technology, and the development of some medical treatments or the implementation of some safety protocols depend to a certain extent on the improvement of the determination of some low-energy X -ray emission probabilities.

This deficiency is partly due to the fact that they have not always been considered so crucial in the past, but also because of the specific difficulties involved in their measurement. In particular, the accurate measurement of X -rays is hindered by self-attenuation in the source and fluorescence, absorption or scattering events in the detector or in the source holder. Additionally, the mathematical processing of the peaks in spectra is to some extent hampered by other effects, such as their distortion from the ideal shape arising from the scattering of the X -rays before reaching the active part of the detector, or the interference originated by the scattering of background radiation or γ -rays emitted by the source itself [2–5].

For new measurements to be independent from those carried out in the past, it is necessary to employ absolute techniques, that is to say, techniques that do not need to be calibrated through the measurement of a sample that has been previously measured with another existing technique. This requires to characterize the efficiency of the detection systems in an accurate way without relying in any measurement of the same magnitude. As detailed in following sections, gas-filled detectors allow an accurate characterization of the efficiency, and low-solid-angle counting minimizes the uncertainty of some correction factors involved in it.

This work has been carried out in the Spanish Laboratory of Ionizing Radiation Metrology (LMRI). Metrology is the area of science responsible for the standardization of physical magnitudes and their units and guaranteeing the traceability of measurements, that is to say, guaranteeing that all instruments in the world, provided that they are correctly calibrated and traced, will yield the same output (within a given uncertainty) when measuring the same quantity. Coordinated by the “Bureau International de Poids et Mesures” (BIPM), the metrology institute of each country coordinates the different national laboratories responsible for each physical magnitude (or set of related magnitudes). In particular, the LMRI, is the Spanish National Laboratory responsible for the development, maintenance and dissemination of national standards for physical units derived from radionuclides activity. It is a primary laboratory, which means that it does not need to be traced to any other laboratory, since it possesses primary standards, which do not need to be calibrated and are only inter-compared with other primary laboratories. Secondary standard, however, need to be ultimately traced to a primary standard in order to be valid.

The main purpose of this thesis has been the design and construction of a low-solid-angle proportional counter for the absolute measurement of low-energy X -ray emission rates between 2 and 10 keV . It will allow, in the foreseeable future, the absolute calibration of radioactive sources in terms of emission rate, and in combination with other primary techniques in the laboratory and with semiconductor detectors, the measurement of X -ray emission rates of radionuclides of interest.

Firstly, the designing process and a full description of the counter will be presented in chapter 2, and the characterization that leads to the calculation of its efficiency will be detailed in chapter 3. In chapter 4, spectra of some radionuclides measured with the proportional counter will be shown, and its performance as an absolute technique will be assessed by measuring the emission rate of several ^{55}Fe sources and, taking the emission probabilities from the literature, inferring the activity concentration of the parent solution and comparing the result with the value obtained by another primary technique of the laboratory.

The main features of the instrument have been presented in [6], included as an appendix in this text, and full details on its design, construction and characterization are given in [7].

1.1. Ionizing radiation

Ionizing radiation is the term used to refer to a flux of particles or photons whose energy is sufficiently high to ionize the matter through which they pass. It comprises heavy charged particles (namely alpha particles and fission fragments), fast electrons, neutrons and electromagnetic radiation (X - and γ -rays). It is the last of these types of radiation that this work is focused on.

The electromagnetic radiation can be originated in several process:

- Nuclear de-excitation processes. When a nuclear reaction or a radioactive disintegration takes places, the product can be formed in the nuclear ground state or in an excited state. In the latter case, the relaxation process releases energy that can be spend in ejecting an electron from the atom (in a process called internal conversion) or can be emitted in the form of electromagnetic radiation. This electronic radiation is called γ radiation, and it corresponds to the upper range in the electromagnetic spectrum (from tens of kiloelectron-volts to several megaelectron-volts).
- Electronic de-excitation processes. When a vacancy is created in an inner shell of an atom, it is filled with an electron that was initially occupying an outer shell. This relaxation process releases a certain amount of energy that can be employed in ejecting an electron from the atom (called Auger electron), or can be released in the form of electromagnetic radiation. The radiation emitted in the electronic relaxation process is called X -radiation, and its energy range can oscillate from some tenths to some hundreds of kiloelectron-volts, which is (usually) lower that that of γ -rays (although there are some nuclear transitions of relatively low energy and electronic transitions beyond 100 keV). The emission spectrum is characteristic of each element, since it depends on the energy of its electronic orbitals. The vacancy that gives rise to this relaxation process can be caused by a nuclear disintegration via electron capture, by the ejection of an internal conversion electron or by an external source of excitation (a process called fluorescence).
- Annihilation of electron-positron pairs. When a positron and an electron interact, they annihilate each other and give rise to two γ -rays of 511 MeV that are emitted in opposite directions.
- Acceleration of a charged particle. According to classical electromagnetism, whenever any charged particle is accelerated, it emits electromagnetic radiation in a continuum spectrum whose upper limit is the energy of the particle itself. This process takes place when a charge particle emitted in a nuclear disintegration interacts with the medium and progressively loses its energy, in a process called Bremsstrahlung (braking radiation). This is the basis of X -ray tubes, where a beam of electrons is accelerated by an electric field towards a material in order to produce this radiation. It is also the working principle of synchrotron radiation, in which electrons are accelerated in a circular circuit and emit radiation due to centripetal acceleration.

This work is focused on the measurement of characteristic X -rays, either provoked by a nuclear disintegration or induced by X -rays emitted by an external radioactive source.

Not all nuclear disintegrations imply the emission of a photon of a given energy, since there are several processes that can compete, the vacancy can be created in different shells and an electronic de-excitation does not always follow the same succession of transitions. The number of X -photons emitted in a given transition per nuclear disintegration is called “emission probability”, and it is characteristic of each radionuclide. The number of photons emitted by a radioactive source per unit time is called “emission rate”, and it is equal to the number of disintegrations per unit time (activity) multiplied by the emission probability.

1.2. Interaction of photons with matter

Unlike charged particles, which lose their energy in a continuous way through electrostatic interactions with the material through which they move, photons transfer all their energy, or a significant part of it, in a single interaction or a series of discrete interactions. The main mechanisms of interaction of photons with matter are photoelectric absorption, inelastic scattering and production of electron-positron pairs.

1.2.1. Types of interactions

Photoelectric absorption

In photoelectric absorption, the photon transfers all its energy to one of the electrons of the atom with which it interacts. As a consequence of that interaction, the incident photon disappears and the electron is ejected from the atom with an energy equal to the difference between the energy of the incident photon and the binding energy of the orbital occupied by the electron (E_b). When ejected from the atom, the electron leaves a vacancy in its orbital, which is immediately filled through the rearrangement of the electrons of the atomic shell. The energy released in this relaxation process can be emitted as X -rays or provoke the ejection of an electron with a lower binding energy, in a process known as emission of Auger electrons (figure 1.1).

The probability (τ) of a photon of energy E undergoing photoelectric absorption in an atom is roughly described by the expression:

$$\tau \cong k \frac{Z^n}{E^{3.5}} \quad (1.1)$$

where k is a proportionality constant, Z is the atomic number and n is an exponent that may vary from 4 to 5 [8].

The probability of photoelectric interaction decreases as the energy of the radiation increases, and it is the main contribution for low-energy photons.

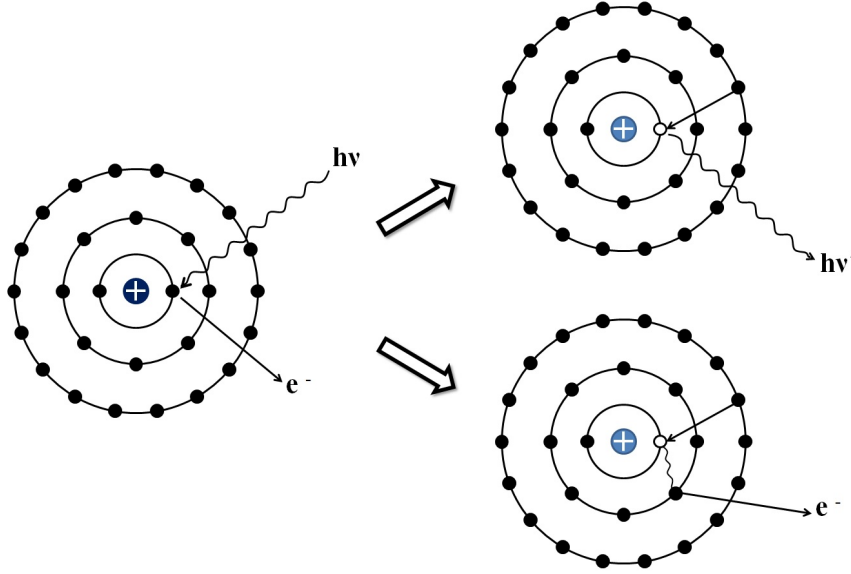


Figura 1.1: Scheme of photoelectric absorption (left) and the two possible ways for subsequent electronic relaxation (right): photon emission (top) or Auger electron emission (bottom).

The dependence of the interaction probability on the energy of the radiation and with the atomic number of the material can be observed in Fig. 1.2. It can also be remarked that the decrease of the probability with the energy is not monotonic: it shows certain discontinuities where the probability experiences a steep rise. For low values of the energy, only the outermost electrons can be ejected from the atom. However, as the energy increases, it eventually reaches a certain value that suffices to eject another set of electrons, so another contribution is added to the overall probability of interaction. The last rise in the function corresponds to the energy required to eject the innermost electron from the atom. As it can be seen in the graphic, helium does not show any discontinuity, since all its electrons are in the same layer.

Inelastic scattering or Compton scattering

The photon interacts with an electron and undergoes a deviation from its original trajectory (figure 1.3). As a consequence of that interaction, the photon transfers a fraction of its energy to the electron, which is ejected from the atom with an energy equal to the difference between the energy transferred and its binding energy. The energy of the scattered photon ($h\nu'$) is a function of the scattering angle (θ) [10]:

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + \frac{h\nu}{m_0c^2}(1 - \cos\theta)} \quad (1.2)$$

The energy of the electron ejected (called recoil electron) is then

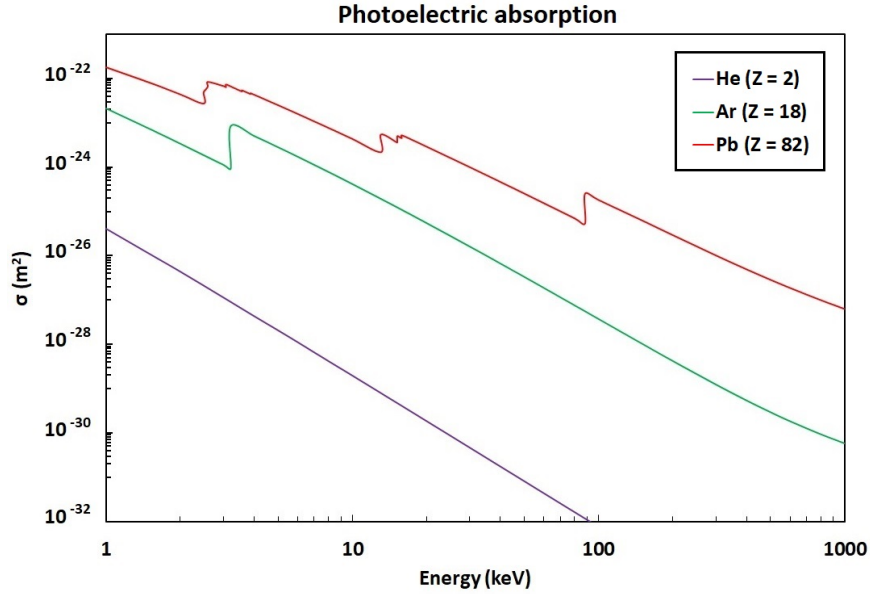


Figure 1.2: Dependence of the photoelectric absorption probability on the energy for different elements. Data from [9].

$$E_{e^-} = h\nu - h\nu' = h\nu \left(\frac{\left(\frac{h\nu}{m_0c^2}\right) (1 - \cos\theta)}{1 + \left(\frac{h\nu}{m_0c^2}\right) (1 - \cos\theta)} \right) \quad (1.3)$$

Since the scattering angle can have any value from 0 to π , the energy of the scattered electrons shows a continuous spectrum. When the incident photon experiences no deviation ($\theta = 0$), no energy transfer takes place, whereas the maximum energy transfer occurs when $\theta = \pi$ (backscattering).

The probability of a photon undergoing Compton scattering increases linearly with the atomic number, since it depends on the number of electrons that can cause it. At the same time, it increases with the energy of the radia-

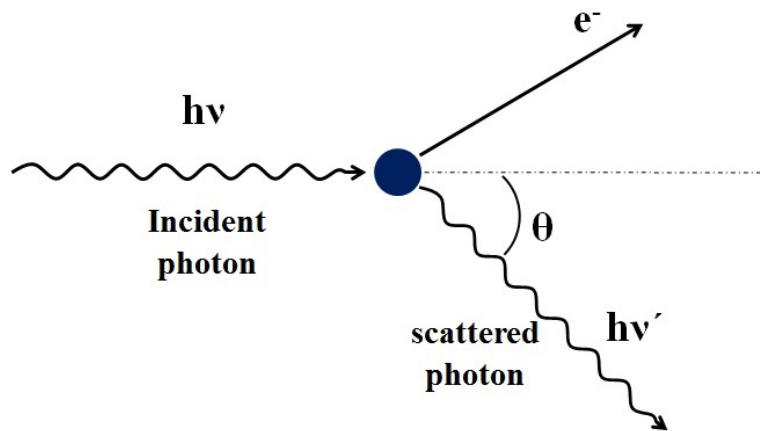


Figure 1.3: Scheme of inelastic scattering.

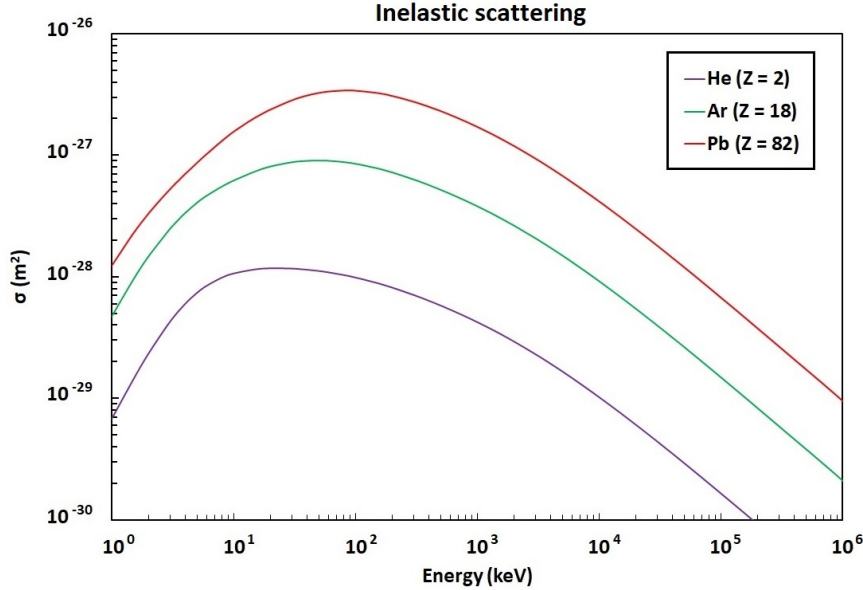


Figure 1.4: Dependence of the probability of inelastic scattering on the energy for different elements. Data from [9].

tion up to a certain value (typically a few tens of kiloelectron-volt) and then decreases monotonically beyond that point (Fig. 1.4). This decrease is less steep than that of photoelectric absorption, so above a certain value it becomes the predominant interaction.

Pair production

If the energy of the photon is higher than twice the rest energy of an electron (1022 keV), there is a non-zero probability that the photon will disappear and give rise to an electron-positron pair, which are emitted in opposite directions. This probability increases with the energy, very steeply at first, so it becomes the main interaction for high-energy γ -radiation, and it reaches an asymptote at high energies (Fig. 1.5). As is the case of the other kinds of interaction, the probability of pair production increases with the atomic number of the material. Even though there is no analytical expression that describes this dependence, it can be said that it depends roughly upon the square of Z .

When the photon disappears and gives rise to an electron and a positron, the excess energy over the amount needed for the pair production ($h\nu - 1022 \text{ keV}$) is transferred equally to both particles as kinetic energy. They lose their energy through electrostatic interaction with the material, and, when the positron has been completely stopped, it is annihilated with an electron, and two photons of 511 keV are emitted in opposite directions.

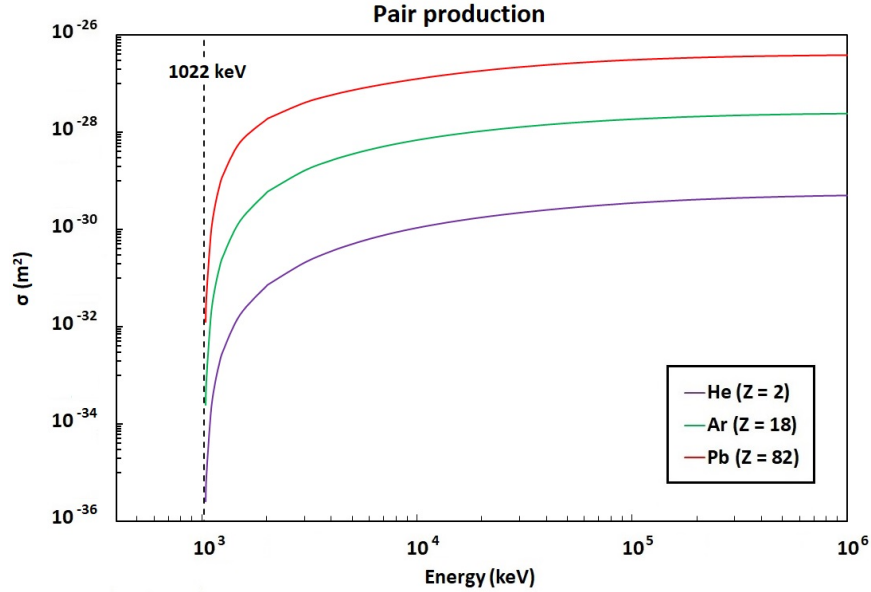


Figure 1.5: Dependence of the probability of pair production on the energy for different elements. Data from [9].

The contribution of these three interactions to the overall interaction probability is summarized in Fig. 1.6 (as an example, only data for one element, argon, are shown). For low values of the energy (most certainly for the interval considered in this work), photoelectric absorption is the predominant contribution; Compton scattering is negligible compared to it, and pair production does not occur. As the energy increases, the probability of photoelectric absorption diminishes, and Compton scattering remains as the main contribution while pair production is not possible or its probability is still negligible. However, for very high energies, pair production is the only significant interaction γ -rays experience, since its probability stabilizes towards an asymptote whereas the other two decrease continuously.

1.2.2. Magnitudes for expressing the probability of interaction

The magnitude that characterizes the probability of interaction on an atomic scale is the interaction cross-section (σ). It is defined as the probability of interaction with one atom per unit fluence, that is to say, the probability of an atom undergoing a given interaction when it is exposed to a radiation of one photon per unit area.

Since the probability and the number of photons are dimensionless quantities, the cross-section has dimensions of area, and therefore it can be visualized as the effective area that an atom represents for the incident photon. Its units in the International System are m^2 , but more convenient sub-multiples are often used, such as fm^2 . It is also customary in nuclear physics to express it in barns

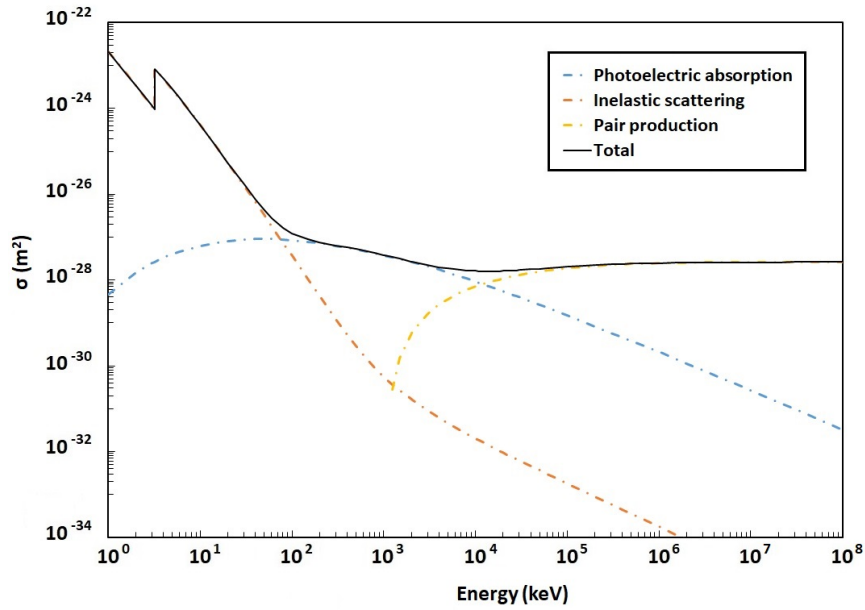


Figure 1.6: Contributions to the overall probability of interaction of a photon with matter. Example of Ar. Data from [9].

(b), where $1 \text{ b} = 10^{-28} \text{ m}^2$.

However, in order to characterize the probability of interaction of a beam of photons with a mass of material, other magnitudes are of use.

If n is the number of atoms per unit volume, then ndx is the number of atoms contained in a layer of unit area and infinitesimal thickness. Therefore, the probability of a photon interacting within that layer is σndx . If a beam is headed for that layer in the perpendicular direction, the fraction of photons that pass through the layer per unit time without suffering any interaction (I) decreases as

$$\frac{dI}{I} = -\sigma n dx \quad (1.4)$$

Therefore, by integrating this expression over the whole thickness of the material (x), we obtain

$$I = I_0 e^{-\sigma nx} \quad (1.5)$$

where I_0 is the intensity of the incident radiation.

The number of atoms per unit volume can be expressed in terms of volumetric density (ρ) as

$$n = \frac{\rho N_A}{M_a} \quad (1.6)$$

where N_A is Avogadro's number and M_a is the atomic mass of the element. Therefore, equation 1.5 is equivalent to

$$I = I_0 e^{-\frac{\sigma \rho N_A}{M_a} x} \quad (1.7)$$

This can be expressed in a compact notation as

$$I = I_0 e^{-\mu x} \quad (1.8)$$

where

$$\mu \equiv \frac{\sigma \rho N_A}{M_a}$$

Parameter μ , which has dimensions of inverse length, is called “linear attenuation coefficient”, and it is the main parameter that characterizes the interaction of photons with a material on a macroscopic scale.

Given that N_A is a universal constant, M_a is intrinsic to each element and σ is intrinsic to each element for a given radiation, ρ is the only magnitude involved in the definition of μ that depends on the physical and chemical state of the matter. For that reason, it is sometimes useful to define a magnitude that depends only on intrinsic properties, that is to say, that does not depend on the density of the material:

$$\mu_m \equiv \frac{\mu}{\rho} = \frac{\sigma N_A}{M_a} \quad (1.9)$$

This magnitude is called “mass attenuation coefficient”, and it has dimensions of mass over square length. The transmitted radiation can then be calculated as

$$I = I_0 e^{-\mu_m \rho x} \quad (1.10)$$

It can be noticed that the product ρx is equivalent to the surface density of the material (ρ_A). This means that the density and the thickness do not need to be known independently; it suffices to know the surface density of the material in order to compute the probability of interaction:

$$I = I_0 e^{-\mu_m \rho_A} \quad (1.11)$$

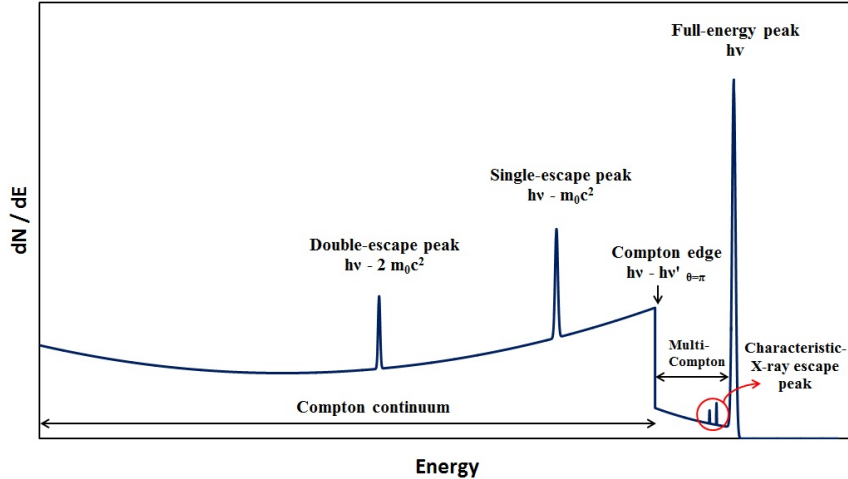


Figure 1.7: Scheme of the gamma spectrum recorded when a beam of mono-energetic photons with energy $h\nu$ reaches the detector.

1.2.3. Response of the detector to X - or γ -radiation

When a photon reaches the detector, the energy recorded is not always that of the incident photon, but the energy deposited as a consequence of all the interactions that can take place [11, 12]. Fig. 1.7 depicts the most general case of a hypothetical spectrum for a mono-energetic beam of photons.

If the incident photon interacts through photoelectric absorption, the electron ejected acquires all the energy of the photon except the bonding energy. Due to the short mean free path of electrons in matter, nearly all electrons deposit all their energy within the detector. If the process of electronic relaxation of the cation causes the emission of Auger electrons, or if characteristic X -rays are emitted but they are reabsorbed within the detector, all the energy of the incident radiation is ultimately deposited, giving rise to the “full-energy peak” in the spectrum. If the characteristic X -rays emitted in the electronic relaxation do not interact with the detector, the amount of energy deposited is equal to the difference between the energy of the incident photon and that of the characteristic X -rays. This process is responsible for the “escape peak”.

For high energies, however, the difference between the position of the full-energy peak and the escape-peak is comparatively small. Furthermore, in solid-state detectors, the probability of characteristic X -rays escaping is very low, so the counting rate of the escape peak is negligible. However, in gas-filled detectors it can be significant, since the absorption coefficient in a gas is much lower than in a solid. Such is the case of the proportional counter developed in this work, where the escape-peak area will play an important role in the determination of emission rates.

If the incident photon interacts in the detector through Compton scattering

and the scattered photon is absorbed within the detector, the event is counted in the full-energy peak; however, if the scattered photon escapes from the detector without interacting, the event is recorded in the spectrum with an energy equal to the difference between the incident and the scattered photons ($h\nu - h\nu'$), that is to say with the energy of the electron generated (equation 1.3). Since the energy of the scattered radiation is a continuous function of the scattering angle, and the angle can take any value between 0 and π , Compton scattering give rise to a continuous region in the spectrum, known as “Compton continuum” (see scheme in figure 1.7). The energy that the electron acquires is maximum when $\theta = \pi$:

$$E_{e^-,max} = h\nu - h\nu'_{\theta=\pi} = h\nu \left(\frac{\left(\frac{2h\nu}{m_0c^2}\right)}{1 + \left(\frac{2h\nu}{m_0c^2}\right)} \right) \quad (1.12)$$

The position of the spectrum that corresponds to this energy is known as “Compton edge”, as it is the higher energy that a photon can deposit if it interacts through a single event of Compton scattering

Nevertheless, the photon scattered from the first interaction can undergo successive events of Compton scattering, thus depositing a greater amount of energy than that given by equation 1.12, and it can be even finally absorbed by photoelectric interaction. Photons undergoing such a series of events will be counted in the region of the spectrum called “multi-Compton”, which reaches as far as the full-energy peak.

When the energy of the incident photon is greater than 1022 keV , an electron-positron pair can be produced. Both particles are fully stopped within the detector, so they deposit all their kinetic energy. Once the positron has lost all its kinetic energy, it is immediately annihilated by interaction with an electron from the material, producing two photons of 511 keV emitted in opposite directions. If both annihilation photons ultimately deposit all their energy within the detector, the incident photon contributes to the counting rate of the full-energy peak. However, one or both of them can escape without depositing any energy, thus giving rise to the simple-escape and double escape peaks, 511 and 1022 keV below the full energy peak respectively.

This work is focused on the measurement of low-energy X -rays, so the spectrum is actually much simpler than the general case depicted in Fig. 1.7: pair production cannot take place, and Compton and multi-Compton continuum are negligible, so the spectrum comes down to the full-energy peak and the escape peak. Nevertheless, for those radionuclides that emit photons of higher energy along with the X -rays measured, that high-energy radiation can undergo inelastic scattering in the solid parts of the instrument and leave a trace in the measured spectrum that contributes to increase the background level. In addition, if those two photons are emitted simultaneously (within the detector’s time re-

solution), there is a non-zero probability that they will be detected as one single event, and in that case the energy registered in the spectrum will be the sum of the energy deposited by each of them (coincidence-summing), thus reducing the measured count rate of the full-energy peak.

1.3. Detection of X - and γ -rays

The radiation detection is based on the measurement of some effect caused by its interaction with the material that makes up the detector. This measurable effect can be the charge creation due to the ionization of molecules in the detector, the creation of electron-hole pairs in a semiconductor material, the emission of UV-visible light emitted in relaxation processes in the solvent, or even a temperature rise in the material. Detectors can be thus classified according to the physical principle on which they are based. The most widely used types of detectors for ionizing radiation are described below.

1.3.1. Types of photon detectors

Gas-filled detectors

In this kind of detectors, the interaction of the incident photon with a molecule of gas provokes its ionization, thus generating an ion-electron pair. The ejected electron has enough energy to ionize other molecules in its path (Fig. 1.8), so the amount of electrons generated depends on the energy of the incident photon. Under the application of a potential difference, electrons migrate towards the anode and cations drift towards the cathode. The collection of the electrons in the anode generates a pulse of voltage, which is processed by the electronic system and registered as a count.

The fraction of electrons that reach the anode (i.e. the amplitude of the pulse) increases with the applied voltage, so gas-filled detectors can be operated in different regimes depending on the voltage of operation [11] (Fig. 1.9).

In the absence of voltage, electrons do not experience any net drift, so no pulse is collected in the anode. When a voltage is applied, the drift velocity depends on the magnitude of this voltage. If it is low, electrons move slowly, so most of them will recombine with cations before they can reach the anode. (They may be incorporated to a neutral molecule instead of recombining with a cation, but the resulting anion will move even more slowly and will be more likely to undergo recombination). As the applied voltage is raised, the drift velocity increases, and therefore a greater fraction of the electrons will escape to recombination and reach the anode. In this region, the amplitude of the pulse is a continuously increasing function of the applied voltage. There is a certain value above which all the electrons created are collected, a situation known as “ion saturation”.

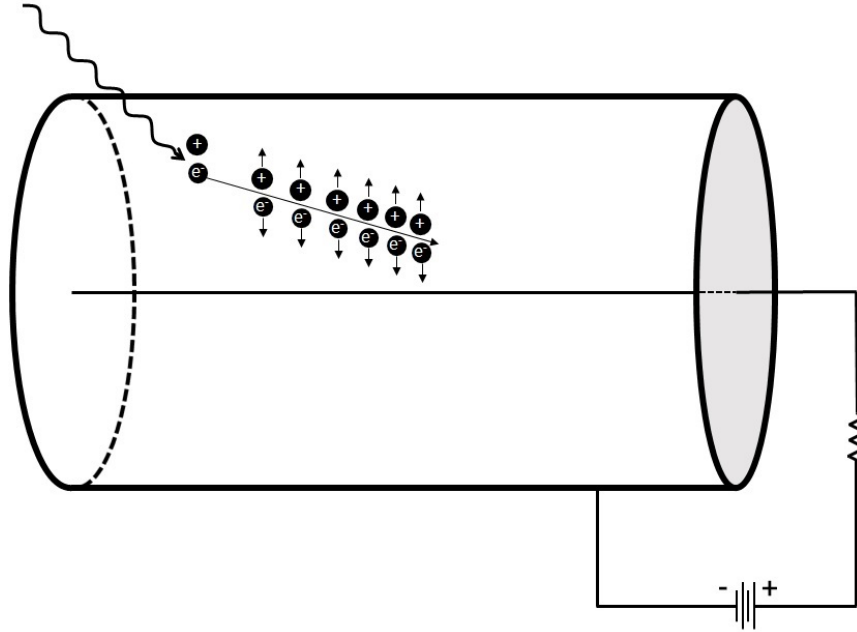


Figura 1.8: Working principle of a gas-filled detector.

Beyond a certain voltage, electrons are sufficiently accelerated to provoke further ionization on their way to the anode. Under this conditions, a cascade of ionization occurs, a phenomenon known as “Townsend avalanche” (see [13]), in which the charge collected is actually multiplied in relation to that generated in the first place. Within a certain interval of the applied voltage, the pulse amplitude is proportional to the energy of the incident radiation and to the voltage itself. This region is called “proportional region”, and gas-filled detectors operating within it are known as proportional counters.

However, if the voltage is raised even further, the number of electron-cation pairs generated is so big that the presence of cations, whose drift velocity is much slower than that of electrons, introduces a significant distortion of the electric field. The increase of the pulse amplitude with the applied voltage is then no longer linear, and the detector is said to be operating in the “limited proportionality region”. For even higher values of the voltage, the electric field inside the detector is fully dominated by the space distribution of cations, to such an extent that the effective electric field can turn out to be insufficient to create further charge multiplication. At this point, the process is self-limiting, and the charge multiplication ends when a certain amount of cations have been formed, regardless of the initial number of ion-electron pairs that were created by interaction with the photoelectron. The pulse amplitude does not depend then on the energy of the incident photon, but only on the applied voltage. In consequence, this regime of operation does not allow the use of the detector for spectroscopy, since it can not discriminate between photons or particles of different energy. It can only be used to count the overall number of photons, and this is the principle of operation of Geiger-Müller counters.

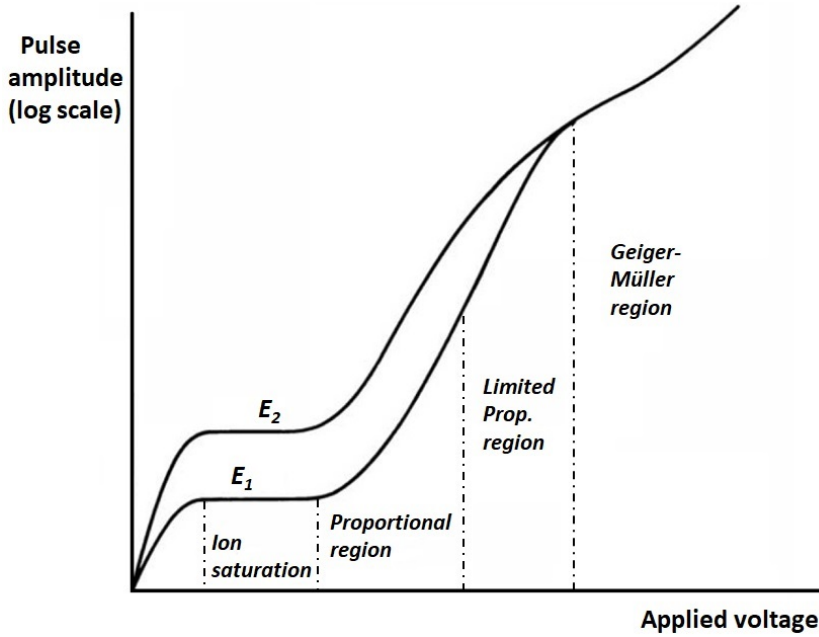


Figura 1.9: Regions of operation of gas-filled detectors. Response to radiation of two different energies ($E_2 > E_1$). Figure taken from [11] and modified.

This work is focused on the design and construction of a proportional counter, so an adequate voltage will be needed to ensure a reproducible charge multiplication. The behavior of the electric field inside the counter will be thoroughly studied and described in section 3.1.2.

Semiconductor detectors

When, instead of interacting with a gas molecule, the photon interacts with a semiconductor material, an electron from the valence band is promoted to the conduction band. The electron is weakly bound to the crystal lattice, and leaves a hole in the valence band. When a voltage is applied, electrons migrate towards the anode and holes migrate towards the cathode. Semiconductor detectors can be therefore considered analogous to gas-filled detectors in which the charge carriers are electron-hole instead of ion-electron pairs. Since the average energy required to produce an electron-hole pair is much smaller than for an ion-electron pair, the number of charge carriers generated in a semiconductor detector is greater, which allows a better energy resolution (see section on counting statistics below). At the same time, their detection efficiency is significantly higher, as the density of a solid is of the order of 10^3 times that of a gas, making the probability of interaction higher.

Scintillation detectors

In scintillating detectors the carriers are not charge elements, but photons of the UV-visible spectrum. The interaction of radiation with the scintillating ma-

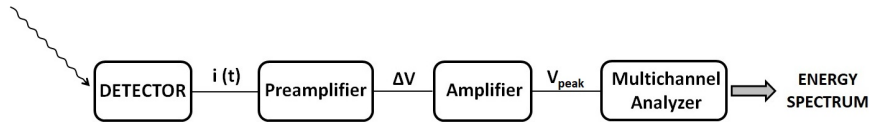


Figure 1.10: Electronic chain to turn the current pulse output of the detector into a measurable signal.

terial leads to the excitation of molecules, whose relaxation causes the emission of electromagnetic radiation that can be detected with photomultiplier tubes. The conversion into light is a very inefficient process, so the number of information carriers is much smaller than in semiconductor detectors, which implies that their energy resolution is worse. But, on the other hand, the probability of interaction is much higher, which leads to a better detection efficiency.

1.3.2. Electronics of radiation detection

The natural output of a detector in response to a photon or a charged particle is a transient current as a consequence of the collection of the charge generated. However, this current is usually too weak to be measured directly. In proportional counters, for instance, even after the charge multiplication, the total number of electrons is not much higher than a few tens of thousands per kiloelectron-volt of the incident photon, which represents a charge of a few femtocoulombs. Since the collection time is ordinarily a few milliseconds, the current output would be in the order of picoamperes. For that reason, a processing chain (scheme in Fig. 1.10) is coupled to the detector in order to transform this weak current output into a measurable signal.

First, a preamplifier transforms the current pulse into some change in the voltage that is uniquely related to the total amount of charge, Q . If the capacitance of the detector can be guaranteed to be constant, a voltage-sensitive preamplifier can be used, which transforms the current pulse into a voltage pulse (Fig. 1.11) whose amplitude is equal to the charge collected divided by the total capacitance of the system, C , provided that the time constant of the circuit (RC) is much higher than the charge collection time (t_c). In this case, the collected charge is accumulated in the capacitor before it barely begins to discharge. The voltage measured rises until the collection of charge is concluded, and then it falls smoothly according to the discharge process of a capacitor. The maximum voltage in this kind of circuits is Q/C , so if the capacitance is a fixed value, the pulse amplitude is proportional to the amount of charge generated, and ultimately to the energy of the incident particle that triggered the process.

However, if it cannot be guaranteed that the capacitance will remain constant, a charge-sensitive preamplifier can be used, which transforms the current pulse into a voltage step, ΔV , which is proportional to Q in any circumstances (Fig. 1.12). Such is the case of semiconductor diode detectors, whose capacitance depends on the operating parameters, so a charge-sensitive preamplifier is the

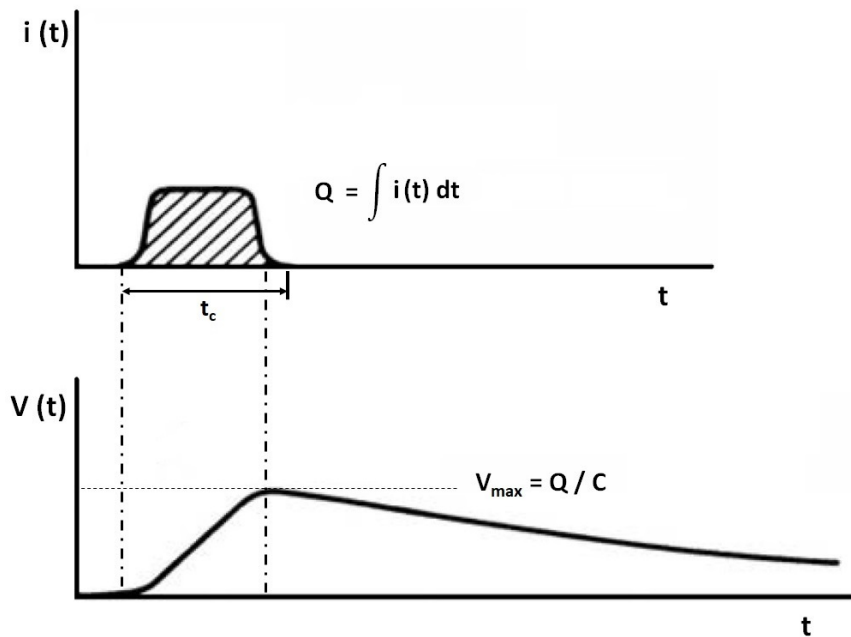


Figure 1.11: Current output from a hypothetical detector where current flows for a time essentially equal to the charge collection time t_c (top). Voltage pulse output from a voltage-sensitive preamplifier whose time constant $\tau \equiv RC$ is very large compared to t_c (bottom). Figure taken from [11] and modified.

only way to guarantee the proportionality between the energy of the incident particle or photon and the voltage rise. In almost all the rest of detectors, such as proportional counters, the capacitance is fixed, since it only depends on the size and shape of the detector, so a voltage-sensitive preamplifier would be perfectly suitable.

The output of the preamplifier is not suitable yet to be the final signal that conveys the information about the energy of the incident photon, not only because it is too weak to be accurately measured, but also because the voltage drop after the sudden rise is too slow, so the height of a pulse can be distorted because it is formed on the tail of the previous one, a phenomenon called pile-up. For that reason, the signal has to be processed by an amplifier, which makes the pulses both more intense (a few volts) and shorter, and additionally removes some of its noise. To this end, in a first step a differentiator or high-pass filter passes the steep rise of the pulse but then it makes it drop to the baseline (Fig. 1.13) in order to be able to process the next pulse. In a second step, the signal passes through an integrator or high-pass filter in order to improve its signal-to-noise ratio and change its shape to turn it into a pulse which is more suitable for further processing. The rise of the shaped pulse is governed by the time constant of the differentiator and the drop by that of the integrator, but they are usually set equal so that the resulting pulse is symmetrical and described

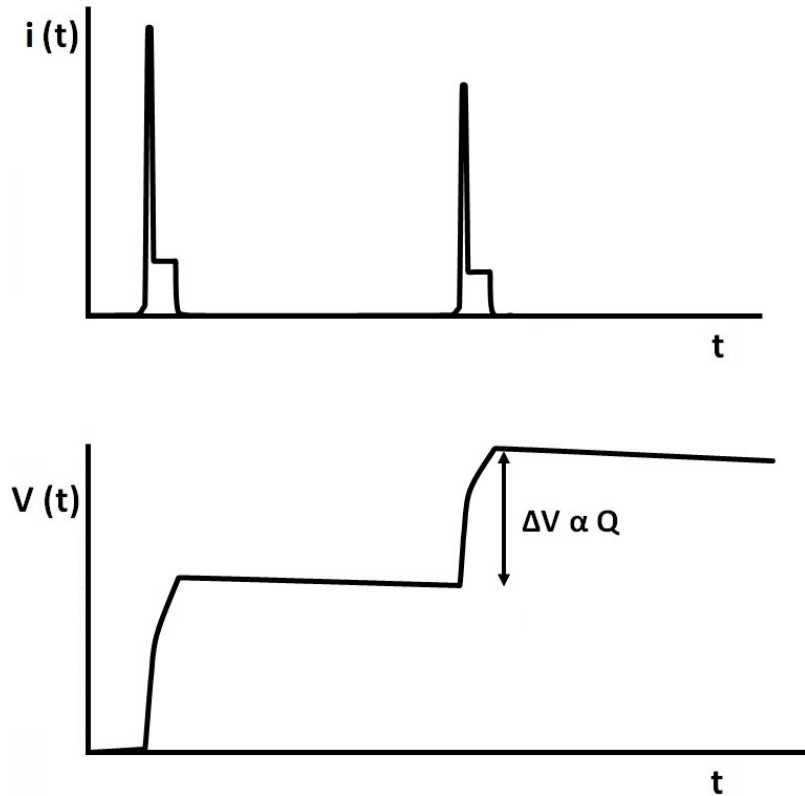


Figura 1.12: Example of the current output from a hypothetical detector (top). Voltage output from a charge-sensitive preamplifier (bottom). Figure taken from [11] and modified.

by only one shaping time. The shorter the shaping time, the less likely it is that two consecutive pulses will undergo pile-up, but at the same time the electronic noise is more efficiently filtered if longer shaping times are set, so the proper choice of this parameter requires a balance of these two factors.

The output signal of the amplifier is sent to a multichannel analyzer, which classifies the pulses according to their height, assigning each of them to one of the ranges (called channel) in which the whole interval is split. It keeps track of the number of pulses stored in each channel, thus creating a pulse-height histogram, which is what we call “spectrum”. The process of finding out the relationship between the pulse height and the energy of the incident particle or photon is called “energy calibration”, which can be carried out by measuring the pulse-height spectra of several radionuclides whose emission energies are known beforehand. Ideally, this dependence would be linear, but there can be slight deviations from linearity that will need to be determined (or found negligible) by measuring enough radionuclides well distributed along the energy interval of interest.

The core of a multichannel analyzer is an analog-to-digital converter (ADC) that converts an analog signal into a digital signal. They can work under two main principles: linear ramp or successive approximations. Other alternatives

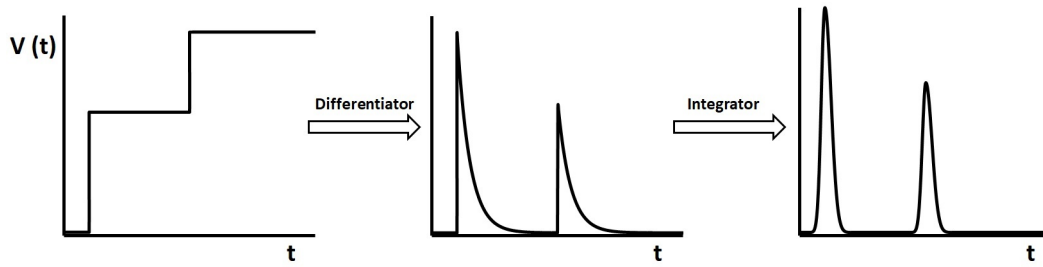


Figura 1.13: Example of the output of a charge-sensitive preamplifier (left), differentiator (middle) and integrator (right) in the amplifier. Figure taken from [11] and modified.

exist, such as flash-type converters, but, in general, they do not provide the accuracy levels required for spectroscopy.

In a linear-ramp converter (also called Wilkinson converter), the input signal is sent to a circuit that continuously compares it with a linearly increasing voltage that is set off at the same time the input pulse reaches the circuit. The time lag it takes for the linear voltage ramp to reach the amplitude of the input pulse is then directly proportional to this amplitude. At the same time the voltage ramp is started, a constant-frequency oscillator is also set off, so the time lag is measured by counting the number of pulses generated by the oscillator until the voltage ramp reaches the input voltage.

A successive-approximation converter is based on an iterative process that is conceptually analogous to the bisection method for solving equations: the amplitude of the input pulse is successively compared with the midpoint of the voltage range under consideration, rejecting the upper sub-interval if it is lower than the midpoint value or rejecting the lower sub-interval if it is higher. After n steps, the pulse amplitude can be classified into one of the 2^n channels in which the initial interval has been split.

In linear-ramp converters, the conversion time depends on the amplitude of the input pulse, since the higher the target voltage, the longer it takes for the linear ramp to reach it. In contrast, in successive-approximation converters, it takes n steps to classify the pulse into one of the 2^n channels regardless of its amplitude, so the conversion time do not depend on the size of the input pulse but only on the number of steps (that is to say, on the logarithm of the number of channels). For this reason, conversion is significantly faster in the latter type of multichannel analyzers. On the other hand, the main advantage of linear-ramp converters is their good linearity, arising from the great accuracy in the generation of the voltage ramp. However, slight deviations from linearity are not critical for the determination of emission rates with a proportional counter, since it does not require the identification of peaks of similar energy, and any non-linearity in the analog-to-digital conversion will be negligible compared to the width of the peaks, and even to the variation in the peak position arising from slight variations in atmospheric conditions.

Digital pulse processing

In traditional spectroscopic systems, the pulse is processed by means of an analog system and then classified by an analog-to-digital converted, as described above. However, over the past few decades, a new way to proceed has been implemented, in which the output of the detector is directly sampled and turned into a digital signal that is processed from scratch by a computer, using algorithms [14–16] that emulate the elements of an analog electronic chain. The processing can be done in real time after each pulse has been registered, or the whole information can be stored through the duration of the measurement and processed afterwards [17]. This post-processing makes it possible to analyze how the output changes when the parameters are modified without having to repeat the measurement, but it requires an immense storage capacity. The development of digital pulse processing began in the 1980's [18, 19] and was mature enough in the 2000's to be implemented in routine measurements [17], encouraged by the increase in processing power.

Digital pulse processing is particularly important when pile-up effects are critical, such in the measurement of high count rates in large-volume detectors, where collection times are long. If, in addition, a good energy resolution is sought, the parameters of the pulse shaping greatly affect the compromise between energy resolution and avoiding pile-up. It is of great use as well when the shape of the pulse conveys useful information, such as $3D$ -position-sensitive detectors [20] or particle-discriminating measurements [21]. The measurement of huge count rates whilst preserving good time-, energy- and spatial resolution has been reported [22].

1.3.3. Statistics of the detection

The detection of ionizing radiation with a proportional counter is based on the collection of the electrons generated as a consequence of the interaction of the incident particle or photon with the counting gas. It assumes a direct relation between the amount of electrons generated and the energy of this particle or photon. The average amount of energy required to create an ion-electron pair is characteristic of the gas composition. However, the charge creation is not a deterministic phenomenon but a stochastic process, thus subject to statistical fluctuation. Photons of the same energy do not always give rise to the same amount of charge, and therefore they do not induce pulses of the same amplitude and are not registered in the same position in the spectrum. This statistical fluctuation sets a lower limit in the width of the spectral peaks, and therefore in the energy resolution of the detection system [11].

The number of electrons generated by the interaction of an incident photon is governed by Poisson's distributions (an extension of binomial distribution that is valid provided the probability of individual success is sufficiently low). This distribution is characterized by a variance equal to the mean value. If the probability of individual success is low but the number of experiments is high

enough such that the mean value is high (typically a few tens), then the Poisson distribution tends to a normal distribution

$$P(N) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\bar{N}}} \exp\left(-\frac{(N - \bar{N})^2}{2\bar{N}}\right) \quad (1.13)$$

whose variance is also equal to the mean value

However, the charge-creation events are not fully independent, but there is a constriction instead, which is the total amount of energy: this implies that the “sampling” goes on until there is no energy left (an illustrative analogy can be found in [23]). This correlation reduces the variance in relation to a random sampling of purely independent events. The ratio between the actual variance observed in the number of charge carriers created and the variance predicted by Poisson distribution is called “Fano factor” [24, 25].

If the average energy required to produce an ion pair is W , the number of electrons created per incident photon, N , follows a Gaussian distribution of mean $\bar{N} = E/W$ and standard deviation $\sigma_N = \sqrt{F \bar{N}} = \sqrt{F E/W}$, where E is the energy of the incident photon and F is the Fano factor.

The amount of energy that has to be transferred to a molecule in order to provoke its ionization must be at least equal to its ionization energy. However, other processes can take place that do not lead to the ionization of any molecule but also imply the loss of a certain amount of the incident particle’s energy (such as the excitation of an inner electron to an upper shell). For this reason, the average energy loss per ion-electron pair in a gas (W) is always greater than its ionization energy [26].

The resolution of a detection system is its capability to distinguish between radiation of similar energy, so it is determined by the width of the peaks in relation to their position in the spectrum. The width of a peak is customarily characterized by its full width at half maximum ($FWHM$), which in a Gaussian curve is $2\sqrt{2 \ln 2} \sigma$ (approximately 2.35σ).

Assuming a linear system, the pulse amplitude (and therefore the position in the spectrum) is proportional to the number of charge carriers created. The lower limit of the detector resolution arising from the statistics of the charge creation is then

$$R_{limit} = \frac{FWHM}{energy} = \frac{2.35 k \sqrt{F \bar{N}}}{k \bar{N}} = 2.35 \sqrt{\frac{F}{\bar{N}}} = 2.35 \sqrt{F \frac{W}{E}} \quad (1.14)$$

Therefore, the energy resolution is better (smaller peak width) in a detection system where the average energy necessary to create a charge carrier is smaller. The energy necessary to ionize a gas molecule and create an ion-electron pair is of the order of tens of electron-volts, whereas a few electron-volts suffice to

promote an electron from the valence band to the conduction band and create an electron-hole pair in a semiconductor. For this reason, semiconductor detectors have much better resolution than proportional counters.

The number of electrons generated by the interaction of the photoelectron ejected by the incident photon is not the only source of statistical fluctuation: the charge multiplication that takes place when these electrons are accelerated towards the anode is also a stochastic process.

The number of electrons (A) generated by each of the primary electrons is governed by Furry distribution [27]:

$$P(A) = \frac{\left(1 - 1/\bar{A}\right)^{A-1}}{\bar{A}} \quad (1.15)$$

which, provided that \bar{A} is sufficiently high (typically in the order of hundreds), adopts a simpler form:

$$P(A) \approx \frac{e^{-A/\bar{A}}}{\bar{A}} \quad (1.16)$$

The relative dispersion of this distribution is much higher than that of Poisson's: the variance is equal to the square of the mean value. For high values of the electric field (as the ones used in proportional counters), however, it has been observed that the behavior of the multiplication process deviates from Furry distribution, because the probability of an electron provoking a ionization is no longer independent of its previous history: as the electric field increases, the mean free path of electrons decreases, and above a certain value this mean free path is comparable to the distance that an electron needs to travel before reaching an energy sufficiently high to provoke ionization. In that case, there is a fraction of molecules that will not have the necessary energy at the moment of the collision [28]. In this situation, it is the Polya distribution that best describes the phenomenon of charge multiplication:

$$P(A) = \left(\frac{A(1 + \Theta)}{\bar{A}}\right)^{\Theta} \exp\left(\frac{-A(1 + \Theta)}{\bar{A}}\right) \quad (1.17)$$

where the parameter Θ is related to the fraction of electrons whose energy is sufficiently high to ionize a molecule in the moment of the collision [29].

The variance of this distribution is

$$\sigma_A^2 = \bar{A} + b\bar{A}^2 \quad (1.18)$$

where

$$b \equiv \frac{1}{1 + \Theta}$$

For large values of \bar{A} , the variance tends to

$$\sigma_A^2 = b\bar{A}^2 \quad (1.19)$$

This means that the variance is multiplied by a factor b in relation to that of Furry distribution, a factor which is always lower than one and can be considered to be approximately 0.5 in most cases [11].

However, the overall multiplication observed in the avalanche triggered by the arrival of a photon is the average of the multiplication A experienced by each of the N primary electrons. Therefore, the overall multiplication factor M follows a distribution whose variance is actually the variance of the mean, which is divided by the number of data sets, that is to say by the number of initial electrons (N):

$$\sigma_M^2 = \frac{\sigma_A^2}{N} = b\frac{\bar{A}^2}{N} \quad (1.20)$$

The amount of charge collected in the anode per incident photon is $Q = eNM$, and the relative variance is the composition of the variance of the primary charge formation and the multiplication process:

$$\left(\frac{\sigma_Q}{Q}\right)^2 = \left(\frac{\sigma_N}{N}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_M}{M}\right)^2 = \left(\frac{\sigma_N}{N}\right)^2 + \frac{1}{N} \left(\frac{\sigma_A}{A}\right)^2 \quad (1.21)$$

which can be expressed in terms of exclusively the mean values of the probability distributions as

$$\left(\frac{\sigma_Q}{Q}\right)^2 = \frac{F}{N} + \frac{b}{N} = \frac{F+b}{N} \quad (1.22)$$

or in terms of the energy of the photon and the average ionizing energy of the gas

$$\left(\frac{\sigma_Q}{Q}\right)^2 = \frac{(F+b)W}{\bar{E}} \quad (1.23)$$

The lower limit for resolution, expressed as the width of a peak in relation to its position, is given by

$$R_{limit} = \frac{FWHM}{center} = 2.35 \sqrt{\frac{(F + b)W}{E}} \quad (1.24)$$

However, the experimental width of the peaks is usually significantly higher than this limit, due to the influence of several factors, such as electronic noise, small variations in the gas density, gas impurities or a certain degree of inhomogeneity in the anode wire [30].

1.3.4. Counting statistics

The radioactive decay that gives rise to the emission of radiation is a purely random process. The random nature of radioactive decay sets an intrinsic limit in the accuracy of any measurement of the activity or emission rate of a radioactive source. If N counts are registered by the detection system during the measurement time, the same number of counts will not necessarily be registered in the next measurement of the same duration.

The probability of a nucleus undergoing a disintegration in a given lapse time depends exclusively on the nature of the isotope and is constant over the time [31]. Nuclei do not age, that is to say their probability of disintegration is independent of how long they have existed: if a nuclei has a probability p of disintegrating in the time interval from t to $t + \Delta t$ and it does not, its probability of disintegrating in the time interval from $t + \Delta t$ to $t + 2\Delta t$ is equally p .

The probability of observing N disintegrations in a sample of n nuclei within a given time interval is governed by Poisson distribution (provided that the probability of each individual disintegration is much smaller than 1 during that time), whose variance is equal to the mean value. Since the events are in this case completely uncorrelated (unlike the charge creation described before), there is no deviation in the variance observed from that predicted by Poisson distribution. The relative standard deviation in the number of disintegrations is then

$$\frac{\sigma_N}{N} = \frac{\sqrt{N}}{N} = \frac{1}{\sqrt{N}} \quad (1.25)$$

Therefore, the relative uncertainty in the counting rate decreases as the square root of the number of counts. For this reason, the accuracy of measurement improves if the measuring time increases.

1.3.5. Distribution of time intervals. Dead time

Precisely because radioactive decay is a random process, it does not occur in regular time intervals (nor predictable). According to Poisson distribution, if an event occurs at a given instant $t = 0$ and its probability per unit time remains constant, the probability P that the next event will occur within a time interval dt after a time t is given by [11]

$$P(t)dt = re^{-rt}dt \quad (1.26)$$

where r is the probability per unit time. The highest value of this function is reached at $t = 0$, which means that, regardless of how likely the event is, it is more likely that the next event will occur between $t = 0$ and dt than in any other time interval of the same duration.

If a photon arrives in the detector before it has returned to its equilibrium state after the previous pulse, the detector will not be able to process it separately from the previous one. The minimum amount of time required between two events so that both of them can be registered separately is called dead time (τ), and it is characteristic of each detection system and its operating parameters. It can be due to processes that take place within the detector as a consequence of the interaction of the photon or particle, or due to the pulse processing in the electronic chain.

Because of the random nature of radioactive decay, there is always a non-zero probability that the next event will occur within the detector's dead time after the previous one, and therefore it will not be counted. The count rate measured is then underestimated due to those dead-time losses. Two extreme models can be established for the behavior of a detection system regarding the dead time. In the paralyzable model, the detector will not record an event if the previous one occurred less than a time τ before, regardless of whether it was registered or not; that is to say, the dead time starts over every time an event takes place. Conversely, in the non-paralyzable model, the detector will not record any event within a time τ after the last event that was registered; in other words, the dead time starts over only after an event is recorded.

In the measurement of high count rates, the dead-time losses can be significant, and the dead time will have to be determined in order to apply the corresponding correction factor. If the dead time is non-paralyzable, an increase in the actual rate of photons or particles interacting in the detector (N) always leads to an increase in the count rate measured (N_m):

$$N_m = \frac{N}{1 + N\tau} \quad (1.27)$$

although it tends asymptotically to $1/\tau$

If the dead time is paralyzable, the count rate reaches a maximum and then it decreases to 0, since for very high rates the system never has time to recover and record the following event

$$N_m = N e^{-N\tau} \quad (1.28)$$

However, if the count rate is low, dead-time losses will be negligible, since either model tends to $N_m = N$ for small values of N .

1.4. Detection geometry

A source emits radiation isotropically, and therefore different approaches can be adopted in order to determine its emission rate:

- a) Measuring all the radiation emitted by the source, that is to say over the whole sphere. For that purpose, it is necessary that the detection system fully surrounds the source. This kind of measurements are called 4π measurements, since the solid angle of a complete sphere is 4π (Fig. 1.14a). This geometry presents several problems that affect the accuracy of measurements:
 - Absorption in the source holder. The source that is being measured needs to be placed on some kind of solid holder, regardless of the detection geometry that is being employed. Therefore, if the measurement is carried out under a 4π geometry, a fraction of the radiation emitted has to go through the holder before reaching the detection gas. This provokes a certain attenuation, which is, moreover, not identical in all directions, since the path length of the radiation through the holder depends on the emission angle.
 - Self-attenuation in the source itself. Radiation is not only emitted from the surface of the source, but from its whole body. Therefore, some fraction of the emitted radiation is absorbed before reaching the surface. The probability of a photon being absorbed within the source depends of its path length, which in turn depends on the emission angle. This means that the attenuation of the radiation emitted along the perpendicular direction is much higher than that emitted with a large angle with respect to it.
- b) Introducing the source inside a semi-cylindrical counter, so that only photons emitted within a solid angle of 2π sr are detected (Fig. 1.14b). The total emission rate would then be twice the measured counting rate.
 - The attenuation in the source holder is no longer a factor, since the detection system and the holder are placed in opposite directions.
 - However, a new factor appears, arising from backscattering in the holder: some of the photons that were initially emitted towards the holder and are backscattered towards the detector. The difficulty to characterize the influence of backscattering limits the accuracy of measurements.
 - The problem of self-attenuation in the source is equivalent to that of the 4π measurement.
- c) Measuring only the radiation emitted within a small fraction of the sphere and extrapolating to the whole sphere (Fig. 1.15). This kind of measurement

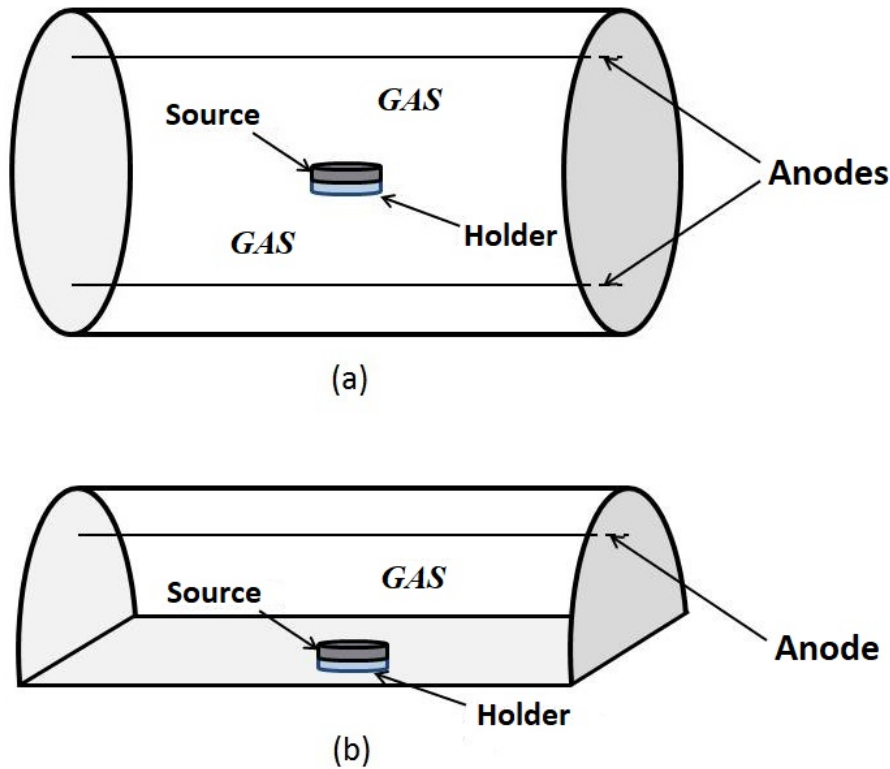


Figure 1.14: Scheme of the detection geometries where the sources are placed inside the detection system: (a) 4π (b) 2π .

is called “defined-solid-angle counting”. To this end, the source must be placed outside the detection system, so that only a certain fraction of the emitted radiation reaches the detector.

- As was the case of 2π -measurement, the absorption in the source holder does not affect the measurements, since the holder and the detector are placed in opposite directions.
- However, backscattering in the source holder is still present. Even though the probability of a scattered photon being detected is much lower (as only those photons scattered within a very small interval of angles would reach the detector), it is not in proportion to the geometric efficiency.
- The photons that reach the detector are those emitted close to the normal direction, for which the path length through the source is shorter. Therefore the influence of self-attenuation is mitigated. In addition, all the photons travel a similar path length, so the dispersion in self-attenuation is minimized.
- On the other hand, a new factor has to be taken into account: the attenuation in the window that separates the source chamber and the detector. If only the photons emitted within a certain cone are to be detected,

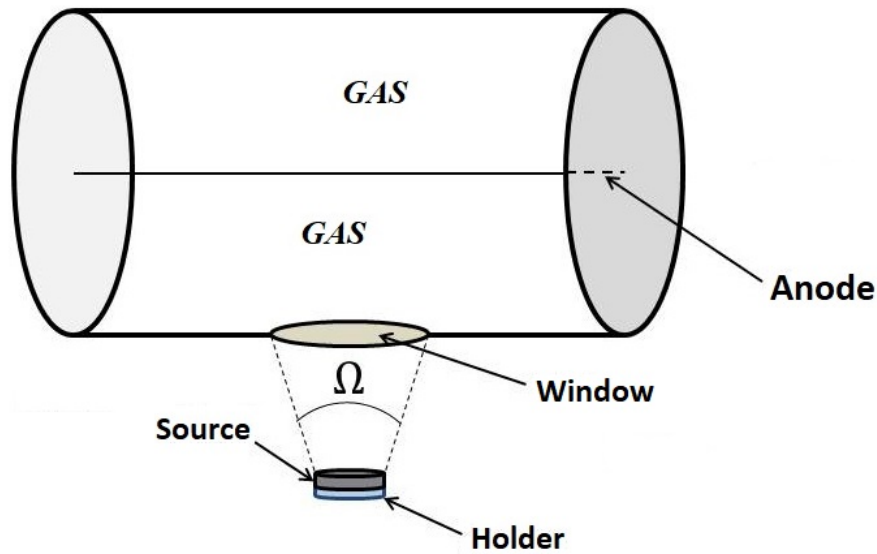


Figura 1.15: Scheme of low-solid-angle counting.

the source and the detection system must be physically separated, that is to say in two separate chambers. In order to minimize attenuation, the window between those chambers must be thin and made of a material with low atomic number (the traditional choice is beryllium, but a different option has been implemented in this work). It is necessary to characterize the composition and thickness of the window in order to calculate the attenuation experienced by the radiation that passes through it and apply the corresponding correction factor. The advantage of the low-solid-angle counting in this regard is that all the radiation undergoes a similar path length into the window, so attenuation is essentially the same in all directions.

- Another contribution arises from the fact that the source and the detection system are located in different chambers: the absorption in the gas that surrounds the source. Since the window between both chambers has to be extremely thin, the pressure on both sides of the chamber must be very similar. Therefore, the source chamber cannot be void, but it must be filled with a gas. In order to minimize the attenuation, the gas must have a low atomic number. Due to the obvious difficulties that would arise from the manipulation of a flammable gas like hydrogen, the common choice is helium. The absorption in the helium is therefore another contribution that must be characterized in order to apply the corresponding correction factor in the determination of the detection efficiency.

The attenuation in the helium and in the window reduces the efficiency of the detection. However, they play an important role in the correct determination of

X -ray emission rates, since they are instrumental in the discrimination between photons and electrons.

The radionuclides measured in this work emit, along with the X -rays, Auger electrons of similar energy. If one intends to determine the X -ray emission rate separately, the electrons must be prevented from entering the detector.

The probability of interaction of electrons with matter is much higher than that of photons of the same energy. Therefore, by choosing a suitable mass thickness for the window and a suitable length for the helium chamber, it is possible to fully stop these Auger electrons and, at the same time, keep the transmission of photons close to 100 %.

Therefore, the defined-solid-angle counting was found to be the most suitable detection geometry for the absolute determination of X -ray emission rates. Thus, the main goal of this work was to build and characterize a low-solid-angle proportional counter.

1.5. Absolute measurement of emission rates. Correction factors on the counting rate.

1.5.1. Geometric efficiency

According to geometrical considerations exclusively, the fraction of sphere defined by the measurement solid angle would be equal to the fraction of emitted radiation that reaches the detector, since the radiation is emitted isotropically. Thus the emission rate (S) would be directly related to the measured counting rate (N) by the equation

$$S = N \frac{4\pi}{\Omega} \quad (1.29)$$

(An in-depth description and discussion of the different methods for computing the solid angle will be given in section 3.2.)

However, there are certain scattering and absorption events that can affect the fraction of emitted photons that reach the detector body, so it is necessary to introduce the corresponding correction factors in the determination of the overall efficiency [32]. Additionally, the interaction of the radiation with the detector body needs to be characterized as well, in order to determine the fraction of incident photons that are counted.

In this regard, gas-filled detectors are a very suitable choice, as the characterization of the interaction of the radiation with the detector body is straightforward, given that the whole volume of the gas works in fact as the active volume

(unlike semiconductor detectors, for instance, whose structure is difficult to determine, and the presence of dead layers affects the detection efficiency).

1.5.2. Probability of interaction of the radiation with the detector

Not all the radiation reaching the detector interacts with it. Therefore, for the absolute measurement of emission rates, one of the main correction factors that must be applied is the probability that a photon entering the detector will interact with it and deposit some or all of its energy. This will be the main criterion for deciding the dimensions of the counting chamber: an adequate size must be chosen for the probability of interaction to be close to 100%, so that the contribution of this factor to the uncertainty in the emission rate remains as low as possible.

1.5.3. Corrections for absorption

- **Absorption in the detector window.**

In order to prevent the mixture of gases, the source and the counting chamber must be separated by a window, which inevitably will absorb a certain fraction of the radiation that passes through it. So as to minimize this attenuation, the window must be thin and made of a material with a low atomic number. However, since the attenuation can be significant (Fig. 1.16), it is necessary to calculate this factor, which in turn requires knowing the composition of the window and measuring its thickness.

- **Attenuation in the helium.**

The radiation emitted by the source is also attenuated to a certain degree by the helium contained in the source chamber. Fig. 1.17 shows the fraction of radiation that is absorbed by the helium (at 20 °C and 1000 hPa) as a function of the source-to-window distance for several values of the energy.

This attenuation depends on the temperature and the gas pressure, as the attenuation coefficient μ increases linearly with the density. Figure 1.18 represents the variation of the attenuation in the helium chamber with the pressure and the temperature for an example of a 2-cm-chamber and a radiation of 2 keV.

- **Self-attenuation in the source**

The radiation emitted from a certain point of the source can be absorbed by an atom located closer to its surface, so the probability of absorption depends on how far from the surface the emitting atom is.

In the determination of the self-attenuation correction factor, two different situations must be distinguished: the case of a source with intrinsic radiation (a radioactive source) and a fluorescence target that requires an

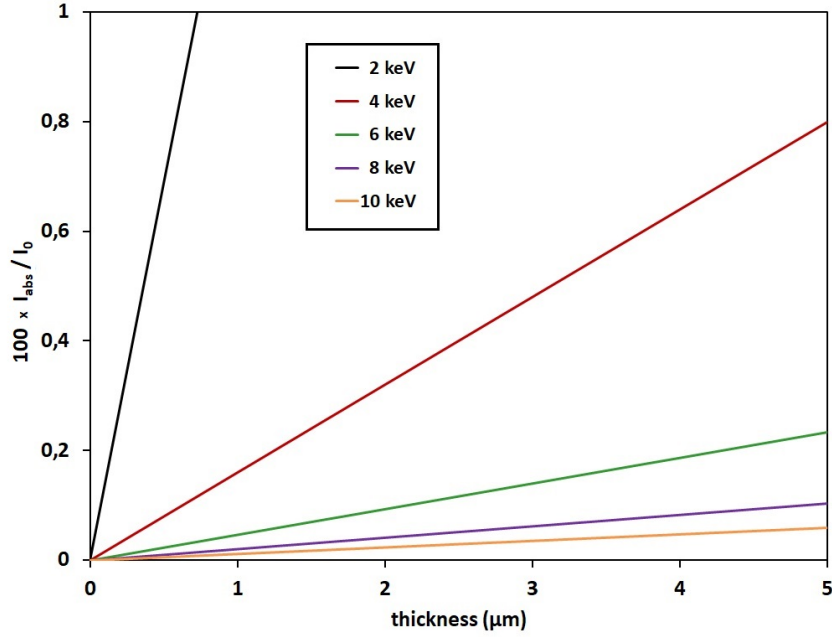


Figure 1.16: Attenuation in a beryllium window as a function of its thickness and the energy of the radiation. Interaction cross-sections obtained from [9].

external excitation source. If the source emits X -rays as a consequence of a spontaneous nuclear reaction, all atoms present the same probability of emission, so the fraction of absorbed photons in the source is the arithmetic mean of the individual probabilities of absorption from $t = 0$ to $t = x$ (let x be the source thickness, see figure 1.19). In the ideal case of a collimated monochromatic beam inside a thin material, the average absorption is

$$\left\langle \frac{I_{abs}}{I_0} \right\rangle = \frac{1}{x} \int_0^x (1 - e^{-\mu t}) dt = 1 - \frac{(1 - e^{-\mu x})}{\mu x} \quad (1.30)$$

Fig. 1.20 shows the self-absorption of an ^{55}Fe source as a function of its thickness.

However, if what is being measured is the fluorescence induced by an external excitation source, the probability of a fluorescence photon being emitted at a distance t from the surface is proportional to the probability of an excitation photon reaching that point; that is to say it is proportional to $e^{-\mu_i t}$ (or $\mu_i e^{-\mu_i t}$ if it is normalized). The fraction of fluorescence photons absorbed within the target is then a weighted mean in which the weight of each point is $\mu_i e^{-\mu_i t}$:

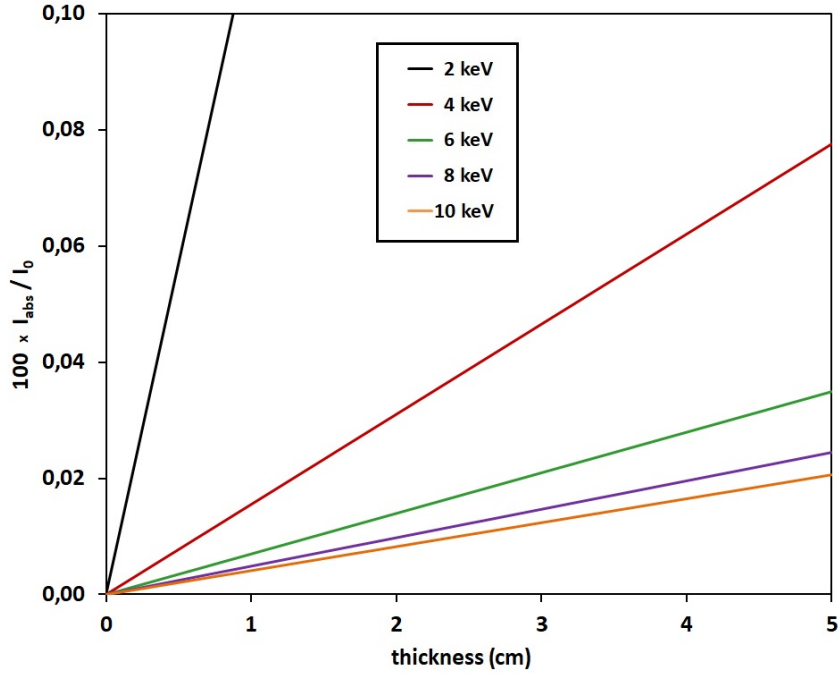


Figure 1.17: Fraction of radiation absorbed by the helium in the source chamber as a function of the path length for different energies at 20°C and 1000 hPa . Interaction cross-sections obtained from [9].

$$\begin{aligned}
\left\langle \frac{I_{abs}}{I_0} \right\rangle &= \frac{1}{\int_0^x \mu_i e^{-\mu_i t} dt} \int_0^x \mu_i e^{-\mu_i t} (1 - e^{-\mu_e t}) dt = \\
&= 1 - \frac{1}{\int_0^x \mu_i e^{-\mu_i t} dt} \int_0^x \mu e^{-(\mu_i + \mu_e)t} dt \quad (1.31) \\
&= 1 - \frac{\mu_i}{\mu_i + \mu_e} \frac{1 - e^{-(\mu_i + \mu_e)x}}{1 - e^{-\mu_i x}}
\end{aligned}$$

where μ_i refers to the linear absorption coefficient of the incident radiation and μ_e that of the radiation emitted in the fluorescence process.

Fig. 1.21 shows the self-attenuation in different fluorescence targets excited with 6-keV X-rays from ^{55}Fe .

For typical activities of some tens of kilobecquerels measured in this work, unless the radionuclide decay constant is excessively small, the amount of radioisotope is usually too small for the self-absorption to be significant. The correction for self-absorption is important for those sources where the active isotope is mixed with the corresponding compound with the stable isotopes (“carrier”), which is usually added to stabilize the solution and to prevent too much active compound from being adsorbed in the vial’s

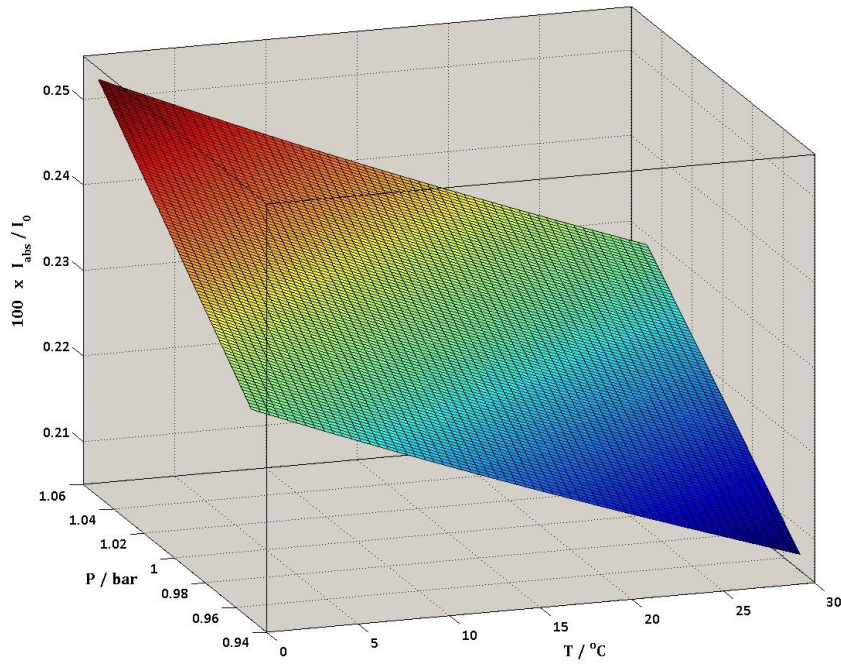


Figure 1.18: Dependence of attenuation in helium on the temperature and the pressure. Results for a 2-cm-chamber and for X-rays of 2 keV. Interaction cross-sections obtained from [9].

walls, or for those radionuclides whose half-lives are so long that it takes a large amount of the active isotope to get the desired activity.

■ **Transmission through the edges of the diaphragm**

Typically, the diaphragm will be thick enough to ensure that the amount of radiation that passes through it is negligible. However, near the edges, the diaphragm gets thinner, so at some point close enough to the edge the transmission can be significant, thus making the effective solid angle slightly larger than the real solid angle defined by the diaphragm. This is another factor that will need to be computed or, at least, proven negligible.

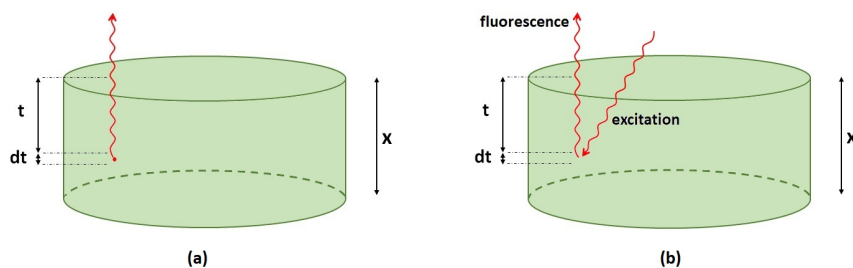


Figure 1.19: Scheme of self-attenuation in a radioactive source (left) and in a fluorescence target(right).

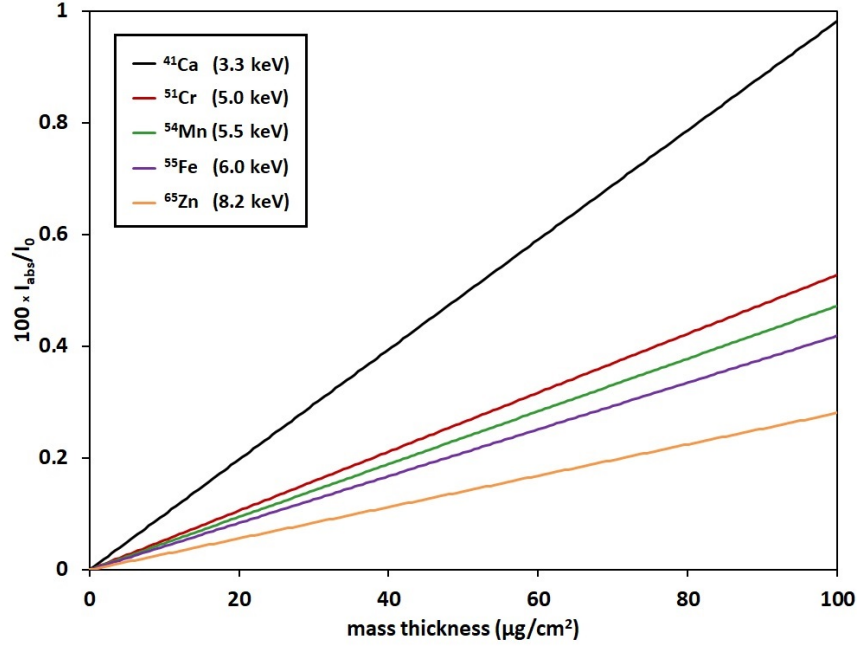


Figure 1.20: Self-attenuation of X-rays from different sources as a function of their mass thickness. Interaction cross-sections obtained from [9].

1.5.4. Corrections for scattering

The number of photons that pass through an element of surface of the diaphragm due to the scattering undergone in an element of volume is [32]:

$$dN_d = N_0 d\Omega(\alpha) T(\alpha) N dx \frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta) T(\theta) d\Omega(\theta) \quad (1.32)$$

where N_0 is the emission rate of the source, $d\Omega(\alpha)$ is the solid angle subtended by the differential scattering volume at the source, $d\Omega(\theta)$ is the solid angle subtended by the differential element of the diaphragm surface at the scattering center, N is the density of scattering centers, $T(\alpha)$ and $T(\theta)$ are the transmission coefficients of the incident radiation and the scattered radiation respectively, and $d\sigma/d\Omega$ is the scattering cross-section per unit solid angle, which depends upon the angle θ between the incident and the scattering directions (see Fig. 1.22). Therefore, by integrating this expression over the whole scattering volume and over the whole surface of the diaphragm, one can obtain the fraction of radiation that enters the detector as a consequence of scattering events.

For electromagnetic radiation, the angular distribution of the scattering cross-sections is described by Klein-Nishina expression [33]:

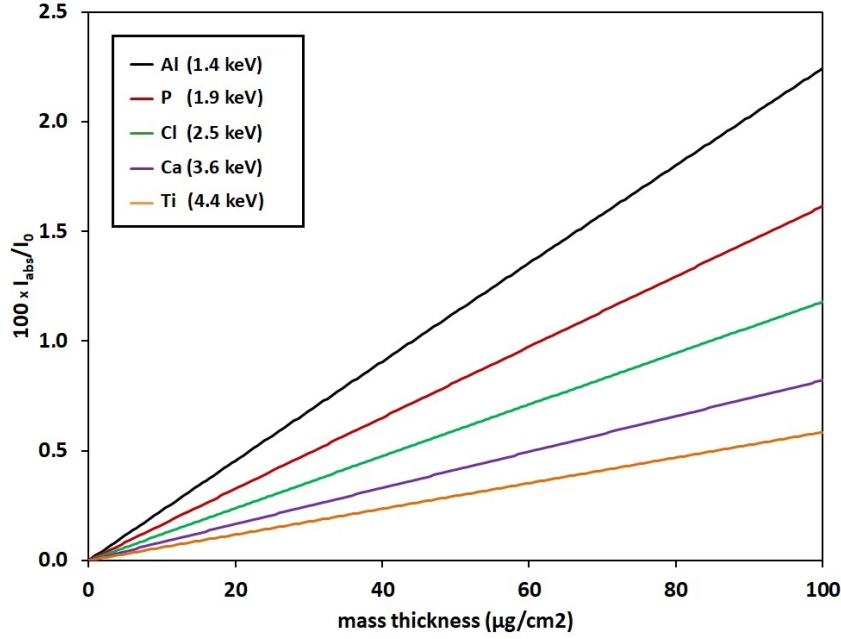


Figure 1.21: Self-attenuation in different fluorescence targets excited with 6 keV X-rays from ^{55}Fe as a function of the mass thickness of the target. Interaction cross-sections obtained from [9].

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = Zr_0^2 \left(\frac{1}{1 + \alpha(1 - \cos\theta)} \right)^2 \left(\frac{1 + \cos^2\theta}{2} \right) \left(1 + \frac{\alpha^2(1 - \cos\theta)^2}{(1 + \cos^2\theta)[1 + \alpha(1 - \cos\theta)]} \right) \quad (1.33)$$

where $\alpha \equiv \frac{h\nu}{m_0c^2}$ and $r_0 \equiv \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^2}{m_0c^2}$ is the classical electron radius

Scattering can be due to several contributions:

a) **Scattering in the walls of the source chamber.**

Scattering takes place in an element of volume $dv = (d + x) d\varphi dx dz$ (see Fig. 1.23), where φ is the azimuth angle in the cylindrical chamber. If $x \ll d$, the differential solid angle of incidence on the scattering volume can be approximated as [32]

$$d\Omega(\alpha) \approx \frac{1}{2} \frac{b^2 dz}{(b^2 + (l - z)^2)^{3/2}} \quad (1.34)$$

and the angle of incidence as

$$\Omega(\alpha) \approx \frac{1}{4} \frac{a^2 z}{(b^2 + z^2)^{3/2}} \quad (1.35)$$

The integration over the surface of the diaphragm is not necessary if one assumes the approximation that scattering towards all the points of the diaphragm is essentially equal to the scattering towards the center of it. In that

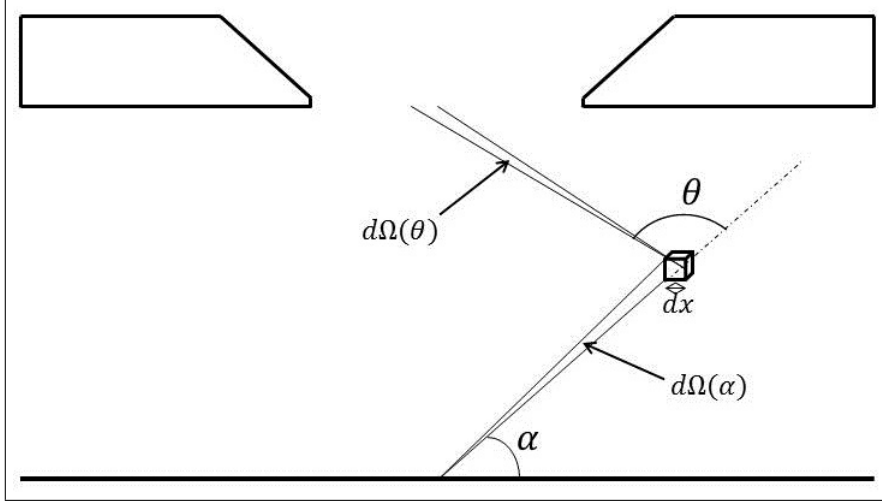


Figura 1.22: Notation used in the equation for the calculation of scattering. Taken from [32] and modified.

case, and if $x \ll d$, the scattering angle is given by

$$\cos\theta \approx \frac{lz - (b^2 + z^2)}{\sqrt{b^2 + z^2} \sqrt{b^2 + (l - z)^2}} \quad (1.36)$$

Transmission coefficients $T(\alpha)$ y $T(\Omega)$ can be obtained by merely using the attenuation coefficient (μ) for the radiation of a certain energy into the material of which the wall is made:

$$T(\alpha) = \exp\left\{-\frac{\mu x}{d} \sqrt{d^2 + (l - z)^2}\right\}$$

$$T(\Omega) = \exp\left\{-\frac{\mu x}{d} \sqrt{d^2 + z^2}\right\} \quad (1.37)$$

b) Scattering in the edges of the diaphragm.

A certain fraction of the radiation emitted towards the edges of the diaphragm can be scattered towards the detector body. The formalism for the computation of this contribution is similar to that employed for the scattering in the walls, with the only difference that in this case it is necessary to integrate only over the thickness of the edge (h) instead of the whole height of the chamber. Nevertheless, it has been observed that this factor is negligible for electromagnetic radiation [32].

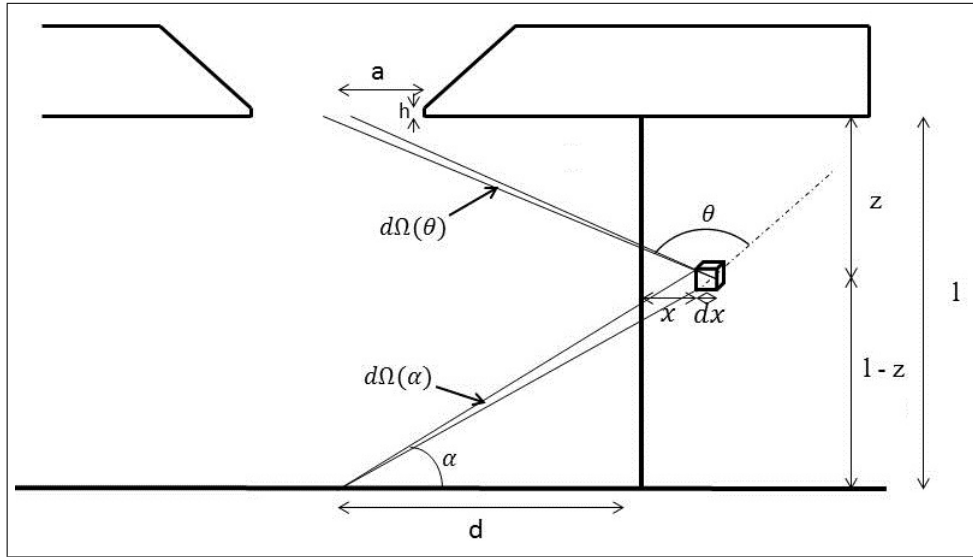


Figura 1.23: Notation used in the computation of scattering in the walls. Extension of Fig. 1.22.

c) Scattering caused by the molecules of the gas in the source chamber.

The molecules of helium that envelop the source can behave as scattering centers as well. This scattering can be responsible, on the one hand, for the fact that some of the electrons that were originally emitted in other directions end up reaching the diaphragm, and, on the other hand, that some of the electrons that were originally headed for the diaphragm are deviated from that trajectory. However, both effects are expected to have a very weak influence on the counting rate given the low density of the gas.

d) Backscattering in the detector window.

The window can attenuate the radiation that reaches the detector not only due to photoelectric absorption, but due to backscattering as well. However, the windows used are typically so thin (and made of a low-atomic-number element) that the contribution of this effect is expected to be very small as well, although any contribution would be always negative, unlike in the case of backscattering in the helium, since no photon initially emitted outside the cone of detection will enter the diaphragm due to a change of direction in the window.

e) Scattering in the source.

Just as a photon emitted in the inner part of the source can be absorbed by another atom before reaching its surface, it can also undergo scattering and change its direction, either leading it towards the detector or deviating it from

its way to it. If the source is sufficiently thin, this contribution will be negligible, but a greater fraction of the photons emitted in the direction opposite to the detector will reach the source holder in that case, so it is backscattering in the holder instead of the source that will play a more important role.

f) Backscattering in the source holder.

If the source is thin enough, the majority of the photons emitted in the direction opposite to the detector will somehow interact with the source holder. A certain fraction of them will be scattered with an angle that leads them towards the diaphragm, thus increasing the effective efficiency.

Nevertheless, even though the probability of interaction with the counting gas and the attenuation factor in the helium and in the window are straightforward to calculate, and they are even critical in the designing process and the choice of dimensions, scattering effects are difficult to calculate individually by merely solving the analytical expressions that characterize this phenomenon. For this reason, they will be computed all together by means of Monte Carlo simulations in order to verify whether the overall effect is negligible, and if it is not, to apply the corresponding correction factor.

Capítulo 2

Diseño y construcción del contador proporcional

2.1. Antecedentes

Si bien los principios físicos de los detectores de ionización gaseosa son ampliamente conocidos desde los comienzos de la medida de radiaciones ionizantes [34–38], el empleo de contadores proporcionales para la medida de tasas de emisión de rayos X de baja energía ha sido escaso en el pasado.

Desde el desarrollo de los detectores de semiconductor en las décadas de 1950 y 1960 [39, 40], la atención se centró en este tipo de dispositivos, que proporcionan una mejor resolución espectral. Sin embargo, pronto se hizo patente que los modelos empleados en la determinación de su eficiencia (requerida para cualquier medida cuantitativa de tasas de emisión) solamente podían ser tan precisos como preciso fuera el conocimiento que se tuviera acerca de su estructura interna, la cual no es sencilla de elucidar. Algunos parámetros geométricos que resultan fundamentales, como el espesor y el diámetro activo del detector o el espesor de las capas muertas, son, en la práctica, inaccesibles experimentalmente (al menos de forma precisa), por lo que la eficiencia de detección no se puede determinar de manera absoluta, sino que requieren ser calibrados mediante la medida de fuentes de tasa de emisión conocida. Se han propuesto numerosos métodos para la calibración de este tipo de detectores, pero la mayoría dependen de un conocimiento previo las probabilidades de emisión o rendimientos de fluorescencia de los radionucleidos empleados [41–45], o al menos del cociente entre la probabilidad de emisión X y la probabilidad de alguna emisión γ (cociente P_K/P_γ) [46]. Sin embargo, si se pretenden realizar nuevas medidas más precisas de las probabilidades de emisión de los radionucleidos de un cierto rango energético, es necesario descansar únicamente en medidas que sean independientes de esas probabilidades, para lo cual resulta imprescindible contar con una técnica para medir tasas de emisión de manera absoluta.

En 1982 M. Tolson y N. Spyrou [47] propusieron un método para la calibra-

ción de detectores basado en la medida de la emisión de rayos X inducida por un haz de protones de manera simultánea en el detector que se desea calibrar y en un contador proporcional cuya eficiencia había sido determinada a partir de consideraciones geométricas. Sin embargo, dicha técnica ha tenido escasa implantación hasta la fecha.

En la década de 1990, varios investigadores del Joint Research Centre de Geel (Bélgica) desarrollaron un contador proporcional de ángulo sólido definido para la medida de rayos X de baja energía [48], que fue utilizado con éxito para la medida de fuentes de fluorescencia empleadas en la calibración de detectores de semiconductor [2,49] y para la determinación de rendimientos de fluorescencia [50].

El Laboratoire National Henri Becquerel de Saclay (Francia) desarrolló también un contador proporcional para la detección de rayos X de baja energía, diseñado por J. Plagnard [51], cuya aplicación ha sido escasa hasta la fecha. El Anexo 2 recoge más detalles sobre este equipo, en cuya puesta a punto colaboré durante una reciente estancia en dicho laboratorio.

Se ha propuesto también un método de calibración de detectores que no emplea radionucleidos emisores X sino radiación monocromática procedente de un sincrotrón [52], y que por tanto no depende de ningún dato tabulado de probabilidades de emisión. Para ello, el haz de radiación debe ser medido por el detector que se calibra y por un contador proporcional cuya eficiencia ha de ser igualmente determinada de manera absoluta.

En este trabajo se presenta el diseño, construcción y caracterización de un contador proporcional de ángulo sólido definido para la medida absoluta de tasas de emisión de rayos X de baja energía, que en última instancia se pueda emplear para la determinación de probabilidades de emisión de radionucleidos de interés mediante la combinación con otras técnicas del laboratorio que permitan determinar la actividad de manera absoluta y con un detector de semiconductor que permita resolver adecuadamente las líneas de emisión.

2.2. Consideraciones iniciales: elección del gas y dimensiones del contador. Probabilidad de interacción.

El primer paso a la hora de abordar el diseño de un detector de radiación ha de ser fijar el rango de energía que se pretende abarcar. En el presente trabajo se decidió que el rango de operación de este contador proporcional debería extenderse al menos hasta los 9 keV, para cubrir así la región de los espectros de emisión de rayos X de los principales radionucleidos de interés de la primera serie de transición, como son el ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{55}Fe o ^{65}Zn entre otros.

La elección del gas de recuento apropiado ha de tener en cuenta el concurso

de varios factores. En primer lugar, se deben evitar elementos electronegativos, es decir, que tengan tendencia a incorporar electrones en su capa externa, ya que de lo contrario aumentarían las pérdidas de carga por fenómenos de recombinación. Esto hace de los gases nobles una opción muy adecuada, ya que la formación de sus aniones es desfavorable energéticamente.

Para rayos X de baja energía, el argón se presenta como la opción más apropiada, ya que una mayoría de fotones de este rango energético interactúan en unos pocos centímetros de este gas a presión atmosférica. Para la detección de fotones de energías superiores se emplean a menudo otros gases nobles, como el criptón o el xenón, que tienen mayores secciones eficaces de interacción. Sin embargo, la velocidad de desplazamiento de los electrones en estos gases bajo la acción del campo eléctrico es menor, por lo que están más expuestos a la recombinación, y por tanto su empleo solamente está justificado si la probabilidad de interacción con el argón es demasiado baja en el rango energético que se pretende medir. En el extremo contrario se encuentran los hidrocarburos gaseosos, como el metano o el etano, que presentan una sección eficaz de interacción mucho más pequeña que la del argón, por lo que solamente se emplean en casos en que la eficiencia de detección no sea un criterio esencial (a menos que se trabaje a presiones muy elevadas).

La detección de radiación mediante contadores proporcionales se basa en la ionización que se produce cuando un electrón interactúa con una molécula del gas. Sin embargo, puede suceder que esta interacción, en lugar de provocar su ionización, simplemente produzca una excitación electrónica de la molécula, que en su proceso de relajación emitirá radiación ultravioleta. Esta radiación puede ser absorbida por otra molécula y provocar una nueva ionización en otro punto cualquiera del gas, lo cual puede deteriorar la proporcionalidad de la respuesta del contador. Por este motivo, se suele añadir una pequeña proporción de un gas poliatómico, muy comúnmente metano, que sea capaz de absorber esa radiación ultravioleta indeseada [11].

Por todo ello, se decidió que el gas empleado en el contador proporcional fuera una mezcla de 90 % argón y 10 % metano, conocido habitualmente como gas $P-10$.

El siguiente paso consiste en decidir la geometría y las dimensiones del contador. En una geometría plano-paralela, incluso si la separación de ambos planos es muy reducida, es necesario aplicar una diferencia de potencial extremadamente alta para lograr un campo eléctrico suficiente para producir la multiplicación de carga (típicamente decenas de miles de voltios por cada centímetro de separación). Si embargo, en un contador cilíndrico con el ánodo dispuesto a lo largo del eje del cilindro, si el radio del ánodo es suficientemente pequeño (del orden de micrómetros), algunos kilovoltios son suficientes para generar el mismo campo eléctrico. Además, en esta geometría el campo disminuye abruptamente

con la distancia al ánodo, lo cual, como se explicará en la sección 3.1.2, facilita las condiciones para una multiplicación reproducible. Por ello, para operar en régimen de contador proporcional, es preciso emplear cámaras cilíndricas.

A continuación, se estudió la probabilidad de interacción de los fotones con el Ar/CH_4 , con el objetivo de determinar las dimensiones del contador necesarias para cubrir todo el rango de energía considerado.

Uno de los principales factores de corrección que hay que considerar a la hora de realizar una medida absoluta es la probabilidad de interacción de la radiación con el gas de recuento. Con el objetivo de que la contribución de la incertidumbre de este factor a la incertidumbre total sea lo menor posible, es deseable que la probabilidad de interacción sea próxima al 100% para todo el rango considerado.

Cálculos preliminares haciendo uso de las secciones eficaces de interacción proporcionadas por *XCOM* [9] indicaron que una cámara de 20 *cm* de diámetro con Ar/CH_4 (9:1) a presión atmosférica sería suficiente para asegurar que la probabilidad de interacción con el gas fuera superior al 90% hasta una energía de 9 *keV*.

Sin embargo, si bien este cálculo simplificado permite establecer un diámetro adecuado de la cámara, una caracterización completa del contador que permita la determinación precisa de la eficiencia de detección requiere un cálculo detallado mediante simulaciones de Monte Carlo, que se presentará en la sección 3.3.

Por otra parte, se estableció que la longitud del cilindro debería ser suficiente para que la inmensa mayoría de la carga fuera creada cerca del centro en la dirección longitudinal, para minimizar así el efecto de borde. Para ello, la longitud de la cámara se estableció en 25 *cm*. No obstante, en la sección 3.1.1 se estudiará detalladamente la generación de carga mediante simulaciones de Monte Carlo, que confirmarán que se cumplen los requisitos deseados.

2.3. Construcción del contador

El contador proporcional (2.1 y 2.2) consiste de una cámara cilíndrica de aluminio de 20 *cm* de diámetro y 25 *cm* de longitud, cubierto en la cara interior de las bases por una capa de teflón de aproximadamente 1 *cm* de espesor, que contiene una mezcla de argón (90%) y metano (10%) a la presión de 1000 *hPa*. La carga se recoge en un hilo de oro de 15 μm de radio, dispuesto a lo largo del eje del cilindro, al cual se le aplica un potencial de 1900 *V*. El hilo está tensado mediante una tuerca de cierre y un tornillo tensor en uno de los extremos, manteniendo el otro extremo fijo (Fig. 2.3). Está soldado a la punta de un conector coaxial *SHV*, que atraviesa la pared del cilindro y conecta el hilo con el resto del circuito.

La elección de aluminio como material estructural se basa en dos conside-

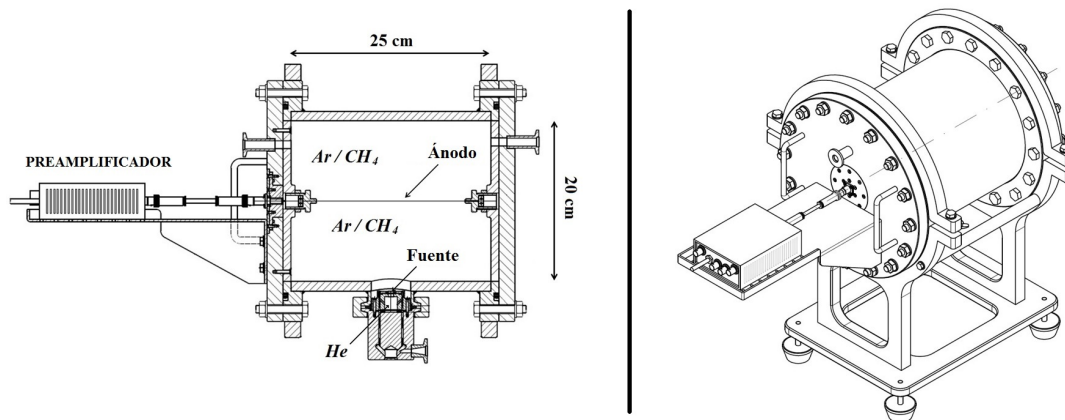


Figura 2.1: Esquema del contador proporcional.

raciones fundamentales. En primer lugar, es necesario que la pared interior del cilindro sea conductora, ya que funciona como cátodo, y debe estar conectado a tierra para garantizar que la diferencia de potencial entre el ánodo y el cátodo sea constante. Por otro lado, hay que tener en cuenta que una fracción de los fotones emitidos por la fuente pueden alcanzar las paredes del detector, induciendo así la emisión de rayos X de fluorescencia característicos del metal en cuestión. Para que esta radiación de fluorescencia no interfiera en las medidas, es necesario que la energía de los rayos X característicos de este metal tengan la menor energía posible, por lo es deseable que se trate de un elemento de bajo número atómico. Por todo ello, se decidió emplear aluminio, cuyos rayos X característicos se encuentran por debajo de $1,5 \text{ keV}$, de manera que no se solapan con los picos de rayos X de los radionucleidos medidos. El grosor de las paredes del cilindro de aluminio es de unos 2 cm , aunque esta dimensión no tiene incidencia alguna en los cálculos, ya que unos pocos milímetros de aluminio bastan para detener el 100% de los fotones del rango energético considerado.

La muestra medida se coloca en una cámara adyacente, más pequeña, también de geometría cilíndrica, dispuesta en posición perpendicular a la cámara del contador en el centro de su coordenada longitudinal. Ambas cámaras están conectadas a través de un diafragma de abertura circular, de manera que la radiación entra en la cámara del contador en dirección perpendicular al ánodo, y solamente se detecta una fracción determinada de la radiación emitida, correspondiente al ángulo sólido de medida, que queda definido por la posición de la muestra y el tamaño del diafragma. Para mantener la estanqueidad de las dos cámaras, el diafragma está cubierto con una ventana, que presenta un espesor muy reducido para minimizar la atenuación de la radiación que la atraviesa. Para que esta ventana no esté sometida a una gran tensión y evitar su rotura, la cámara de la muestra está llena de gas a la misma presión que la cámara del contador (1000 hPa). Sin embargo, a diferencia de esta, el gas que contiene no es argón-metano sino helio, para reducir la atenuación de rayos X antes de que alcancen el contador.



Figura 2.2: Fotografía del contador proporcional en operación.
Nota: Para una mayor claridad se ha retirado el blindaje de plomo exterior a la hora de tomar la fotografía.

Para reducir en la medida de lo posible la incidencia de la radiación ambiental en las medidas, el sistema está rodeado por un blindaje consistente en un ensamblaje de ladrillos de plomo de 5 cm de grosor, dispuestos en los laterales y en la parte superior de la cámara.

2.4. Ventana del detector

La medida bajo ángulo sólido definido requiere que la muestra se encuentre alojada en una cavidad externa al contador. Para que la radiación no se vea demasiado atenuada antes de alcanzar el contador, es necesario que el gas de la cavidad de la muestra sea un gas distinto del gas de recuento, que presente una probabilidad de absorción mucho menor (generalmente helio). Por tanto, para evitar la mezcla de gases, ambas cámaras deben estar separadas por una ventana.

Los rayos X emitidos por la muestra experimentarán necesariamente cierta atenuación en su paso a través de esta ventana antes de alcanzar el contador. Por tanto, para calcular correctamente la tasa de emisión, será necesario conocer la fracción de radiación absorbida por la ventana para poder aplicar así el co-

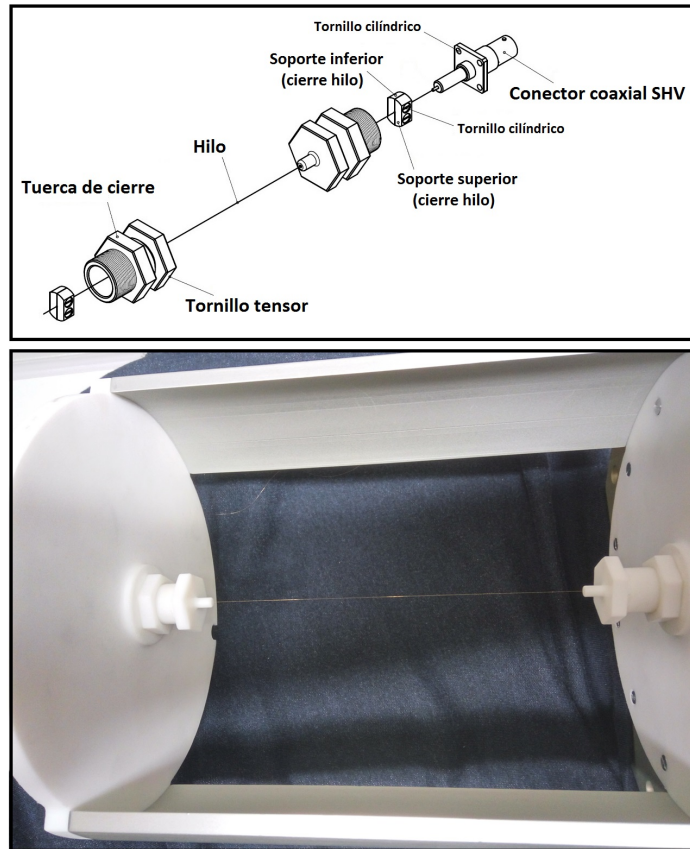


Figura 2.3: Sistema tensor del hilo de oro y su conexión con el circuito. Detalle de los planos (superior) y fotografía el interior de la cámara (inferior).

respondiente factor de corrección. Para que la contribución de la incertidumbre en este factor de corrección sea lo menor posible, es necesario minimizar la atenuación de los rayos X en la ventana. Para ello, esta debe presentar un espesor reducido y estar compuesta de un material con bajo coeficiente de absorción; es decir, de bajo número atómico.

Por otro lado, la ventana debe cumplir un papel fundamental en la correcta determinación de la tasa de emisión de rayos X : debe ser capaz de frenar los electrones emitidos por la muestra e impedir que estos alcancen el contador, para garantizar que únicamente los fotones contribuyen a la tasa de recuento. Existe, por tanto, un límite inferior al espesor que debe tener la ventana del detector.

El material habitualmente empleado es el berilio, que con $Z = 4$ constituye el elemento de menor número atómico del que resulta viable construir un material, dada la gran tendencia del litio ($Z = 3$) a la oxidación, incluso de forma virulenta, y dado que el hidrógeno ($Z = 1$) y el helio ($Z = 2$) son elementos gaseosos.

Las primeras medidas con este contador proporcional se realizaron emplean-

do una ventana de berilio de $4 \mu m$ de espesor, que presentaba una atenuación inferior al 0,3% para rayos X de $6 keV$. Sin embargo, aunque se trata de un material resistente, resultó ser demasiado rígido para permitir un correcto acoplamiento con el diafragma, de manera que no se garantizaba la perfecta hermeticidad del sistema. Además, la ventana resultó ser algo quebradiza, y tras sucesivos ciclos de vaciado y llenado de las cámaras, comenzaron a aparecer pequeñas grietas.

Como solución a estas dificultades, se decidió emplear láminas de óxido de grafeno reducido (formado principalmente por carbono, con $Z = 6$), que, si bien posee un coeficiente de atenuación algo mayor que el berilio, presenta unas propiedades mecánicas más adecuadas y permite la fabricación de láminas más delgadas. Adicionalmente, la impermeabilidad de este material al helio ha sido descrita en la bibliografía: Nair et al. verificaron que láminas de óxido de grafeno reducido de espesor submicrométrico presentan permeabilidades inferiores a $10^{-17} g/cm^2 \cdot s \cdot Pa$ [53].

Las láminas empleadas en este trabajo han sido elaboradas por A. Fernández Sotillo, de la Unidad de Pilas de Combustible del CIEMAT. Para ello, se parte de una suspensión comercial de óxido de grafeno (GO) con una concentración de $4 mg/cm^3$ como precursor. Se deposita una pequeña cantidad de esta disolución sobre una superficie hidrofóbica y se deja secar a temperatura ambiente, obteniendo así una película de óxido de grafeno “autosoportada”. A continuación se reduce la lámina químicamente mediante el tratamiento con un disolución de ácido L-ascórbico de $0,7 mg/cm^3$ a $50 ^\circ C$ durante 6 horas para obtener una lámina de óxido de grafeno reducido (rGO). La lámina autosoportada antes y después del proceso de reducción puede verse en la figura 2.4. Cuando la lámina está seca, se corta un cuadrado de $12 mm$ de lado y se coloca sobre el diafragma, ajustándola mediante una junta tórica a la tapadera de la cámara (Fig. 2.5).

Estas ventanas resultaron ser mecánicamente resistentes y permitían un buen acoplamiento con el diafragma, garantizando una separación hermética entre las dos cámaras.

En la sección 3.4 se presenta la caracterización de la ventana y el cálculo de la atenuación de los rayos X en su paso a través de ella.

2.5. Sistema de control de gases

El contador está provisto de un sistema de control de gases (figura 2.6) que permite hacer vacío en ambas cámaras simultáneamente y a continuación introducir el He y el Ar/CH_4 de manera controlada en sus respectivas cámaras de tal manera que la ventana del detector no se encuentre nunca sometida a una diferencia de presiones superior a la que es capaz de soportar. El sistema permite asimismo realizar las medidas bajo un flujo constante del Ar/CH_4 , controlado mediante una electroválvula. La operación en flujo continuo permite



Figura 2.4: Lámina de óxido de grafeno autosoportada antes de la reducción (izquierda) y lámina reducida (derecha).

barrer las posibles impurezas que puedan entrar de la atmósfera al contador a través de pequeñas filtraciones [54] (principalmente oxígeno, que favorece la recombinación), puesto que con él se realizan medidas de larga duración, de incluso varios días.

En la etapa de creación de vacío, las válvulas “todo o nada” V_1 y V_2 se encuentran abiertas y las V_3 y V_4 cerradas. El vacío se hace mediante una bomba rotatoria *Pfeiffer Dual Line*, y se controla manualmente mediante las válvulas reguladoras V_5 y V_6 para que la presión de ambas cámaras descienda a la misma velocidad. Cuando se ha completado la etapa de vacío, las válvulas V_1 y V_2 se cierran, se abren V_3 , V_4 y la electroválvula EV , y se llenan las cámaras de manera controlada mediante las válvulas V_5 y V_6 . Cuando la presión en las dos cámaras alcanza los 1000 hPa , la electroválvula se cierra automáticamente, y la válvula V_6 , que regula la entrada de He , se cierra manualmente por completo. En este momento, V_5 se abre completamente para que sea únicamente la electroválvula la que controle la entrada de Ar/CH_4 .

Cuando se ha completado la fase de llenado, la válvula reguladora V_7 se abre parcialmente hasta dejar salir un caudal de gas de 1,6 L/h . La electroválvula se abre cuando la presión en la cámara de Ar/CH_4 es inferior a 1000 hPa y se cierra cuando es superior, por lo que la medida se lleva a cabo bajo un flujo continuo de gas y a presión constante.



Figura 2.5: Colocación de la ventana de óxido de grafeno reducido en el diafragma del contador.

2.6. Electrónica empleada

Los electrones generados en el interior del contador son recogidos por un hilo de oro de $15 \mu m$ de radio, situado a lo largo del eje del cilindro, al que se le aplica un voltaje positivo. Las pruebas experimentales indicaron que $1\ 900\ V$ es un voltaje adecuado para minimizar la influencia del ruido electrónico de baja energía en la forma de los picos de los espectros de rayos X de los radionucleidos medidos, y los cálculos teóricos detallados en las secciones posteriores confirmaron que este voltaje garantiza una multiplicación reproducible de la carga.

El voltaje es suministrado por una fuente de alta tensión Bertan 315. La señal se procesa mediante un preamplificador modelo Ortec 142 PC, y a continuación es conducida a un amplificador Ortec 671, para producir una señal unipolar gaussiana positiva con un tiempo de conformación de $3 \mu s$ (ver Fig. 2.7). Se observó que un tiempo de conformación algo superior a $2 \mu s$ pero inferior a $5 \mu s$ era adecuado para, por una parte, evitar el apilamiento de señales para las tasas de recuento medidas habitualmente en este trabajo, y, por otra parte, garantizar una recogida completa de la carga en cada impulso. La señal positiva conformada por el amplificador se analiza mediante un analizador multicanal Ortec 927, que funciona bajo el principio de operación de aproximaciones sucesivas, con un tiempo de conversión de $1,25 \mu s$. Habitualmente en las medidas realizadas se ha trabajado con 8192 canales.

Fijados estos parámetros de operación, la pendiente de la calibración en energía resultante es de en torno a $3\ eV$ por canal. No obstante, cabe señalar que esta pendiente de calibración, además de depender de los parámetros de operación de la electrónica empleada, depende de las condiciones del gas en la cámara del contador, puesto que, cuanto mayor sea la densidad de moléculas, mayor es la probabilidad de que los electrones sufran recombinación en su camino

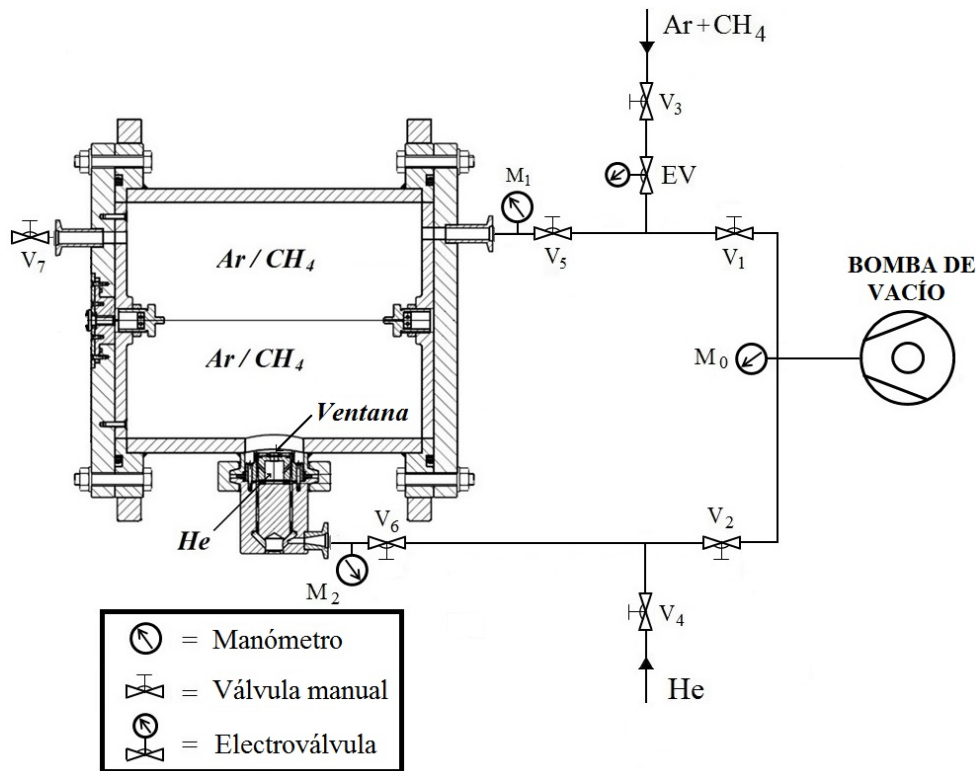


Figura 2.6: Sistema de control de gases en el contador proporcional.

hacia el ánodo, y por tanto la cantidad de carga recogida es menor. La figura 2.8 refleja la variación de la posición del centro del pico del espectro de rayos X del ^{55}Fe con la presión, manteniendo un voltaje constante de 1900 V.

La estabilidad de esta cadena electrónica se ha controlado mediante un generador de impulsos (*pulser*), comprobando que la posición en el espectro del pico debido a una señal de intensidad constante procedente del *pulser* no varía a lo largo del tiempo. Por otra parte, la correcta cuantificación del tiempo muerto del ADC se ha comprobado mediante la medida de la tasa de recuento de la señal del *pulser*. Asimismo, se ha comprobado la linealidad de la cadena, analizando la proporcionalidad entre la intensidad de las señales del pulser y su posición en el espectro (número de canal).

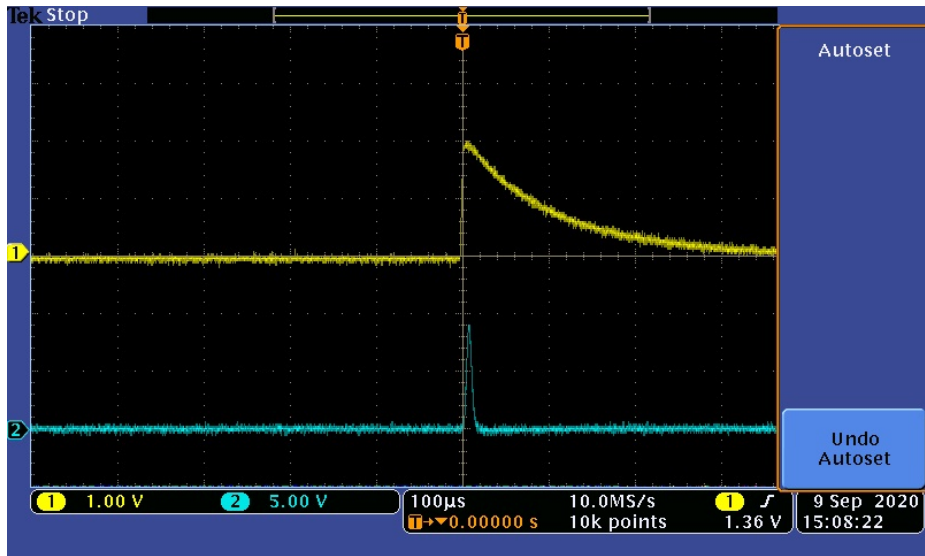


Figura 2.7: Señal de salida del preamplificador (amarilla) y del amplificador (azul) del contador proporcional recogidas mediante un osciloscopio.

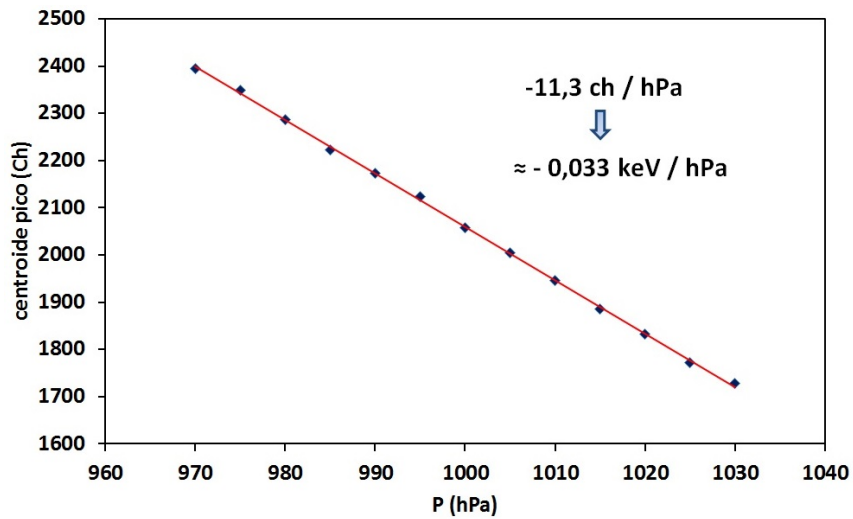


Figura 2.8: Posición del centro del pico del espectro de rayos X de ^{55}Fe en función de la presión del gas del contador.

Capítulo 3

Caracterización del contador: formación de la señal, cálculo de la eficiencia de detección y estabilidad de las medidas

3.1. Formación de la señal: creación y recogida de carga

3.1.1. Generación de carga

El código PENELOPE [55] permite conocer a las coordenadas donde se genera cada partícula en la simulación como consecuencia de una interacción, así como su energía inicial, las componentes de su velocidad y el tipo de interacción que la generó. También es posible tener acceso a un código (*ilb*) relacionado con el número de ascendientes que la vinculan con la partícula madre emitida por la fuente; así, las partículas emitidas directamente por la fuente tienen asignado un $ilb = 1$, y a una partícula generada en la interacción de una partícula con $ilb = i$ se le asigna un $ilb = i + 1$.

De esta manera, mediante simulaciones de Monte Carlo, se calculó la distribución espacial de los electrones generados como consecuencia de la emisión de haces de fotones monoenergéticos de diferentes energías. Debido al elevado coste computacional de estas simulaciones (y especialmente a la enorme extensión de los ficheros de salida con las coordenadas de todos los electrones generados), no se simuló la emisión isotrópica de fotones, sino solamente la emisión en el cono definido por la abertura del diafragma, de manera que alcanzaran el gas un número suficientemente elevado de fotones para disponer de un resultado estadísticamente significativo.

Para cada simulación se emitieron 50 000 fotones monoenergéticos. No obs-

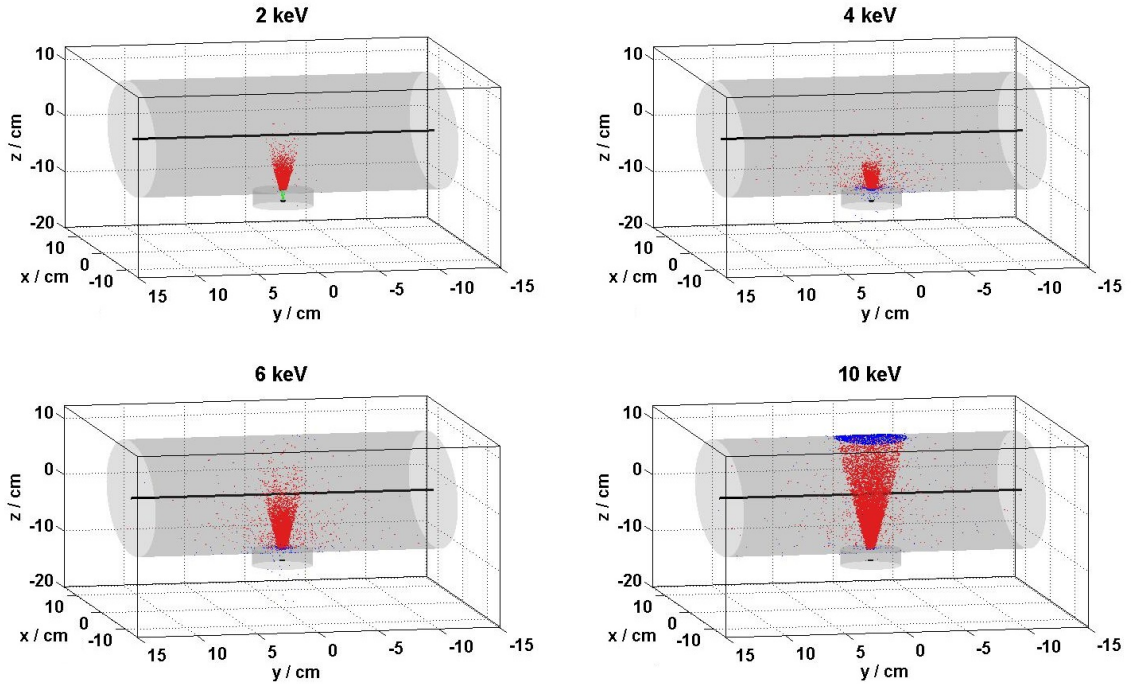


Figura 3.1: Distribución espacial de los electrones generados en el $Ar + CH_4$ (rojo), en el He (verde) en el Al (azul) cuando un haz de fotones de 2, 4, 6 y 10 keV respectivamente son emitidos hacia el contador.

tante, en las figuras no se representan todos los electrones generados, sino el resultado de una simulación de 10 000 sucesos realizada con el único objetivo de facilitar la visualización. El modelo empleado tiene en cuenta todos los materiales, incluyendo los materiales de la estructura del contador, los gases de ambas cámaras y la ventana del detector. Las simulaciones se realizaron con alto nivel de detalle, con una energía de absorción de 50 eV en todos los materiales y un límite de 0,01 entre “eventos duros” (simulados detalladamente) y “eventos blandos” (simulados como un promedio).

En la figura 3.1 se muestra la distribución espacial de los electrones generados en la interacción de fotones de 2, 4, 6 y 10 keV con el detector. En rojo se representan los electrones originados en el Ar/CH_4 , en azul los generados en el aluminio del contador, y en verde los electrones producidos en el helio. Es necesario señalar, no obstante, que no es posible registrar los electrones generados con una energía inferior a 50 eV , puesto que PENELOPE trunca los cálculos por debajo de esta cantidad. Sin embargo, la distribución espacial de la carga generada sí es realista, puesto que el recorrido libre medio un electrón de 50 eV en el gas es despreciable a escala macroscópica.

Puesto que solamente se simularon fotones emitidos hacia la cámara del detector, estas simulaciones no reflejan la fluorescencia ni la dispersión en las paredes de la cámara de la muestra ni la retrodispersión en el soporte. Para

comprobar hasta qué punto esta carencia era o no significativa a la hora de caracterizar las coordenadas del punto de interacción de los fotones con el gas (y por tanto la distribución espacial de carga dentro del contador), se llevaron a cabo posteriormente otras simulaciones en las que no se registraban las coordenadas de los electrones generados, por lo que se podían simular un número mucho mayor de eventos y por tanto se pudo simular la emisión en la esfera completa. Estas simulaciones indicaron que la fluorescencia en el aluminio de la cámara de la muestra es responsable únicamente del 0,1 % de los fotones que alcanzan el contador. Asimismo, el 0,3 % de los fotones que alcanzan la cámara del contador lo hacen como consecuencia de todos los procesos de dispersión experimentados por fotones inicialmente emitidos en otras direcciones. De ellos, la gran mayoría se deben a la retrodispersión en el soporte de la muestra, por lo que el centro dispersor se encuentra muy próximo al punto inicial de emisión, de manera que la distribución espacial de los electrones generados en el contador como consecuencia de la llegada de esos fotones retrodispersados es esencialmente idéntica a la de los fotones emitidos inicialmente en dirección al contador. Por tanto, podemos concluir que la distribución espacial de carga representada en la figura 3.1 refleja adecuadamente la realidad aunque no haya sido hallada mediante la simulación de la emisión isotrópica

Como se puede apreciar, la mayoría de los electrones se generan cerca del centro en la dirección axial, evitando así un efecto de borde que podría hacer que el proceso de recogida de carga no fuera estrictamente proporcional. Asimismo, se constata que la cantidad de electrones producidos en el aluminio tras atravesar el gas es despreciable a 6 keV , y que la carga generada en el helio no es significativa por encima de 2 keV .

3.1.2. Caracterización del campo eléctrico. Extensión de la región de multiplicación.

Con el objetivo de calcular la extensión de la zona de multiplicación y estudiar su homogeneidad a lo largo del cilindro, se llevó a cabo el cálculo del campo eléctrico en el interior del contador proporcional mediante el empleo del programa Quickfield [56].

Metodología

Este cálculo requiere modelizar la geometría del sistema, introduciendo sus elementos constitutivos en la posición adecuada y asignando un potencial a cada línea o superficie y una constante dieléctrica a cada elemento volumétrico. Con estos datos de entrada, el programa calcula el campo y el potencial eléctrico en una malla de puntos del volumen del sistema (figura 3.2). En este caso, el sistema consta de un hilo de $15 \mu\text{m}$ de radio con un potencial de 1900 V , una cavidad cilíndrica cuyo interior tiene una permitividad eléctrica relativa de 1 (puesto que una mezcla de argón y metano tiene una constante dieléctrica esencialmente igual a la del aire) y cuyas paredes están a un potencial de 0 V , dos

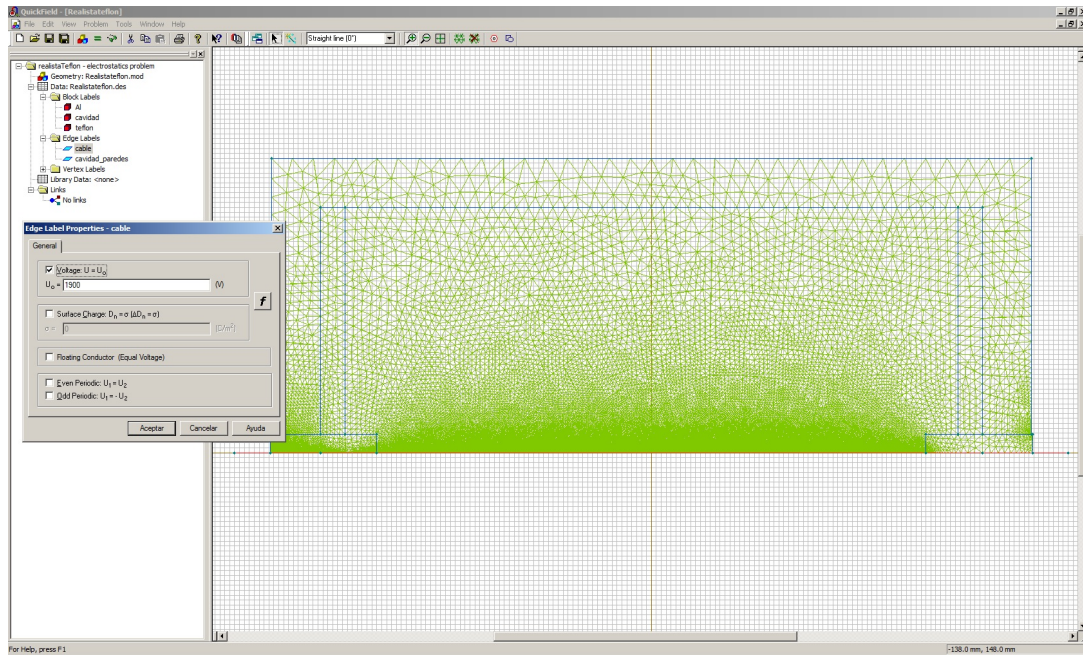


Figura 3.2: Captura de pantalla del programa Quickfield para el cálculo del campo eléctrico en el interior del contador.

paredes con permitividad relativa de 2,1 (correspondiente al teflón) en las bases del cilindro principal, y un recubrimiento al que se le asignó una permitividad suficientemente alta (10^6) para que fuera *de facto* infinita, representando así el comportamiento eléctrico de un conductor, como es el aluminio. Para ello se realizaron pruebas con permitividades relativas de 10^3 , 10^4 , 10^5 , 10^6 y 10^7 , y se constató que las diferencias en los resultados eran cada vez menores, de tal manera que la diferencia entre realizar los cálculos con una permitividad de 10^6 para el aluminio y realizarlos con 10^7 era nula.

Quickfield permite trabajar con geometría plano-paralela o axisimétrica. Puesto que la cámara del contador proporcional tiene simetría cilíndrica, esta última opción fue la que se utilizó. Para ello, es necesario dibujar la intersección del sistema con un semiplano radial, es decir, la vista de un plano (X, Y) cuya revolución en torno al eje $(X, 0)$ proporciona la geometría completa en tres dimensiones. Así, la componente x del plano del dibujo se convierte en la componente longitudinal del cilindro (\vec{l}), y la y , en la componente radial (\vec{r}).

Puesto que el sistema posee simetría cilíndrica, los resultados son idénticos en todos los puntos del espacio con igual \vec{r} y \vec{l} , independientemente del ángulo azimutal. La componente del campo perpendicular al plano del dibujo es nula, por lo que el campo eléctrico queda completamente caracterizado mediante las componentes E_r y E_l . Sin embargo, puesto que la detección se basa en la

recolección de carga en el hilo, la magnitud determinante en la caracterización eléctrica del contador es la componente radial del campo.

Fenomenología de la multiplicación de carga

En presencia de un campo eléctrico externo, los electrones generados como consecuencia de la interacción con la radiación son acelerados hacia el ánodo. Por encima de cierto valor del campo, adquieren suficiente energía cinética para ionizar nuevas moléculas a su paso. Los electrones generados en estas ionizaciones secundarias son también acelerados hacia el ánodo, por lo que pueden provocar, a su vez, nuevas ionizaciones. Se produce así un fenómeno de avalancha, que hace que la carga recogida se vea multiplicada con respecto a la generada en primera instancia.

El modelo más sencillo para reproducir el fenómeno de la multiplicación de carga se basa en asumir que el incremento de carga por unidad de espacio recorrido es proporcional a la cantidad de carga previamente existente:

$$\frac{dn}{dx} = n\alpha \quad (3.1)$$

donde el coeficiente α depende de las propiedades del gas y de la magnitud del campo eléctrico

Si el campo eléctrico es constante a lo largo de todo el recorrido (como es el caso de un sistema con geometría plano-paralela), α será una constante, y el aumento de carga a lo largo del camino recorrido seguirá simplemente un crecimiento exponencial:

$$n(x) = n_0 e^{\alpha x} \quad (3.2)$$

Sin embargo, en un sistema con geometría radial, la intensidad del campo eléctrico depende de la distancia al centro del cilindro:

$$E(r) = \frac{V}{r \ln\left(\frac{b}{a}\right)} \quad (3.3)$$

donde V es la diferencia de potencial entre el cátodo y el ánodo, b es el radio del cátodo (del cilindro del contador en este caso) y a es el radio del ánodo.

De manera general, el factor de multiplicación ($M \equiv n/n_0$) debido a la aceleración de una carga inicialmente creada fuera de la zona de multiplicación es

$$\ln M \equiv \ln \frac{n}{n_0} = \int_a^{r_c} \alpha(r) dr \quad (3.4)$$

donde r es la coordenada radial y r_c (distancia crítica o umbral) es la distancia máxima al ánodo a la cual la magnitud del campo eléctrico es suficiente para producir multiplicación.

Bajo la aproximación de que el coeficiente α es proporcional al campo eléctrico e inversamente proporcional a la presión, Diethorn [57] deduce que el factor de multiplicación sigue la ecuación

$$\ln M = \frac{V}{\ln(b/a)} \frac{\ln 2}{\Delta V} \left(\ln \frac{V}{p a \ln(b/a)} - \ln K \right) \quad (3.5)$$

donde K y ΔV son parámetros ajustables que son constantes para un gas determinado. ΔV es la diferencia de potencial bajo la cual se desplaza un electrón entre dos ionizaciones sucesivas. El valor tabulado para una mezcla de Ar/CH_4 (9:1) es de 23,6 V [58].

Obviamente la ecuación 3.5 sólo es válida para valores del voltaje que hagan que el factor de multiplicación sea superior a la unidad. Para ello, $\ln M$ tiene que ser superior a cero. El voltaje umbral por encima del cual $\ln M > 0$ es $V_u = k p a \ln(b/a)$. Para ese voltaje, el campo más alto presente en la cavidad, que ocurre en $r = a$, es

$$E_u = \frac{V_u}{a \ln(b/a)} = \frac{k p a \ln(b/a)}{a \ln(b/a)} = k p \quad (3.6)$$

Por tanto, el parámetro K no es más que el campo eléctrico mínimo por unidad de presión necesario para que haya multiplicación. Para una mezcla de argón/metano (9:1), $K = 4,8 \times 10^6 \text{ V/m} \cdot \text{bar}$ [58], es decir, $48 \text{ V/m} \cdot \text{Pa}$. En este trabajo, la presión dentro del contador es de 1000 hPa , por lo que existirá multiplicación en la zona en que el campo eléctrico supere los $4,8 \times 10^6 \text{ V/m}$.

Resultados

La figura 3.3 muestra el potencial (V) y la componente radial del campo eléctrico (E_r) en la sección logitudinal de la cavidad del contador. El voltaje se representa en forma de curvas equipotenciales, y el campo, mediante un código de colores.

La figura 3.4 extiende la representación de E_r a tres dimensiones, en forma de superficies de nivel. Puesto que Quickfield exporta los resultados únicamente en dos dimensiones (en una malla de puntos sobre el plano del dibujo), esta figura se ha elaborado generando *a posteriori* una distribución homogénea de ángulos azimutales.

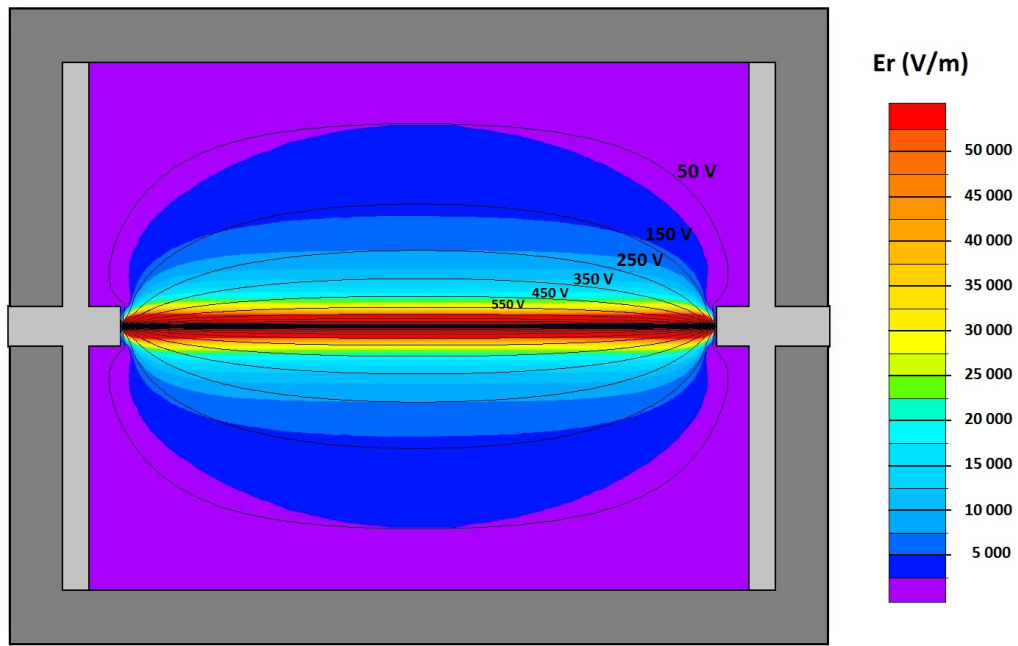


Figura 3.3: Voltaje y componente radial del campo eléctrico dentro del contador cuando la tensión del cable es de 1900 V.

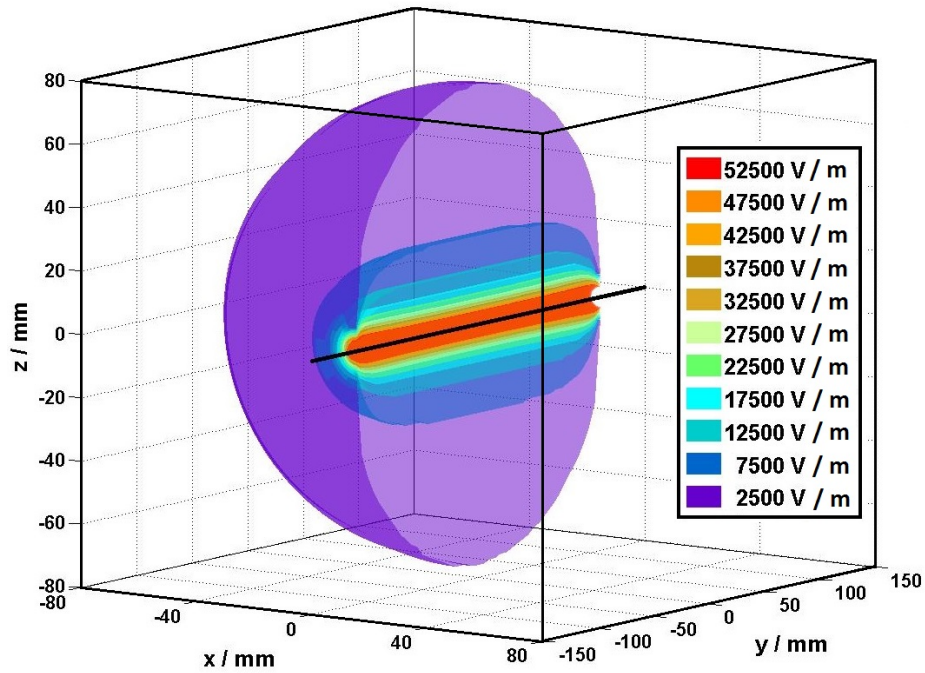


Figura 3.4: Representación, mediante superficies de nivel, de la componente radial del campo eléctrico en el interior del contador cuando el voltaje aplicado al ánodo es de 1 900 V. Obtenidas exportando los resultados de Quickfield en 2D y asignándole a cada punto (r, l) una distribución de ángulos azimutales.

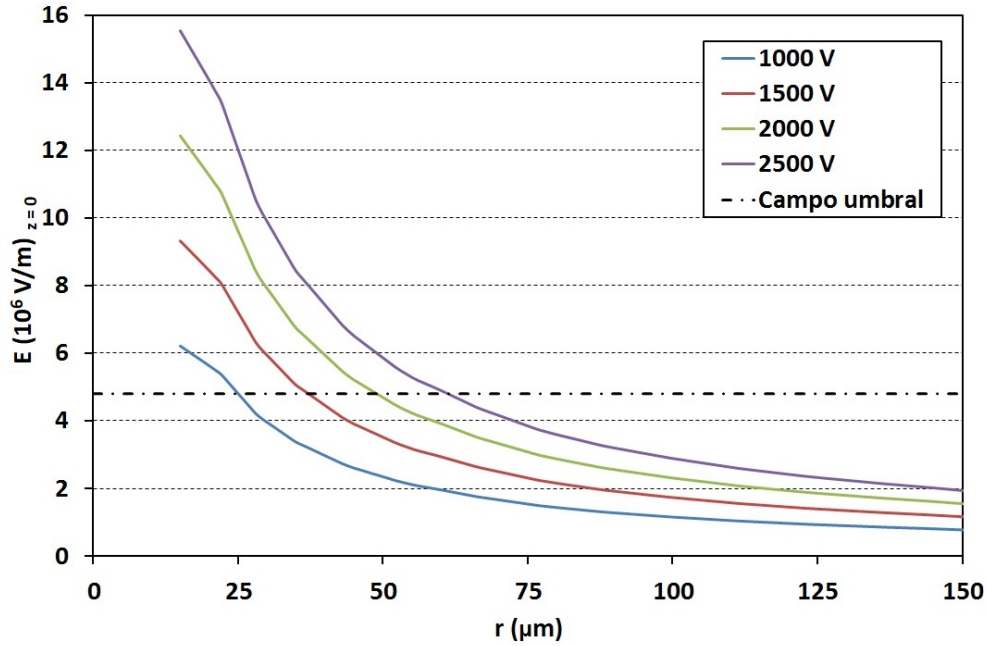


Figura 3.5: Campo eléctrico en el centro del contador ($z = 0$) en función de la distancia al ánodo para distintos valores del voltaje aplicado.

Aplicando la condición de multiplicación establecida por la ecuación de Diethorn (3.5), se ha determinado, para diferentes valores de la coordenada longitudinal, la distancia al hilo por debajo de la cual la componente radial del campo eléctrico es superior al valor umbral (Fig. 3.5), es decir, se ha delimitado la zona de multiplicación, que se representa en la figura 3.6. Para facilitar la visualización en tres dimensiones, se ha generado, como en el caso anterior, una distribución homogénea de ángulos azimutales.

Como se puede apreciar, en un amplio intervalo en torno al centro del contador (al menos entre -90 y 90 mm), la zona de multiplicación es aproximadamente cilíndrica, lo cual permite que la avalancha de carga sea similar independientemente de dónde se produzca. En este intervalo, el radio umbral es, en promedio, de 47 μm , que supone aproximadamente tres veces el radio del ánodo y representa una fracción de 2×10^{-7} del volumen del contador. Mediante las simulaciones descritas en la sección 3.1.1, se ha comprobado que la cantidad de carga generada en el interior de la zona de multiplicación es despreciable, lo cual permite que el proceso de multiplicación sea reproducible.

El cálculo del campo eléctrico en el contador se repitió para diferentes valores del voltaje aplicado al ánodo. En la figura 3.7 se representa la dependencia del radio umbral de multiplicación con el voltaje.

El V umbral por debajo del cual no hay multiplicación sería, en un cilindro perfecto, $V_u = k p a \ln(b/a) = 633,95$ V según la ecuación 3.5. Con este valor

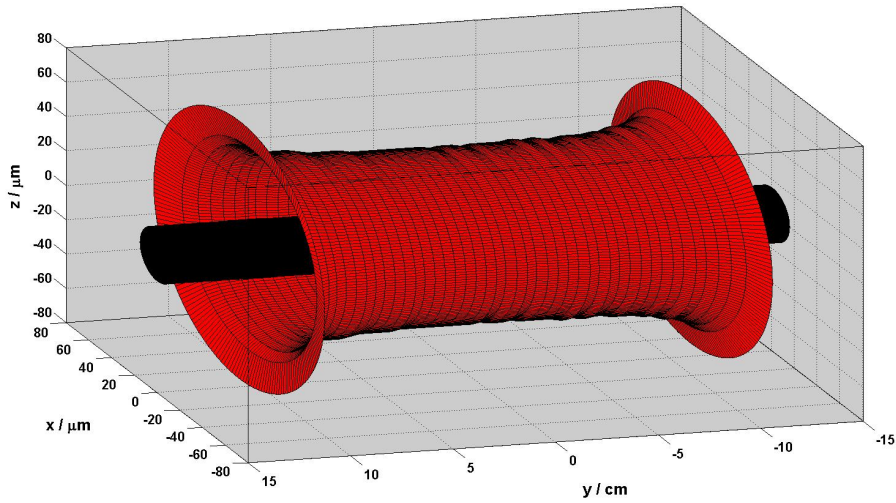


Figura 3.6: Zona de multiplicación en el contador proporcional cuando se aplica al hilo una diferencia de potencial de 1900 V. El hilo, de 15 μm de radio, se representa como un cilindro negro a lo largo del eje y . Los ejes x y z , que definen la coordenada radial, se representan a escala; el eje y , coordenada longitudinal, naturalmente no, para poder representar toda la longitud de la cámara.

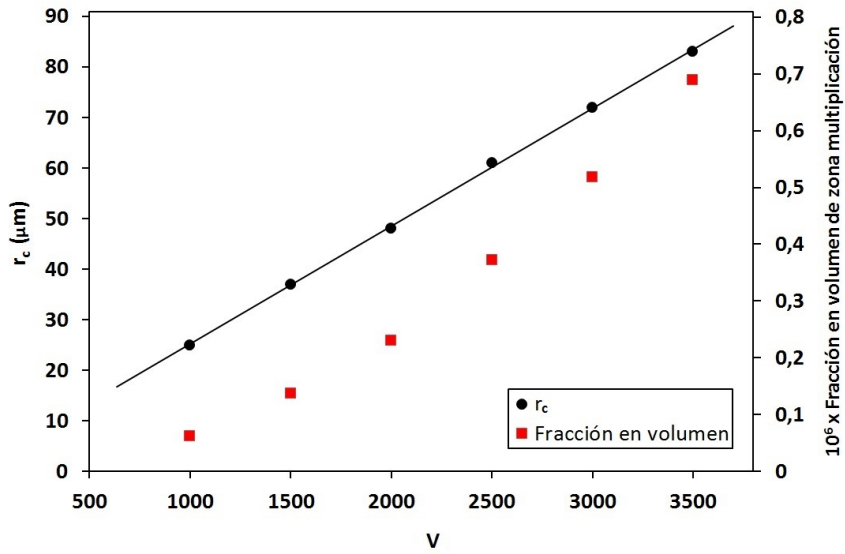


Figura 3.7: Radio umbral de multiplicación en el centro del detector ($z = 0$) en función del voltaje aplicado al ánodo.

de voltaje aplicado, el campo máximo en el interior del contador es E_u , que se alcanza en $r = a$. Por ello, en el modelo ideal, cuando V sea 633,95 V, r_c debería ser igual al radio del cable. Extrapolado en la ecuación de ajuste de la figura 3.7, cuando $V = 633,95$ V, el r_c vale 16,65 μm , que es similar al valor

nominal del radio del cable empleado ($15 \mu m$). Esto, unido al buen ajuste de los resultados, indican que, a una distancia suficiente de las paredes del detector, el fenómeno de la multiplicación se comporta como se esperaría para un cilindro infinito perfecto.

Por otro lado, la pendiente de r_c frente a V debería ser $\frac{1}{E_u \ln(b/a)} = 2,366 \times 10^{-8} m/V = 0,02366 \mu m/V$ y la ordenada en el origen nula. En el ajuste, la pendiente obtenida es de $0,0233 \mu m/V$ y la ordenada en el origen $1,8762 \mu m$, lo cual corrobora la conclusión del párrafo anterior.

3.1.3. Magnitud de la multiplicación de carga

Para las condiciones empleadas en las medidas llevadas a cabo este trabajo, el factor de multiplicación promedio asciende a aproximadamente 1050, de acuerdo con la ecuación 3.5. Según la distribución de Polya, y asumiendo un coeficiente para la varianza $b = 0,5$, el número de electrones a los que da lugar cada electrón inicial presenta una desviación estándar de 742.

Para una mezcla de Ar/CH_4 (9:1), la energía promedio necesaria para ionizar una molécula es de $26 eV$ [58]. Para el ejemplo de un haz de fotones incidentes de $6 keV$, el número de pares ion-electrón generados con la llegada de un fotón es de 231 ± 6 (asumiendo un factor de Fano de 0,18 [59]), cada uno de los cuales dará lugar en el proceso de avalancha a 1050 ± 742 . Puesto que la multiplicación total observada en cada evento (cada llegada de un fotón) es el promedio de las multiplicaciones experimentadas por cada uno de los 231 electrones primarios generados, la desviación estándar del factor de multiplicación es en realidad la desviación estándar de un conjunto de medias, que viene dividida por la raíz cuadrada del número de elementos de cada conjunto; es decir, viene dividida por la raíz cuadrada del número de electrones primarios generados en cada evento. Así, el factor de multiplicación total es de

$$M = 1050 \pm 49$$

El número de electrones totales recogidos en el ánodo para cada fotón incidente de $6 keV$ es entonces $(2,43 \pm 0,13) \cdot 10^5$. Esto supone que la mejor resolución alcanzable en un detector ideal de estas características y con estas condiciones de operación para una radiación monoenergética de $6 keV$ es del 5,4% ($0,33 keV$) en términos de desviación estándar, o 12,8% ($0,77 keV$) en términos de anchura del pico a mitad de la altura. La figura 3.8 muestra la resolución ideal para diferentes energías del rango considerado en este trabajo.

3.1.4. Transporte de carga hacia el ánodo

Además de la dispersión estadística que presentan la generación de electrones primarios y la multiplicación de carga en la avalancha, existe otra fuente de dispersión en cuanto a la cantidad de carga recogida se refiere, que procede del hecho de que los electrones tienen diferente probabilidad de sufrir recombinación

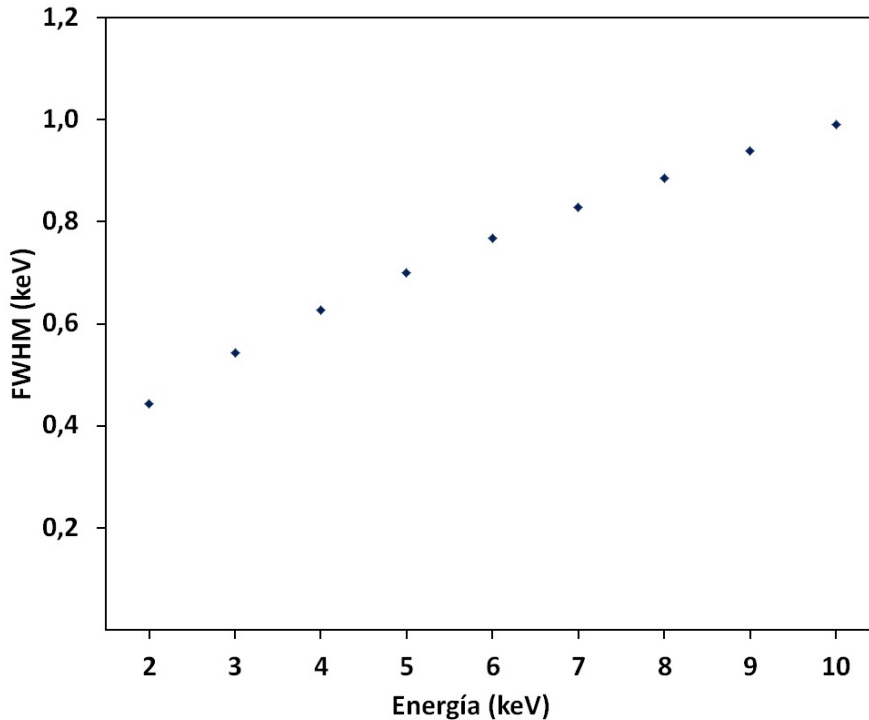


Figura 3.8: Límite estadístico de la resolución de un contador proporcional de Ar/CH_4 atendiendo a la dispersión estadística de la generación de carga, incluyendo la creación de electrones primarios y la multiplicación en el proceso de avalancha.

en función del punto del contador en el que se hayan generado, y por tanto dos eventos que inicialmente den lugar al mismo número de electrones pueden producir impulsos de diferente amplitud si el número de electrones que desaparecen debido a la recombinación es diferente en cada caso.

Se suelen definir dos tipos de recombinación en función de su inmediatez respecto del momento de generación del par ion-electrón. Se denomina “recombinación columnar”, o “recombinación inicial”, a la recombinación que se produce en las inmediaciones de la trayectoria del fotoelectrón, es decir, cerca del punto en que se genera el par, antes de que el electrón haya sido alejado de la zona bajo la acción del campo eléctrico. Por el contrario, se llama “recombinación volumétrica” a la que se produce a lo largo del recorrido del electrón hacia el ánodo bajo la acción del campo eléctrico.

La probabilidad de la recombinación columnar depende de la magnitud del campo eléctrico en el punto en que se genere la carga, puesto que de él depende la velocidad a la que se aleja el electrón de esa región. Como se puede apreciar en la figura 3.1, una radiación incidente de una energía dada puede generar electrones a muy diferentes distancias del ánodo, donde la intensidad de campo eléctrico puede, por lo tanto, ser muy distinta. La figura 3.9 muestra, para el ejemplo de una radiación incidente de 6 keV , la distribución de distancias al ánodo de los

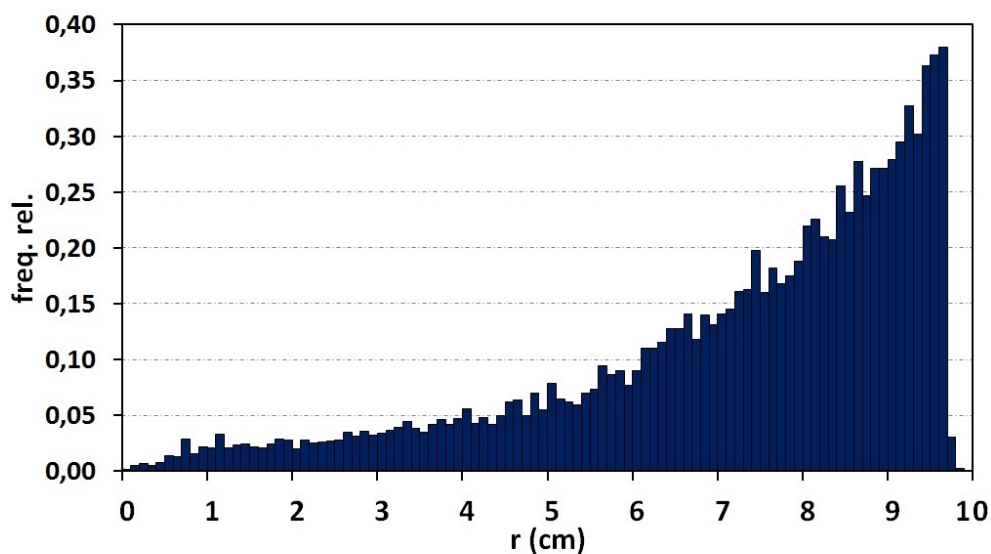


Figura 3.9: Distribución de distancias al ánodo de los electrones generados en el gas del contador debido a la incidencia de un haz de fotones de 6 keV .

Nota: el menor número de electrones generados a distancias próximas a 10 cm se debe a que la ventana del detector no se encuentra exactamente a 10 cm del ánodo sino a aproximadamente $9,7$.

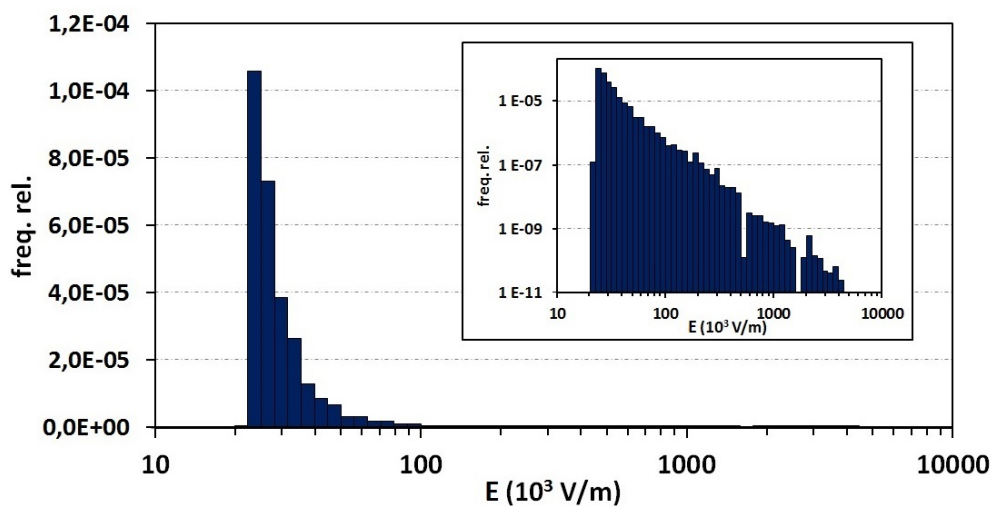


Figura 3.10: Distribución de los electrones generados por un haz monoenergético de 6 keV en función del campo eléctrico al que están sometidos en el momento de su generación.

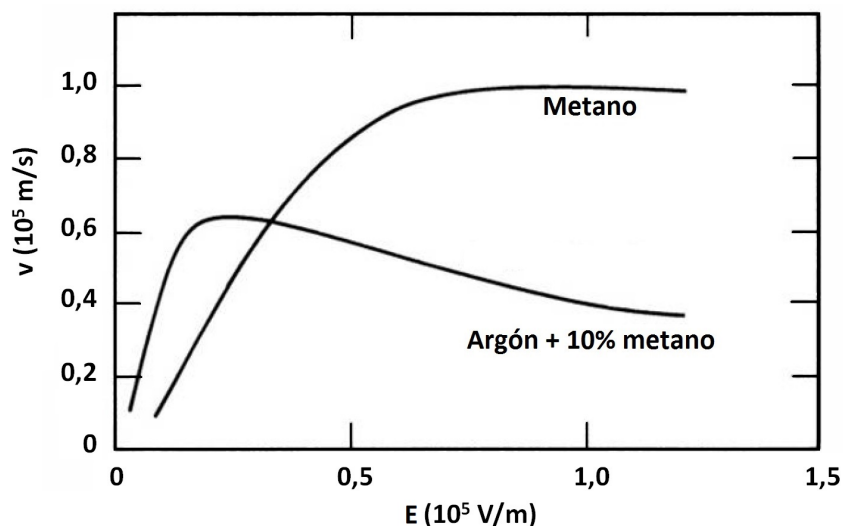


Figura 3.11: Velocidad de los electrones en función del campo eléctrico al que están sometidos. Figura extraída de [11] y modificada; datos de [60].

electrones generados en el Ar/CH_4 .

Utilizando el resultado de la distribución espacial del campo eléctrico en el contador obtenida con Quickfield, se puede calcular la intensidad del campo al que están sometidos cada uno de los electrones representados en la figura 3.1 en el momento de su generación. El histograma de la figura 3.10 muestra la proporción de electrones sometidos a diferentes valores del campo eléctrico. Como se puede apreciar, existe una importante dispersión, con una desviación típica relativa de casi el 170 %. Es decir, electrones generados por la interacción de fotones de una misma energía pueden estar sometidos a campos eléctricos muy diferentes.

Sin embargo, afortunadamente, en los hidrocarburos y en algunas mezclas de hidrocarburos y gases nobles, como es el caso de la mezcla de argón-metano empleada en este contador, la velocidad de desplazamiento de los electrones no crece de manera continua con la intensidad del campo eléctrico, sino que presenta un máximo o tiende asintóticamente hacia un valor intermedio para campos muy elevados, lo cual conduce a que la dispersión en la velocidad inicial de los electrones no sea tan grande como la dispersión en el campo eléctrico al que están sometidos. La figura 3.11 muestra la dependencia de la velocidad de los electrones con el campo eléctrico en el seno de una mezcla de Ar/CH_4 (9:1), medida por Bortner et al. [60].

Puesto que se ha calculado previamente el campo eléctrico en las coordenadas de cada electrón generado en la simulación, mediante la interpolación en la figura 3.11 es posible calcular la velocidad con la que cada uno de ellos tiende a alejarse de las proximidades de la trayectoria del fotoelectrón. Para facilitar la interpolación, la curva experimental de velocidad frente al campo proporcionada

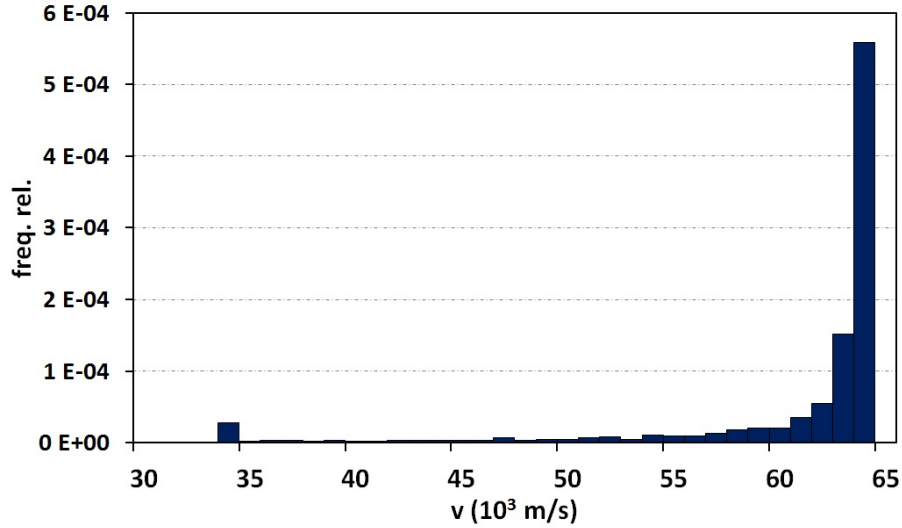


Figura 3.12: Distribución de velocidades de los electrones generados en el gas del contador como consecuencia de la incidencia de un haz de fotones de 6 keV.

por Bortner et al. fue ajustada a una función analítica, meramente empírica, de la forma

$$v(E) = A \left(1 - \frac{E}{\sigma}\right) e^{-E/\sigma} - B \operatorname{erf}\left(\frac{E - z_0}{z}\right) + C$$

que reproduce la tendencia de la curva en todo el intervalo medido por Bortner y también para campos superiores, puesto que reproduce la tendencia asintótica (incluye así todo el rango de campos calculados para los electrones generados dentro del contador).

De esta manera, se calculó la velocidad de desplazamiento de los electrones en las inmediaciones de su punto de origen; es decir, la velocidad a la que escapan de la región donde tiene lugar la recombinación columnar. La figura 3.12 recoge esta distribución de velocidades. Si bien existe cierta dispersión, esta es mucho menor que la dispersión en el campo eléctrico: la desviación estándar relativa en la velocidad es del 11 %.

Estos cálculos indican que para las condiciones de operación de este contador proporcional, aunque exista una gran dispersión en cuanto a la posición en la que se crean los portadores de carga, y por tanto en el campo eléctrico al que están sometidos, la velocidad a la que escapan de la región en la que se produce la recombinación columnar es en la práctica muy similar.

La recombinación volumétrica, por otro lado, depende del tiempo que tarda el electrón en alcanzar el ánodo, lo cual a su vez depende de la posición en que

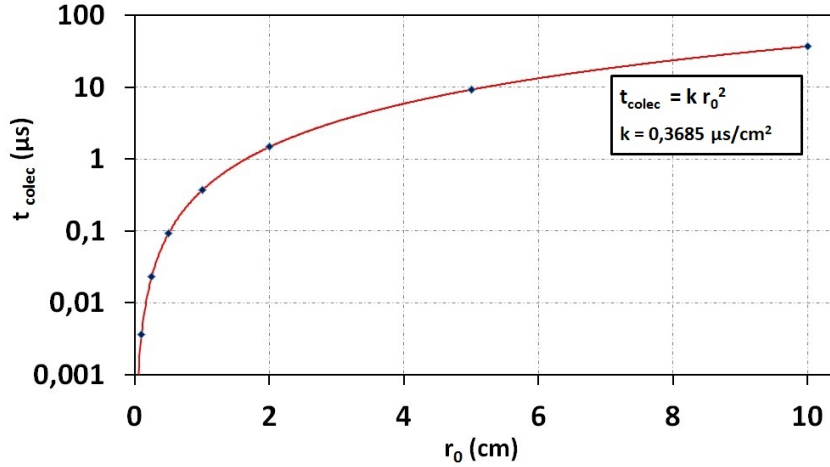


Figura 3.13: Tiempo que tarda un electrón en alcanzar la posición $r = 0$ (el ánodo) bajo la acción del campo eléctrico en función de su posición inicial, considerando un contador proporcional cilíndrico ideal de Ar/CH_4 a $20\text{ }^\circ C$ y $10^5 Pa$.

se generó.

El movimiento de un electrón en el seno de un campo eléctrico en el vacío viene descrito por

$$-\frac{d^2r}{dt^2} = \frac{e E(r)}{m_e} \quad (3.7)$$

donde e y m_e son la carga y la masa del electrón respectivamente, y $E(r)$ es el campo eléctrico en función de la posición. Sin embargo, cuando el electrón atraviesa un medio material, según la teoría clásica del transporte de electrones en la materia, la aceleración se ve reducida en una cantidad que es proporcional a la su velocidad en cada punto [61–63], según la ecuación de Langevin:

$$-\frac{d^2r}{dt^2} = \frac{e E(r)}{m_e} - \frac{1}{\tau_e} \frac{dr}{dt} \quad (3.8)$$

donde τ_e es el tiempo promedio entre colisiones, que depende de la densidad del gas (ρ) y del diámetro (σ) y la masa (m) de las moléculas que lo conforman:

$$\tau_e = \frac{4m}{\pi\rho\sigma^2} \sqrt{\frac{m_e}{3k_B T}}$$

Resolviendo numéricamente esta ecuación para el valor de r inicial de cada electrón generado, se puede calcular el tiempo que tarda cada uno en viajar hasta la posición $r = 0$ (hasta el ánodo), es decir, el tiempo de recolección (t_{colec}). Debido al enorme volumen de cálculo que supondría resolver la ecuación 3.8 para cada electrón, resulta útil hallar simplemente la dependencia del tiempo de

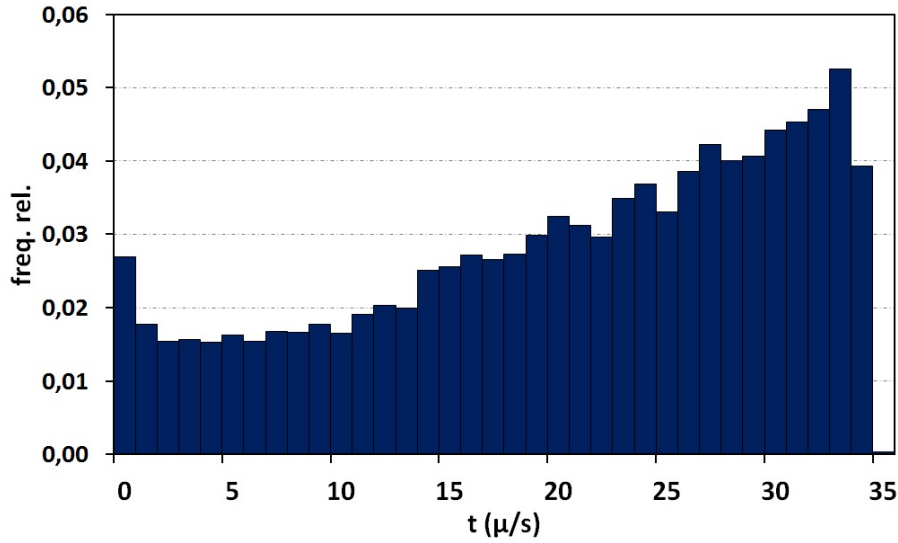


Figura 3.14: Distribución de velocidades de los electrones generados en el gas del contador como consecuencia de la incidencia de un haz de fotones de 6 keV .

recolección en función del valor inicial de r , puesto que, como señalan Manchanda et al. [61], guardan una relación sencilla de la forma $t_{colec} = Ar_0^B$. Asimismo, mientras que en todos los cálculos anteriores se ha empleado la distribución espacial del campo eléctrico obtenida con Quickfield, para hacer abordable este cálculo, se tomó la fórmula analítica del campo en función de la distancia para un cilindro ideal (ecuación 3.3).

Así se resolvió numéricamente la ecuación 3.8 para algunos valores de r inicial hasta $r = 0$, considerando las condiciones de operación ($p = 10^5 \text{ Pa}$, $T = 293 \text{ K}$) y las características del gas empleado ($Ar \ 90\% + Ar \ 90\%$, siendo los diámetros moleculares $\sigma_{Ar} = 3,504 \cdot 10^{-10} \text{ m}$ y $\sigma_{CH_4} = 3,783 \cdot 10^{-10} \text{ m}$ respectivamente [64]). Mediante un ajuste logarítmico, se observó que, efectivamente, los resultados se ajustan perfectamente a la relación $t_{colec} = Ar_0^B$ (Fig. 3.13). A modo de comprobación, se repitió el cálculo para Ar y Xe puros para comprobar que los resultados de t_{colec} frente a r_0 coincidían con los de Manchanda et al. [61].

Empleando la relación obtenida entre el tiempo de recolección y la posición inicial, se calculó el tiempo empleado por cada uno de los electrones generados en la simulación (Fig. 3.14), y se encontró así que los electrones generados más lejos del ánodo tardan en torno a $35 \mu\text{s}$ en alcanzarlo.

Desafortunadamente no se recoge en la bibliografía un estudio sistemático de la fracción de electrones que sufren recombinación en el argón en función del tiempo que tardan en alcanzar el ánodo. Sin embargo, sí se recogen evidencias de que el efecto de la recombinación volumétrica en la amplitud del impulso es prácticamente despreciable en contadores de argón (no así por ejemplo en contadores de xenón, empleado en la detección de fotones más energéticos). Manchanda et al. [61] irradian con haces colimados diferentes puntos del contador proporcional

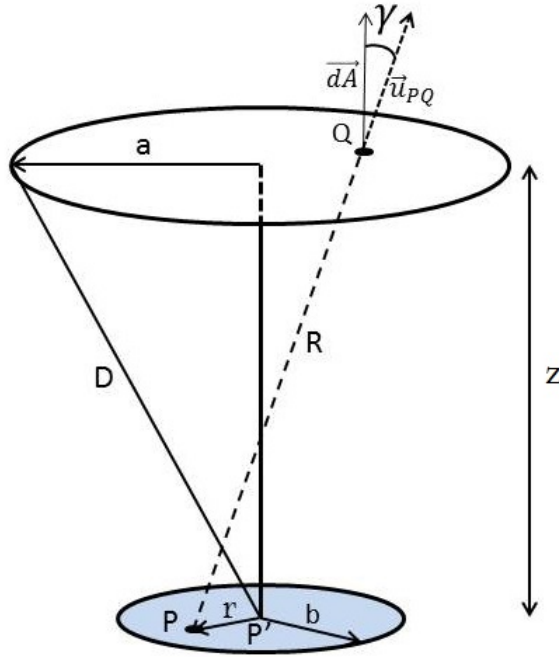


Figura 3.15: Notación utilizada en las expresiones para el cálculo.

y recogen el espectro en cada caso. Mientras que en contadores de xenón la posición de los picos del espectro se desplazan hacia energías más bajas a medida que aumenta la distancia entre el punto de incidencia y el ánodo, en el caso de contadores de argón este efecto es indetectable.

3.2. Eficiencia geométrica

Para obtener una medida precisa de la tasa de emisión de una fuente, es fundamental conocer con gran precisión el ángulo sólido con el cual se realiza la medida. Para ello se coloca la fuente en una cavidad externa al detector, y a cierta distancia un diafragma, de tal manera que solamente la radiación que pase por el diafragma entre al detector.

El ángulo sólido en un punto P definido por una abertura viene dado por la expresión

$$\Omega_P = \iint_A \cos\gamma \frac{dA}{R^2} \quad (3.9)$$

donde A es el área de la superficie definida por la abertura, R es la distancia del punto P al elemento de superficie y γ es el ángulo entre la normal al elemento de superficie (ubicado en Q) y la recta que lo une con P (ver Fig. 3.15).

La unidad del ángulo sólido en el Sistema Internacional es el estereorradián (sr), que es igual al ángulo sólido que define una superficie esférica cuya área es igual al cuadrado del radio de la esfera. Puesto que el área de la esfera es igual a $4\pi R^2$, una esfera completa abarca un ángulo sólido de $4\pi sr$. En ocasiones se expresa el ángulo sólido en relación al de la esfera, esto es, dividido entre 4π :

$$G = \frac{\Omega}{4\pi}$$

o, en su defecto, en forma de tanto por ciento.

De esta manera, dividiendo la actividad medida entre G , se obtiene la actividad total de la fuente.

La posibilidad práctica de resolver la integral 3.9 de forma analítica está supeditada a que la abertura tenga una forma sencilla donde la simetría simplifique los cálculos [65]. Lo habitual es que el diafragma que separa la muestra del contador tenga forma circular, y a esta geometría se refiere el presente trabajo.

En el caso de que la abertura sea circular, la fuente sea puntual y esté contenida en el eje de simetría de la abertura, la solución a la integral 3.9 adopta una forma sencilla:

$$\Omega_{P'} = 2\pi \left(1 - \frac{z}{\sqrt{z^2 + a^2}} \right) \quad (3.10)$$

Sin embargo, en el caso más general, que es aquel en que la fuente puntual queda fuera del eje de la abertura, no existe una manera obvia de evaluar Ω_P , sino que hay que recurrir métodos de cálculo como los que se presentan en la siguiente sección.

Si la fuente no puede considerarse puntual, es necesario promediar el ángulo sólido a todos los puntos de la fuente (ponderando con la intensidad de emisión relativa de cada punto si la intensidad no es homogénea):

$$\Omega_S = \frac{1}{I_S} \iint_S \Omega_P I_P dS \quad (3.11)$$

donde I_P es la intensidad relativa de cada punto, I_S la intensidad total y S es la superficie de la fuente (no confundir con la superficie de la abertura). Naturalmente, todos los puntos de una fuente extensa quedan fuera del eje de la abertura (salvo uno, estrictamente hablando), por lo que la integral sobre toda la fuente se debe evaluar en base al resultado obtenido para el caso general de

un punto fuera del eje. Para una distribución arbitraria de intensidad, la integral en 3.11 sólo puede ser evaluada numéricamente.

En el caso de que la intensidad sea homogénea en toda la fuente, $I_P = \frac{I_S}{\pi b^2}$, y la integral se reduce a

$$\begin{aligned}\Omega_S &= \iint_S \frac{\Omega_P}{\pi b^2} dS = 2\pi \int_0^b \frac{\Omega_P}{\pi b^2} r dr \\ \Omega_S &= \frac{2}{b^2} \int_0^b \Omega_P r dr\end{aligned}\quad (3.12)$$

donde la variable de integración r hace referencia a la coordenada radial sobre la fuente y b es el radio de la misma.

De las diferentes formas de expandir Ω_P y los diferentes métodos de integración sobre todos los puntos de la muestra, se derivan los distintos métodos que existen para hallar el ángulo sólido total.

3.2.1. Métodos para el cálculo del ángulo sólido

El cálculo del ángulo sólido en fuentes extensas ha sido abordado por diversos autores partiendo de diferentes enfoques:

1. Expandir el integrando de 3.9 en forma de serie infinita y a continuación integrar término a término el resultado de la expansión. Esta expansión del integrando se ha realizado a su vez de diversas maneras, entre las cuales cabe destacar
 - Expansión binomial, en la cual se basan los métodos recogidos en [66–69]. Estos métodos presentan grandes dificultades de integración y no ofrecen una manera obvia de obtener el término general. Sin embargo, en caso de que r/D sea superior a la unidad, puede resultar necesario recurrir al método de Zumwalt [68], que converge para cualquier valor de r/D :

$$\begin{aligned}\Omega_P &= 2\pi \left[1 - \frac{z}{\sqrt{l^2 + a^2}} \right] - 2\pi \frac{z}{l} \left[\frac{1}{2} \left(\frac{r}{l} \right)^2 \frac{1}{\lambda^5} \left(1 + \frac{5}{2} y^2 \right) \right. \\ &\quad + \frac{3}{8} \left(\frac{r}{l} \right)^4 \frac{1}{\lambda^9} \left(1 + \frac{9}{2} y^2 + \frac{63}{8} y^4 \right) \\ &\quad + \frac{5}{16} \left(\frac{r}{l} \right)^6 \frac{1}{\lambda^{13}} \left(1 + \frac{13}{2} y^2 + \frac{143}{8} y^4 + \frac{429}{16} y^6 \right) \\ &\quad \left. + \frac{35}{128} \left(\frac{r}{l} \right)^8 \frac{1}{\lambda^{17}} \left(1 + \frac{17}{2} y^2 + \frac{255}{8} y^4 + \frac{1105}{16} y^6 + \frac{12155}{128} y^8 \right) + \dots \right]\end{aligned}\quad (3.13)$$

donde $l = \sqrt{r^2 + z^2}$, $y = a/l$ y $\lambda = \sqrt{1 + y^2}$

Esta fórmula proporciona una dependencia complicada del ángulo sólido con r , y no es posible integrarla analíticamente sobre toda la superficie de la fuente para hallar una expresión general del ángulo sólido en función de b para fuentes extensas.

- Aprovechar el hecho de que Ω_P satisface la ecuación de Laplace y es simétrica respecto al eje de la abertura. En [65, 69] Jaffey demuestra que, cuando r es menor que D ,

$$\Omega_P = \Omega_{P'} + 2\pi \frac{z}{D} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n (2n+1)!}{2^{4n} (n!)^2} \left(\frac{r^2}{D^2}\right)^n \sum_{k=0}^n m_k \quad (3.14)$$

donde

$$m_k = \frac{(-1)^{k+1} (4n-2k)!}{(2n-k)! (2n-2k+1)! k!} \left(\frac{z^2}{D^2}\right)^{n-k}$$

proporcionando así un término general para el ángulo sólido en un punto, que puede ser integrado a toda la fuente, bien analítica o bien numéricamente, dependiendo de cómo sea la función que define la distribución de la actividad.

Jaffey apunta que m_k también pueden expresarse en formas de polinomios de Legendre, que están tabulados, pero esto hoy en día no supone una especial ventaja, debido al uso de ordenadores que hacen enormemente sencillo su cálculo. La serie no converge para $r > D$, y ralentiza su convergencia en las proximidades de $r = D$. Por ello, para fuentes de gran tamaño sería necesario recurrir a la expresión 3.13 y llevar a cabo una integración numérica.

La ventaja de la expansión de Jaffey es que el ángulo sólido en cualquier punto es un polinomio en r (puesto que z , D y a son constantes para una configuración dada). Por tanto, la integración sobre r es directa y es posible obtener una función analítica sencilla del ángulo sólido para una fuente extensa (Ω_S) en función de su radio (b) si es homogénea:

$$\Omega_S = \Omega_{P'} + 4\pi \frac{z}{D} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n (2n+1)!}{2^{4n} (n!)^2} \frac{1}{D^{2n}} \left(\sum_{k=0}^n m_k\right) \frac{b^{2n}}{(2n+2)} \quad (3.15)$$

donde m_k tiene el mismo significado que en la ecuación 3.14.

No es necesario siquiera que la fuente sea más pequeña que la abertura para que la serie de Jaffey converja, siempre y cuando sea menor que D . En la práctica existe una limitación a esto: la precisión computacional. Para valores de n muy grandes, hay factores en 3.15 que pueden sobrepasar el número de dígitos que maneja el programa de cálculo que se utilice, lo cual limita la precisión de cada término. Se observa, de hecho, que valores de r/D para los que no se haya alcanzado la convergencia con $n = 19$ son imposibles de computar mediante un programa que maneje

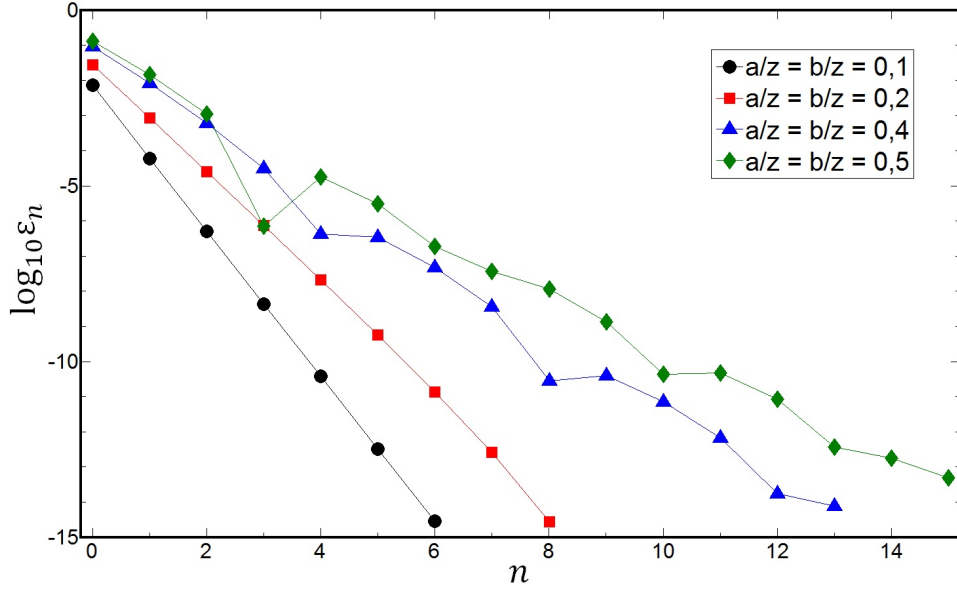


Figura 3.16: Error de truncamiento en función del número de términos de la expansión en serie para el método de Jaffey.

16 dígitos, y, en la práctica, valores de b/D superiores a 0,6 empiezan a ser problemáticos.

La figura 3.16 muestra la convergencia del método de Jaffey para distintos valores de b/z (se ha tomado el valor de a igual al de b como ejemplo para este cálculo, sabiendo que el valor de a tiene escasa incidencia en la velocidad de convergencia). Se representa el error relativo respecto al valor de convergencia (ϵ_n) en función del número de términos de corrección de la expansión (n en la ecuación 3.15):

$$\epsilon_n = \frac{|\Omega_{S,n} - \Omega_{S,n \rightarrow \infty}|}{\Omega_{S,n \rightarrow \infty}}$$

Se puede observar que, para fuentes de poca extensión comparadas con la distancia al diafragma, considerando solamente dos términos del desarrollo en serie, el error de truncamiento es del orden de 10^{-6} . Se aprecia cómo la convergencia se ralentiza a medida que aumenta el radio de la fuente, aunque, para fuentes no demasiado extensas, la serie converge sin necesidad de incluir un número excesivo de términos.

En 1949, Burt [66] había utilizado la fórmula de Blachman, basada en la expansión binomial, para escribir la corrección con respecto a una fuente puntual en forma de expansión en $\gamma = (b/z)^2$, que resulta ser equivalente a la expansión de Jaffey para fuentes homogéneas truncada después del tercer término.

2. Ruby [70, 71] demuestra que el ángulo sólido para una fuente circular homo-

génea se puede expresar en forma de funciones de Bessel como

$$\Omega_S = \frac{4\pi}{b^2} \int_0^\infty k^{-1} e^{-zk} J_1(bk) J_1(ak) dk \quad (3.16)$$

donde

$$J_1(x) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n \left(\frac{x}{2}\right)^{2n+1}}{n! (n+1)!}$$

es la función de Bessel de primer orden.

Proporciona la expresión integrada a toda la muestra, pero no una expresión analítica para la fuente puntual, por lo que sólo es válida para fuentes homogéneas. Requiere, además, que la fuente sea circular y coaxial con la abertura del diafragma. Conway lo generaliza para discos no coaxiales y para fuentes no homogéneas con una distribución arbitraria de actividad [72].

La integral de 3.16 no tiene una solución cerrada, por lo que se han propuesto diferentes expansiones:

- Expansión de Tsoulfanidis [73]: aproximación algebraica hasta de cuarto orden, válida siempre y cuando tanto a/z como b/z sean menores que la unidad

$$\Omega_S = \pi\beta \left[1 - \frac{3}{4}(\gamma + \beta) + \frac{5}{8}(\gamma^2 + \beta^2 + 3\gamma\beta) - \frac{35}{64}(\gamma^3 + \beta^3 + 6\beta\gamma(\gamma + \beta)) \right] \quad (3.17)$$

donde $\beta = (a/z)^2$ y $\gamma = (b/z)^2$

El valor que se obtiene mediante esta aproximación de cuarto orden está muy alejado del valor de convergencia que proporcionan los métodos de los cuales conocemos el término general completo (Jaffey y Ruby-Pommé).

- Pommé [74] ofrece una expansión completa de la fórmula de Ruby haciendo uso de la relación

$$\int_0^\infty e^{-y} y^n dy = n!$$

La ecuación 3.16 queda entonces

$$\Omega_S \approx \pi\beta \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} (-1)^{m+n} \beta^n \gamma^m \left(\frac{1}{2}\right)^{2(m+n)} \frac{[2(m+n)+1]!}{m! (m+1)! n! (n+1)!} \quad (3.18)$$

El autor no hace una discusión rigurosa de la convergencia de esta serie, si bien en la figura 3.17 se observa que converge rápidamente para valores pequeños de a/z y b/z y que esta convergencia se ralentiza a medida que

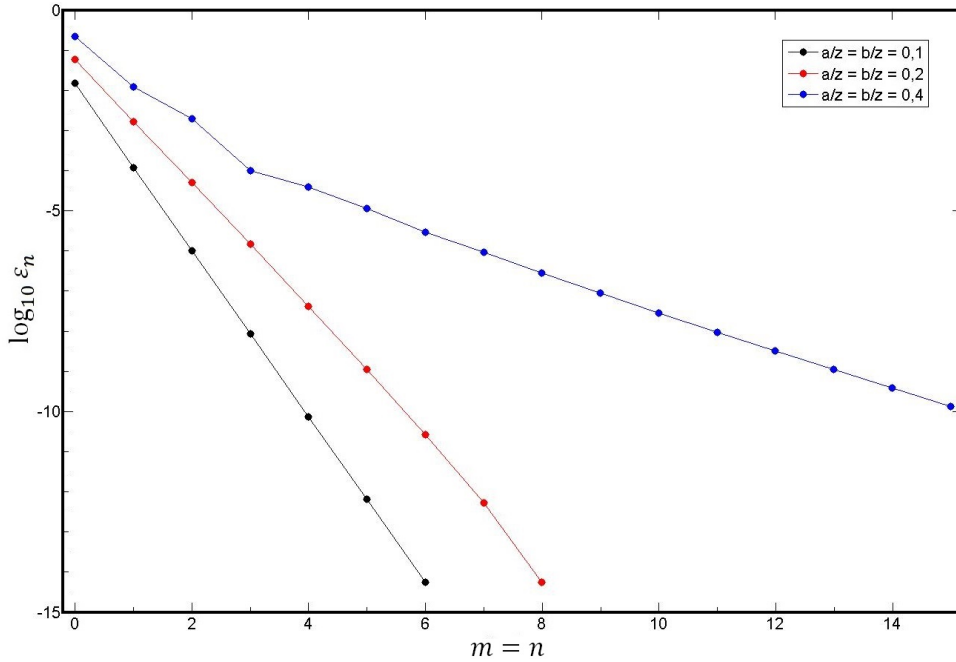


Figura 3.17: Error de truncamiento en función del número de términos de la expansión en serie para el método de Ruby-Pommé.

a y b aumentan. Como se puede observar en la ecuación 3.18, si $a = b$, m y n tienen exactamente el mismo peso en la velocidad de convergencia. Si uno de los dos es mayor que el otro, su correspondiente exponente habrá de alcanzar un mayor valor. Este método tampoco requiere, por tanto, que la fuente sea más pequeña que la abertura del diafragma. De nuevo, para valores excesivamente altos de m y n , la precisión computacional impone una limitación. Por este motivo, la convergencia se logra con dificultad para valores de a/z o b/z superiores a 0,4 si se opera con una precisión de 16 dígitos. Si se compara con la figura 3.16, se puede apreciar que, para valores pequeños del radio de la fuente y del diafragma, la convergencia de las expansiones de Jaffey y de Ruby-Pommé es muy similar, mientras que, a medida que estos aumentan, Ruby-Pommé converge con más dificultad. El valor de convergencia de Jaffey y de Ruby-Pommé son esencialmente idénticos: la diferencia de 10^{-14} , es decir, se debe a la precisión digital. Por tanto, para fuentes homogéneas, ambos métodos son igualmente válidos. Sin embargo, si la fuente no es homogénea y es preciso considerar la dependencia radial de la actividad, la fórmula de Ruby deja de ser aplicable, porque únicamente proporciona la expresión integrada a toda la superficie.

3. Pommé et. al. [75] proponen un método basado en la integración numérica para calcular el ángulo sólido en una fuente puntual, que a su vez es necesario integrar numéricamente para obtener el ángulo sólido en la fuente extensa. Se basa en separar Ω_P en dos contribuciones Ω_1 y Ω_2 :

$$\Omega_1 = \begin{cases} 2\pi (1 - \cos\theta') & \text{si } r < a \\ 0 & \text{si } r \geq a \end{cases} \quad (3.19)$$

donde

$$\theta' = \text{arc tg} \left(\frac{a-r}{z} \right)$$

y

$$\Omega_2 = \int_{\theta_1}^{\theta_2} 2(\pi - \varphi(\theta)) \text{sen}\theta \, d\theta \quad (3.20)$$

donde

$$\theta_1 = \text{arc tg} \left(\frac{|a-r|}{z} \right)$$

$$\theta_2 = \text{arc tg} \left(\frac{a+r}{z} \right)$$

$$\varphi(\theta) = \text{arc cos} \left(\frac{a^2 - (r^2 + z^2 \text{tg}^2\theta)}{2 r z \text{tg}\theta} \right)$$

de manera que el ángulo sólido es la suma de los dos términos

$$\Omega_P = \Omega_1 + \Omega_2 \quad (3.21)$$

La manera de proceder es evaluar 3.19 directamente y llevar a cabo la integración numérica de 3.20 sobre θ para obtener el valor del ángulo sólido en cada punto como una función de r , $\Omega_P(r)$, y a continuación integrar sobre r (ecuación 3.12) para obtener el ángulo sólido de una fuente extensa.

Las ecuaciones 3.19, 3.20 y 3.21 no son una aproximación. Sin embargo, la evaluación de las integrales no es analítica, por lo que la precisión del método depende la precisión en la evaluación numérica de las integrales. Para lograr un error inferior a 10^{-6} en la integración numérica sobre θ con un método eficiente (como el método de Simpson, cuyo error depende inversamente de la quinta potencia del número de puntos), es necesario evaluar, en el caso más desfavorable, del orden de 6400 puntos. El caso más desfavorable es aquel en que el intervalo de integración ($\theta_2 - \theta_1$) es máximo, lo cual ocurre cuando $a = r$ y $z \rightarrow 0$, valores para los cuales el intervalo de integración en θ es $\pi/2$. Para valores altos de z , el número de puntos requeridos se reduce considerablemente.

La evaluación de la integral sobre r es mucho más eficiente, puesto que el método de Simpson se basa en ajustar ternas de puntos a un polinomio de segundo grado, y, para valores pequeños de r/D , Ω_P se aproxima mucho precisamente a un polinomio de grado 2 (Fig. 3.18), como se deduce ya del hecho de que el primer término de la expansión de Jaffey (ecuación 3.14) es proporcional a r^2 . Por tanto, cuando b/D es mucho menor que la unidad, basta con evaluar unos pocos puntos para realizar la integral numérica sobre

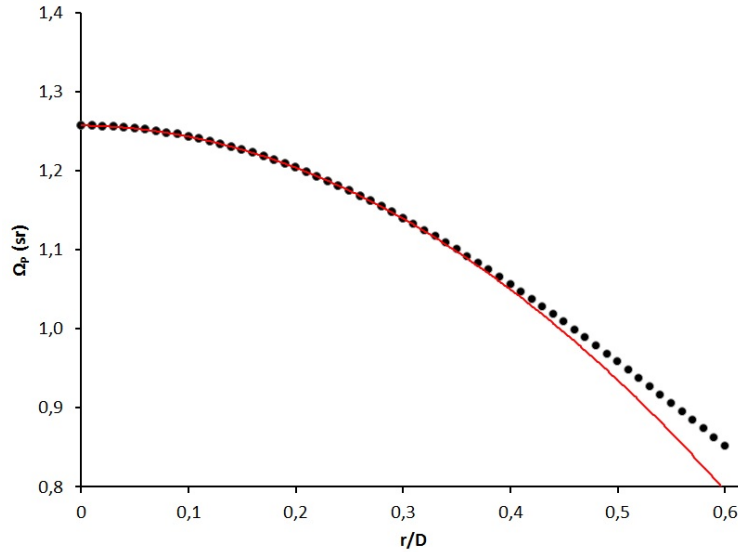


Figura 3.18: Ángulo sólido definido por una abertura circular en un punto para distintos valores de r/D . La curva roja corresponde a un polinomio de segundo grado.

r . Incluso cuando b es similar a D , no es necesario evaluar más allá de 25 puntos para obtener errores inferiores a 10^{-6} .

Este método no requiere que la muestra sea homogénea: en la integración numérica sobre r se puede tener en cuenta la distribución radial de actividades. Sí hace falta que la fuente extensa sea circular, que esté centrada en el eje del diafragma y que su actividad presente simetría radial. El método es válido para cualquier valor de r , por lo que se presenta como el procedimiento óptimo cuando la fuente es demasiado grande como para aplicar la expansión de Jaffey.

Cabe señalar que todos los métodos descritos hasta este punto requieren que la abertura del diafragma sea circular y que la fuente y el diafragma estén dispuestos en planos paralelos y sean coaxiales. El detector desarrollado en el presente trabajo cumple tales condiciones, por lo que estos métodos resultan suficientes. Sin embargo, en caso de que se quisiera abordar un problema con una geometría distinta, habría que recurrir a métodos más complejos como los desarrollados por Conway [72, 76–80] o Prata [81].

3.2.2. Método elegido

Puesto que en el presente trabajo se ha utilizado un detector con una relación b/D pequeña, r/D es mucho menor que la unidad en todos los puntos de la fuente, por lo que el método de Jaffey y el de Ruby-Pommé son perfectamente válidos y equivalentes.

Si bien se realizaron las medidas con un diafragma de abertura circular y disponiendo la fuente paralela a este, existe una dificultad práctica a la hora de colocar la fuente perfectamente centrada en el eje de la abertura del diafragma, por lo que resulta conveniente calcular el ángulo sólido correspondiente a una fuente circular desplazada, para evaluar así la incertidumbre correspondiente a la colocación de la fuente. Para ello, se optó por calcular la integral sobre la fuente numéricamente, lo cual requiere conocer el ángulo sólido de una fuente puntual en función de r . Por este motivo, se ha optado por emplear el método de Jaffey, y esta opción se ha mantenido también para el caso de una fuente perfectamente centrada.

Puesto que la ecuación en coordenadas polares de una circunferencia centrada en $(c, 0)$ es

$$r(\theta) = c \cos\theta + \sqrt{b^2 - c^2 \sin^2\theta} \quad (3.22)$$

si $b > c$, el ángulo sólido de la fuente extensa se puede calcular como

$$\Omega_S = \frac{1}{\pi b^2} \int_0^{2\pi} \int_0^{c \cos\theta + \sqrt{b^2 - c^2 \sin^2\theta}} \Omega_P r dr d\theta \quad (3.23)$$

Esta integral (3.23) es la que se evaluará más adelante para determinar el efecto del desplazamiento respecto al centro en el ángulo sólido de la fuente extensa.

3.2.3. Geometría y dimensiones de la pieza utilizada

Para definir con precisión el ángulo sólido, se utilizó para alojar las fuentes una cavidad como la que se muestra en la figura 3.19. El ángulo sólido está definido por el radio de la abertura del diafragma (a) y la distancia de este a la fuente (z), suma de b y c . Debajo del portamuestras se dispone un muelle que garantiza que la parte superior de la fuente se encuentra en contacto con la base del cilindro más pequeño, de manera que, sea cual sea el espesor de la fuente, la distancia de la parte superior de esta al diafragma es siempre constante.

La elección de las dimensiones de la pieza ha de hacerse atendiendo a dos cuestiones fundamentales: por una parte, es necesario que el haz de rayos X esté lo más colimado posible, por lo que el ángulo sólido no puede ser demasiado grande; por otra, se va a trabajar con fuentes muy poco activas, por lo que el ángulo sólido no puede ser demasiado pequeño. En este trabajo se ha optado por un ángulo sólido de en torno a 0,5%. Para ello es necesario que la relación a/z sea aproximadamente 0,14 (ver Fig. 3.20). Asimismo, se debe tener en cuenta que, cuanto mayor sea la dimensión z , mayor será la atenuación por parte del helio. Con el objetivo de mantener esta atenuación por debajo del 0,25% en todo el rango de energías considerado, se buscó mantener la altura de la cámara en

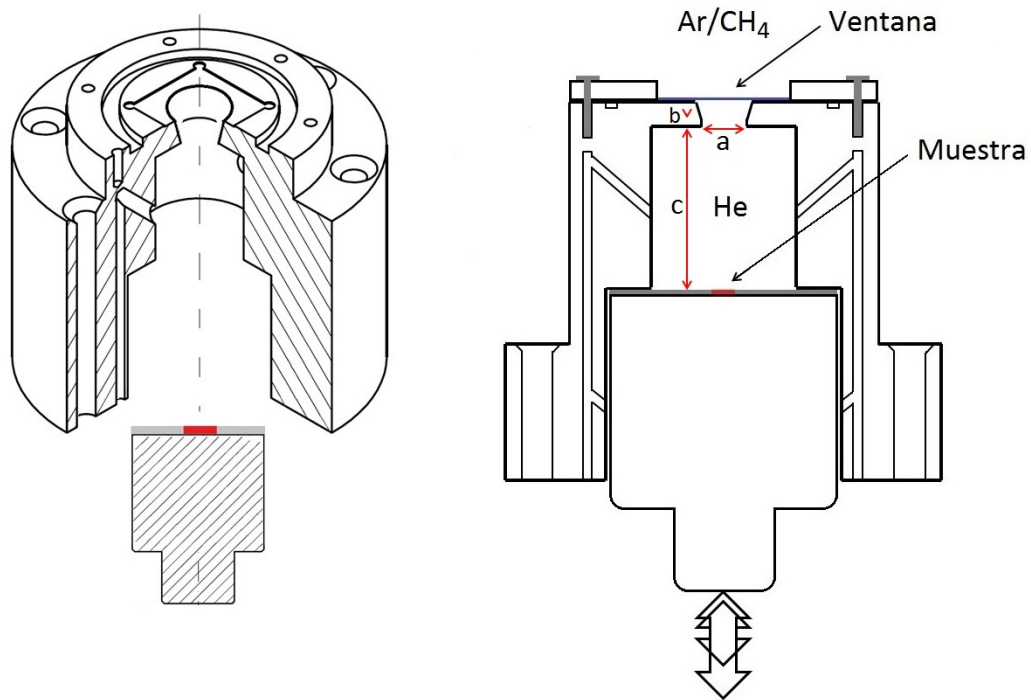


Figura 3.19: Esquema en dos y en tres dimensiones del sistema de control del ángulo sólido.

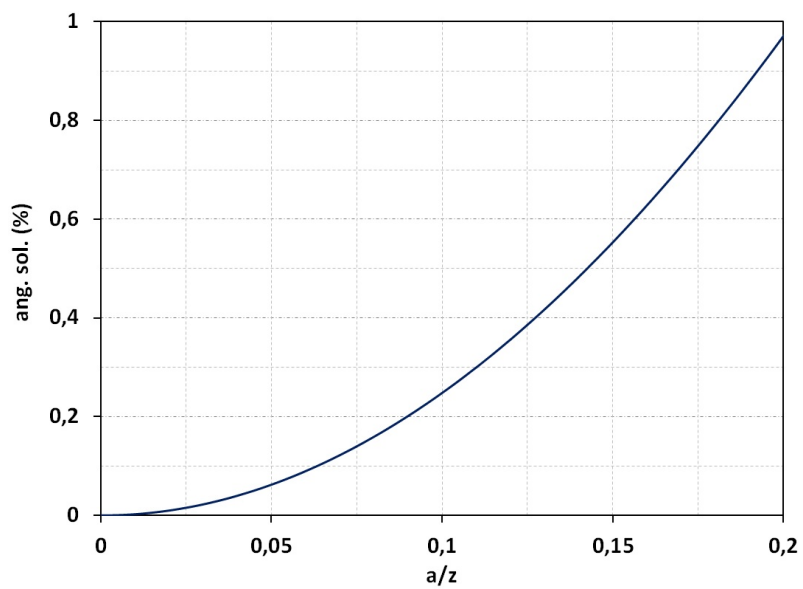


Figura 3.20: Ángulo sólido para una fuente puntual en función de la relación entre el diámetro del diaphragma (a) y la distancia de la fuente al diafragma (z).

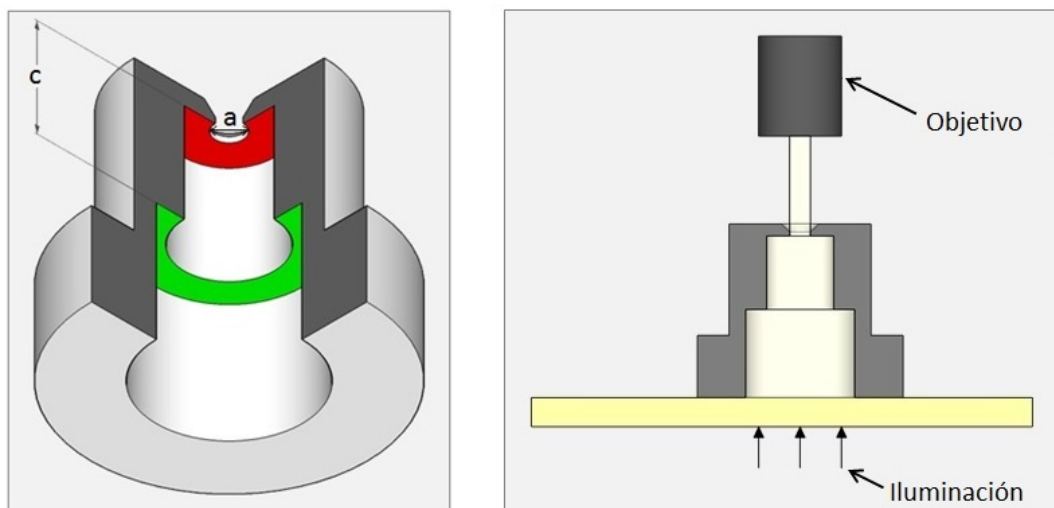


Figura 3.21: Esquema de la medida de la pieza por la técnica de medición óptica.

torno a los 2 cm (incluyendo el espesor del diafragma, de $0,25\text{ cm}$). Atendiendo a todas estas consideraciones, la pieza se diseñó con un radio nominal para el diafragma de $2,5\text{ mm}$ y una distancia vertical de $18,5\text{ mm}$, lo cual define un ángulo sólido de en torno al $0,45\%$ para una fuente puntual.

No obstante, estas dimensiones fueron medidas de forma precisa para determinar correctamente eficiencia geométrica del instrumento con la menor incertidumbre posible.

El diámetro del diafragma (a) y la altura (c) fueron medidos en el Área de Longitud e Ingeniería de Precisión del Centro Español de Metrología (CEM) (ver figura 3.21). El diámetro a fue medido mediante visión en una máquina de tres coordenadas, iluminando la pieza desde debajo con luz de platina y recogiendo en un objetivo la luz que pasa a través de la abertura del diafragma. Se midieron las coordenadas de 360 puntos situados en el borde de la zona iluminada y se ajustaron por mínimos cuadrados a una circunferencia, obteniendo así su diámetro. La tabla 3.1 recoge los resultados obtenidos en cada una de las cinco veces que se repitió el proceso

El parámetro “redondez” hace referencia a la dispersión de los diámetros, tomados como una distribución rectangular (esto es, el mayor valor menos el menor). De esta manera, la incertidumbre total del diámetro es la compuesta por la dispersión de las cinco medidas con la incertidumbre derivada de la dispersión de los diámetros.

La altura se midió mediante un palpador, tomando como referencia el plano inferior (en verde en el dibujo) y midiendo las distancias verticales a ocho puntos de la superficie superior (roja en el dibujo) muestreados de manera equidistante, repitiendo la medida cuatro veces para cada punto.

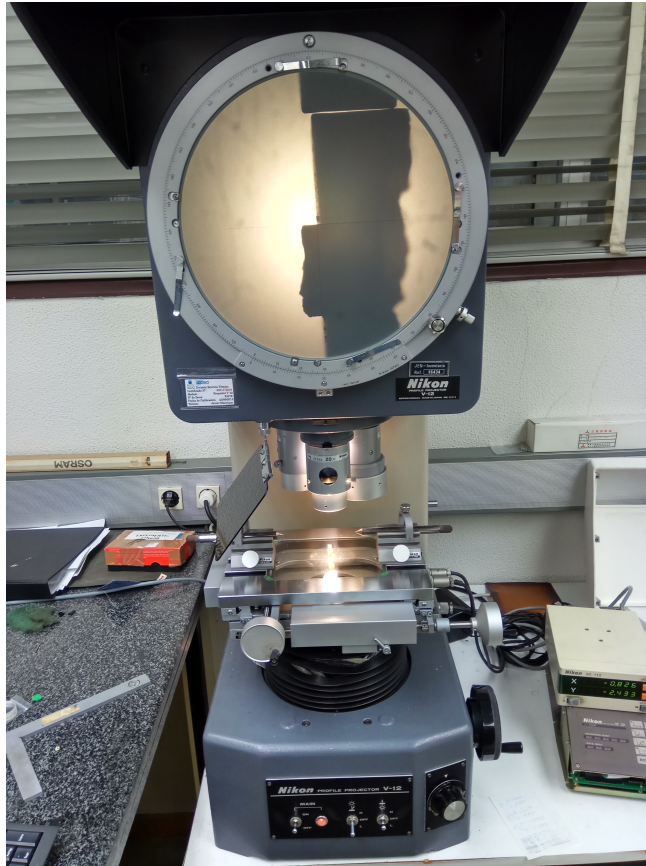


Figura 3.22: Fotografía de la medida de la réplica con el proyector de perfiles para la determinación de la altura de la parte cilíndrica del diafragma.

Puesto que se ha medido la distancia entre dos planos en varios puntos, ha sido posible determinar el ángulo existente entre planos. Así, se ha encontrado que este ángulo de $0,006^\circ$, de manera que en la práctica es válida la aproximación de que los planos son paralelos.

Mediante estas medidas, se han determinado las dimensiones de a y c .

$$a = (2,5289 \pm 0,0032) \text{ mm } (k = 1)$$

$$c = (17,6924 \pm 0,0016) \text{ mm } (k = 1)$$

Sin embargo, la altura b , correspondiente a la altura de la parte cilíndrica del diafragma, resulta difícil de medir directamente, por lo que se realizó una réplica del interior mediante una resina artificial y se midió la réplica mediante un proyector de perfiles (ver figura 3.22) en la Unidad de Caracterización Mecánica de Materiales Metálicos del CIEMAT.

$$b = (0,85 \pm 0,05) \text{ mm}$$

A partir de las medidas de b y c , la distancia vertical que define el ángulo

MEDIDA	Radio (mm)	Redondez
1	2,5289	0,0109
2	2,5290	0,0105
3	2,5290	0,0108
4	2,5289	0,0106
5	2,5289	0,0108
Promedio	2,5289	0,0107
Desv. est.	$6,22 \cdot 10^{-5}$	

Tabla 3.1: Resultados de la medida del radio del diagrama a partir del ajuste a una circunferencia de las coordenadas de 360 puntos, repetida cinco veces.

sólido es: $z = b + c = (18,54 \pm 0,05) \text{ mm}$

Estas dimensiones proporcionan un valor de ángulo sólido de

$$G = (0,4587 \pm 0,0027) \%$$

para una fuente puntual.

No obstante, cuando la aproximación de fuente puntual no es válida, la eficiencia geométrica para unas dimensiones dadas depende de la extensión de la fuente (Fig. 3.23). Asimismo, puede existir cierta desviación de su posición con respecto del centro del soporte, que también afecta al ángulo sólido de medida (Fig. 3.24).

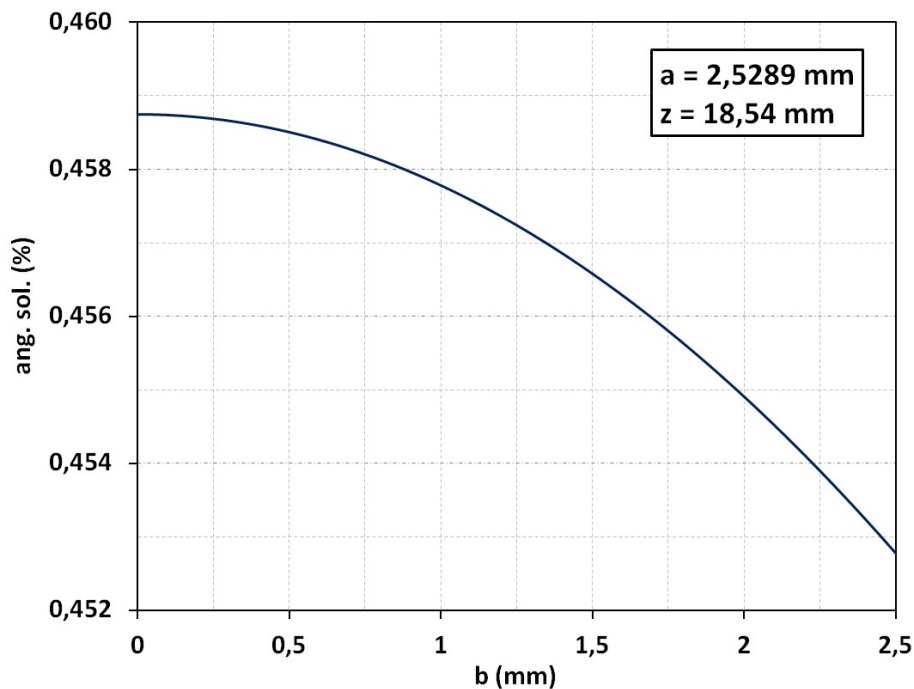


Figura 3.23: Ángulo sólido de medida con la pieza utilizada en función del radio de la fuente (b).

Es necesario, pues, caracterizar cada fuente que se mide para determinar adecuadamente la eficiencia geométrica real. En este trabajo, esta caracterización se llevó a cabo mediante una autorradiografía de cada muestra, que proporciona la distribución detallada de actividad sobre el soporte, dando cuenta simultáneamente de la extensión de la fuente, posibles descentramientos e incluso posibles inhomogeneidades en la distribución de actividad [82]. Para ello, se coloca encima de la fuente una pantalla fosforescente tipo “Imaging screen-*K*” de Kodak, y se introduce en una caja opaca, de manera que la película no se vea afectada por la luz ultravioleta y visible del ambiente. El tiempo de exposición óptimo depende de la energía y el tipo de emisión de cada radionucleido y de la actividad de la fuente. Tiempos de exposición demasiado cortos producen una imagen demasiado débil para ser revelada correctamente, mientras que tiempos demasiado largos conducen a una saturación de la película. Se determinó que para fuentes de ^{55}Fe de entre 15 y 20 kBq , como las que se miden en la sección 4.3, un tiempo de exposición de una hora resulta adecuado. Pasado ese tiempo, se retira la película y se revela mediante un escáner tipo Pharos FX, y se transforma en un mapa de bits de 100×100 píxeles en que la intensidad de color refleja la distribución superficial de actividad (Fig. 3.25). A continuación se evalúa numéricamente la integral de la expresión de Jaffey para el ángulo sólido en cada punto (ecuación 3.14) sobre la superficie de la muestra.

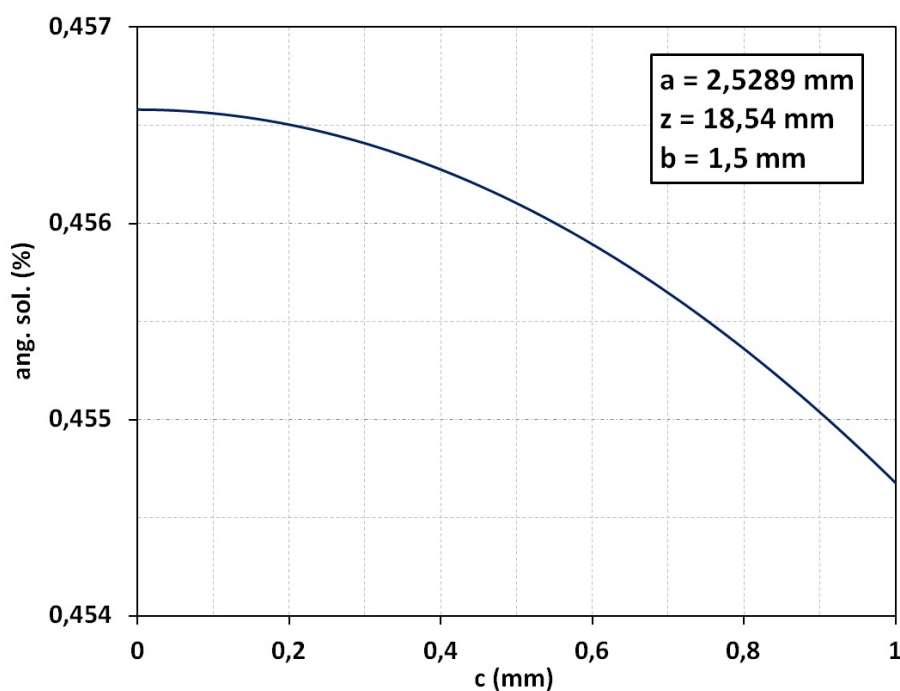


Figura 3.24: Ángulo sólido de medida con la pieza utilizada y su-
puesta una fuente de 1,5 cm de radio en función del descentramiento
respecto al centro del soporte.

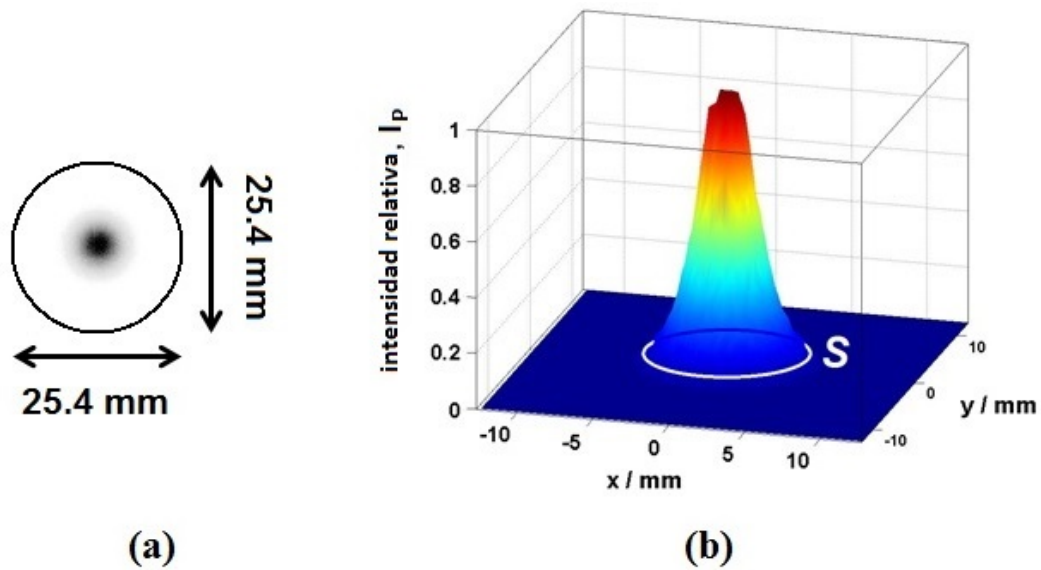


Figura 3.25: Autorradiografía de la fuente de ^{55}Fe (izquierda) y mapa de la actividad relativa obtenida de esta (derecha).

3.3. Corrección por la probabilidad de interacción con el gas de recuento

Uno de los factores que determinan a la eficiencia intrínseca del detector es la probabilidad de que los fotones que alcanzan el interior de la cámara del contador interactúen con el gas y depositen en él parte o la totalidad de su energía, ya que esta es la condición indispensable para que sean detectados. En el diseño del instrumento, el diámetro se estableció de tal manera que la gran mayoría de los fotones interaccionaran con el gas, para mantener la eficiencia intrínseca lo más alta posible. Sin embargo, la probabilidad de interacción se aleja significativamente del 100 % para el tramo más alto del intervalo de energías considerado, por lo que es necesario aplicar el correspondiente factor de corrección.

Mediante el código PENELOPE [55], se calculó la probabilidad de interacción de los fotones con el gas del contador a la presión de 1000 hPa en función de la energía. Para ello, se simuló la emisión de haces de fotones monoenergéticos desde la posición de la fuente y se calculó la fracción de fotones detectados en el gas. La figura 3.26 muestra el modelo geométrico del detector utilizado en las simulaciones de Monte Carlo (se muestra la pieza donde se aloja la muestra separada del contador para una mejor visualización).

Puesto que el objetivo en este punto es exclusivamente calcular la fracción de fotones detectados entre los que penetran en el contador exclusivamente, en las simulaciones se retiraron todos los materiales que se encuentran en la trayectoria

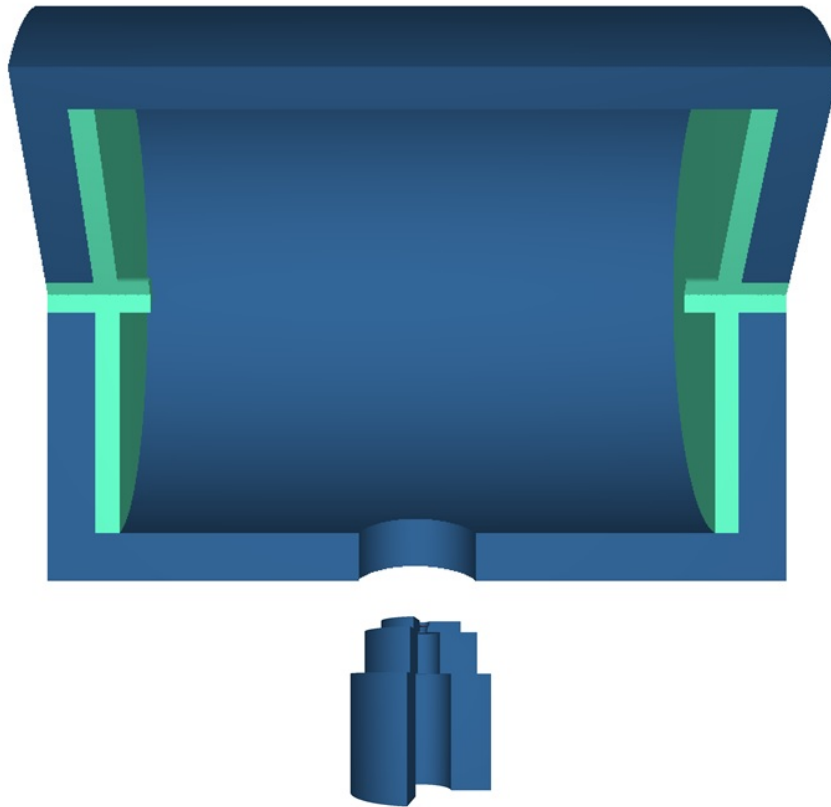


Figura 3.26: Modelo del contador para la simulación por Monte Carlo.

de estos fotones antes de alcanzar el contador; es decir, suprimió el helio de la cámara de la muestra y el material de la ventana. Por el mismo motivo, en lugar de simular una fuente isotrópica, se simuló la emisión dentro del cono definido por la abertura del diafragma, de manera que todos los fotones emitidos alcanzaran la cavidad de Ar/CH_4 . Todas las simulaciones de esta sección se realizaron con un millón de fotones emitidos, y con alto nivel de detalle: imponiendo una energía de truncamiento de $50 eV$.

En la figura 3.27 se representa la probabilidad de interacción de los fotones con el gas. Como se puede observar, la probabilidad es superior al 90% hasta una energía de $9 keV$, y la corrección es incluso despreciable para una energía de $6 keV$, correspondiente a la línea de emisión del ^{55}Fe , lo cual minimiza la contribución de este factor a la incertidumbre en la determinación de la tasa de emisión. Los cálculos se repitieron para una presión de $2000 hPa$ para considerar una posible ampliación del rango de energías en el futuro.

El mínimo local que presenta esta curva en las proximidades de $3 keV$ se debe a un mínimo en la sección eficaz de interacción fotoeléctrica del $Ar + CH_4$ (ver figura 3.28), que disminuye antes de volver a aumentar abruptamente al alcanzar la energía de ionización de los electrones de la capa K en $3,2 keV$. Sin embargo, puesto que esto ocurre en una región en que la eficiencia es superior

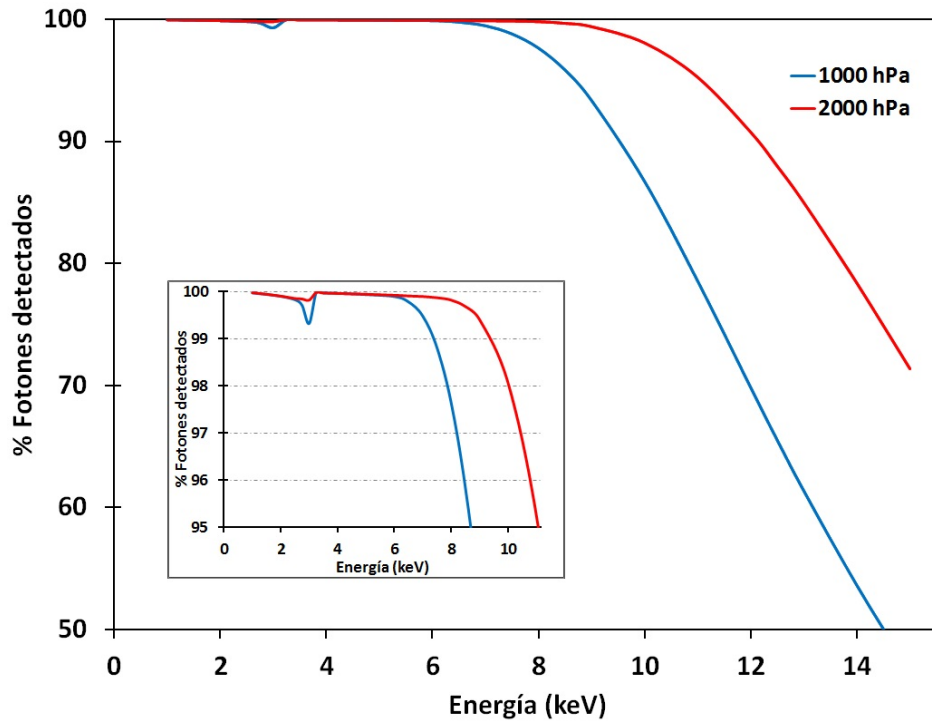


Figura 3.27: Proporción de fotones que depositan su energía en el $Ar + CH_4$ de entre todos los que alcanzan esa cavidad.

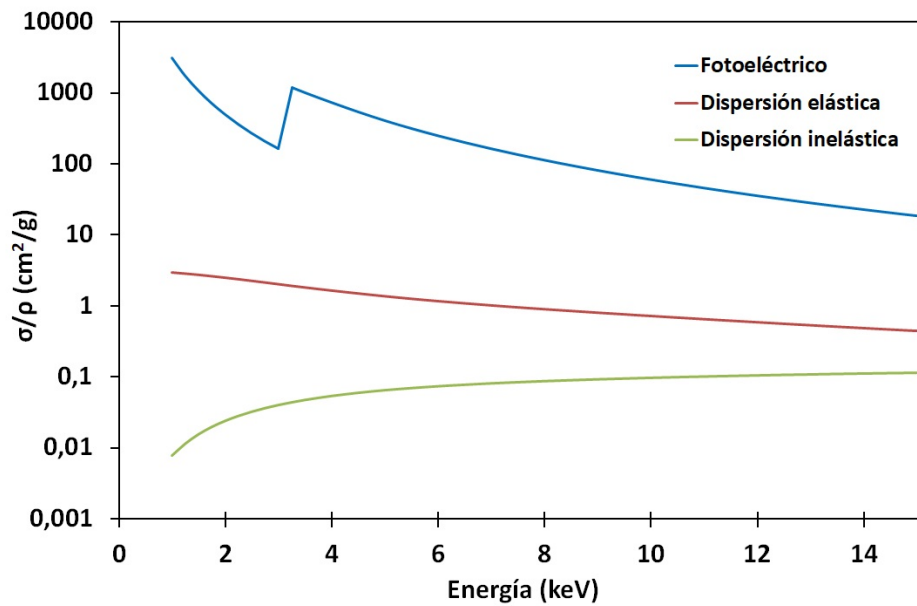


Figura 3.28: Secciones eficaces de interacción fotoeléctrica, dispersión elástica y dispersión inelástica para una mezcla de $Ar + CH_4$ en fracción molar 9:1.

al 99 %, la incidencia de esta variación es pequeña (a 2000 *hPa* esta incidencia es aún menor, puesto que la eficiencia en esa región es muy próxima al 100 %).

3.4. Atenuación en la ventana del detector. Caracterización de su composición y medida del espesor.

Otro de los factores que afectan a la eficiencia de detección es la atenuación de la radiación en su paso a través de la ventana que separa el volumen del contador de la cámara donde se aloja la muestra. Si bien la ventana de este detector tiene un espesor muy reducido y está compuesta mayoritariamente de carbono (cuya sección eficaz de interacción es relativamente baja), la atenuación de los fotones puede ser significativa, especialmente para las energías más bajas, por lo que es necesario calcular de manera precisa esta contribución.

Para calcular correctamente la atenuación de la radiación en la ventana, es necesario conocer con precisión su composición química y su espesor. Estas dos variables dependen de las condiciones experimentales de su síntesis: temperatura, tiempo de reducción, concentración del agente reductor, etc. Sin embargo, esta dependencia no es completamente reproducible, por lo que es necesario caracterizar cada ventana de manera individual.

El óxido de grafeno presenta grupos funcionales unidos a la estructura de carbono, que contienen elementos como oxígeno, nitrógeno y algunos otros en menor proporción. La reducción del óxido de grafeno implica la eliminación de estos grupos funcionales, por lo que, en el caso ideal, la lámina resultante estaría formada exclusivamente de carbono. Sin embargo, en la práctica, la reducción de este material dista mucho de ser completa [83], por lo que la composición de las láminas obtenidas resulta ser más compleja. Por tanto, para calcular correctamente la atenuación de los rayos *X* en la ventana, es imprescindible conocer su composición.

La composición elemental de las ventanas fue determinada en el CIEMAT mediante la combinación de espectroscopía fotoeléctrica de rayos *X* (XPS) y medidas de reflectancia infrarroja total atenuada con transformada de Fourier (ATR-FTIR):

C : 81,6 %
O : 16,5 %
N : 1,0 %
Si : 0,9 %

El reducido espesor de la ventana impide obtener una medida precisa por

métodos puramente mecánicos, por lo que en este trabajo se optó por realizar una medida indirecta mediante el poder de frenado de partículas α .

3.4.1. Interacción de las partículas α con la materia

Las partículas α interactúan fundamentalmente mediante fuerzas de Coulomb con los núcleos y electrones presentes en la materia. Puesto que los electrones son más externos, las interacciones tienen lugar con estos de manera preferente.

En cada interacción, la partícula α transmite al electrón una fracción de su energía, que puede ser suficiente para llevarlo a un nivel excitado o incluso para expulsarlo del átomo. De acuerdo con los principios de conservación del momento lineal y de la energía, la energía máxima que una partícula α puede transmitir a un electrón en una interacción es $4Em_0/m$ (siendo E la energía de la partícula y m_0 y m la masa del electrón y de la partícula α respectivamente), lo cual supone una pequeña fracción de su energía. En consecuencia, la partícula α pierde energía gradualmente, de tal manera que la pérdida de energía puede ser considerada continua en la práctica. Esto contrasta con la interacción de los fotones con la materia, que pueden perder toda su energía o una fracción significativa de ella en una sola interacción.

El poder de frenado (S) es la pérdida de la energía de una partícula cargada por unidad de distancia recorrida en el interior de un material:

$$S = -\frac{dE}{dx} \quad (3.24)$$

La fórmula de Bethe proporciona una aproximación clásica para el poder de frenado de partículas cargadas en un material [84]:

$$S = -\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 z^2}{m_0 v^2} N B \quad (3.25)$$

donde

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

siendo v y z la velocidad y el número atómico de la partícula incidente, Z el número atómico del material atravesado, N el número de átomos de este material por unidad de volumen, y m_0 y e la masa y la carga del electrón respectivamente. El parámetro I es un parámetro experimental que se asocia a la energía promedio de excitación y de ionización del material.

De la ecuación 3.25 se deduce que la pérdida de energía por unidad de distancia recorrida aumenta cuando disminuye la energía de la partícula, puesto que, cuanto menor sea la velocidad, más tiempo permanece la partícula en el segmento $(x, x + dx)$ y por tanto puede sufrir un mayor número de interacciones en esa distancia recorrida. Por ello, el poder de frenado aumenta a medida que

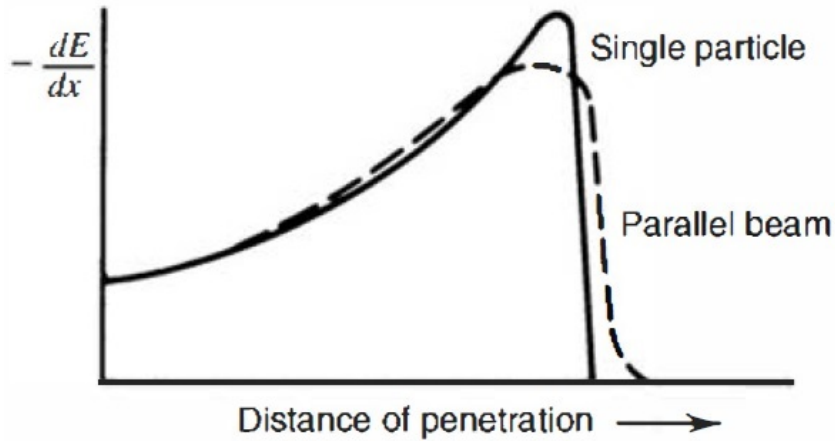


Figura 3.29: Poder de frenado de una partícula cargada a medida que penetra en un material. Figura extraída de [11].

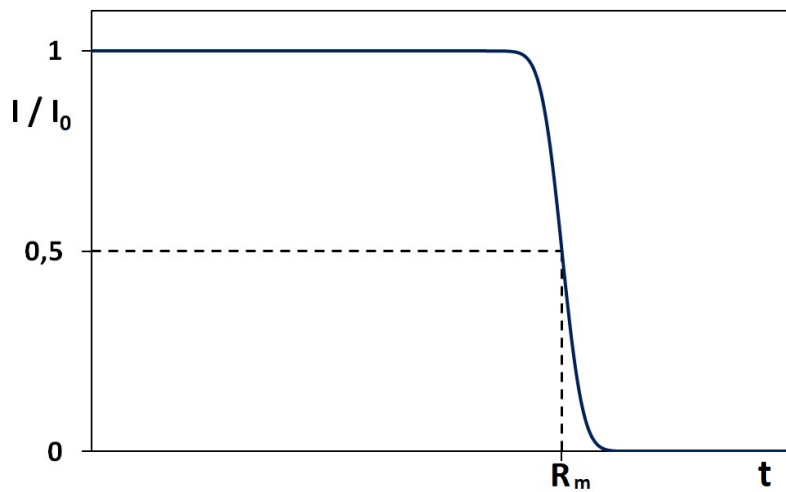


Figura 3.30: Fracción de partículas α que atraviesan una lámina en función del espesor de esta.

la partícula penetra en el material. Sin embargo, por debajo de cierta energía, la partícula cargada es capaz de captar electrones del medio (proceso del que no da cuenta la ecuación 3.25). Al disminuir su carga, la intensidad de las interacciones disminuye, y se reduce con ello el poder de frenado. La curva de Bragg (figura 3.29) representa la evolución del poder de frenado a medida que la partícula cargada penetra en el material.

Para espesores del material suficientemente pequeños, el único efecto de las interacciones es reducir la energía de las partículas, sin que disminuya el número de partículas que logran atravesarlo. Cuando la pérdida de energía promedio de las partículas se aproxima a la energía inicial, debido a la naturaleza probabilística del proceso, algunas de ellas pierden toda su energía y no son capaces de atravesarlo. La cantidad de partículas que logran atravesarlo dis-

minuye paulatinamente con el espesor del material hasta que, por encima de un cierto valor, todas las partículas incidentes pierden toda su energía inicial y son absorbidas (figura 3.30). El espesor de material para el cual la mitad de las partículas incidentes son absorbidas se llama alcance medio (R_m).

La fórmula de Bethe (ecuación 3.25), además de ser únicamente una aproximación clásica válida para energías suficientemente altas, no es integrable, por lo que no es posible hallar una expresión analítica de la pérdida total de energía ($-\Delta E$) en función del espesor del material atravesado (t). Por ello es necesario llevar a cabo una simulación de la interacción de un haz de partículas α con el material que describa la evolución de cada partícula y arroje como resultado la energía que conservan después de haber atravesado una lámina de un determinado espesor. Esta simulación habrá de hacer uso de los poderes de frenado de la partícula cargada en el material tabulados para distintas energías. Los poderes de frenado para una serie de iones pesados fueron recogidos por J. F. Ziegler, J. P. Biersack, U. Littmark [85], y en particular por Ziegler en [86] los de las partículas α . En el presente trabajo se empleó el programa *SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter)* [87], para realizar una simulación de Monte Carlo de un haz de partículas α que hace uso de los datos recogidos por Ziegler et. al.

De esta manera, midiendo la pérdida de energía que experimenta un haz de partículas α , se puede conocer el espesor del material que estas atraviesan.

3.4.2. Medida del espesor de la ventana utilizada

Las partículas α utilizadas fueron las procedentes de una fuente de ^{240}Pu . El ^{240}Pu emite mayoritariamente partículas α de 5123,6 keV con una probabilidad del 27,16 % y de 5168,13 keV con una probabilidad del 72,74 %. Se midió el espectro de emisión de partículas α del ^{240}Pu con un detector *PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon)* (figura 3.31 azul). Se utilizaron los dos picos del ^{240}Pu para calibrar el espectro en energía, obteniendo la relación entre el número de canal y la energía de la partícula incidente. A continuación se interpuso la ventana de grafeno y se registró el espectro de nuevo (figura 3.31 rojo). Como se puede apreciar, el pico se desplaza hacia energías más bajas. Mediante el desplazamiento en el número de canales se calculó el desplazamiento en energía. A continuación, mediante el programa *SRIM* se calculó la relación entre el espesor másico de la ventana y la pérdida de energía, para interpolar así la pérdida de energía medida y hallar el espesor de la ventana.

Como se observa en la figura 3.31, ambos picos están bien resueltos en el espectro medido directamente. Sin embargo, en el espectro medido con la ventana interpuesta entre la fuente y el detector, los picos se ensanchan notablemente y se hacen indistinguibles, debido a la dispersión estadística que existe en la pérdida de energía que experimentan las partículas α al atravesar el material. Por ese motivo, se utilizó como referencia la energía promedio de ambas emisiones ponderada con sus respectivas probabilidades.

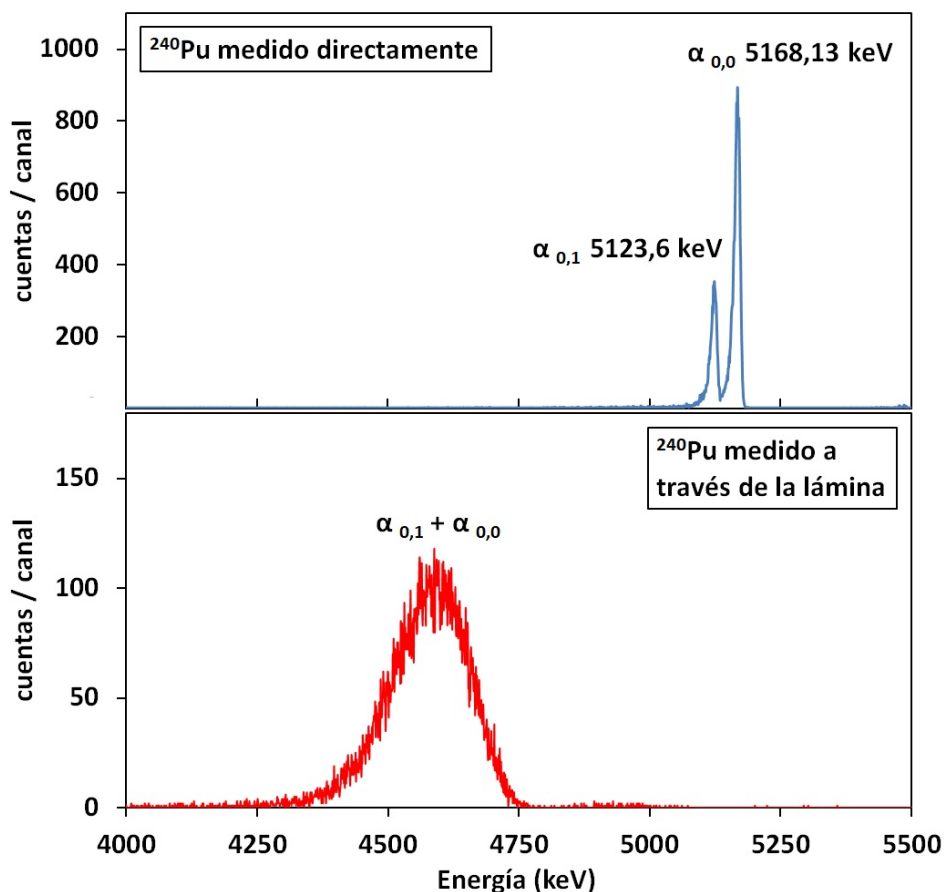


Figura 3.31: Espectro α de una fuente de ^{240}Pu medido directamente (superior) y medido con la ventana de grafeno interpuesta entre la fuente y el detector (inferior).

Mediante el programa *SRIM* (figura 3.32), se calculó la pérdida de energía esperada cuando un haz de 2716 partículas α de 5123,6 keV y 7274 de 5168,13 keV incide sobre una lámina cuya composición elemental es la composición medida para estas ventanas, y de diferentes espesores máxicos entre 300 y 1500 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$. Los cálculos indican que los espesores considerados son lo suficientemente pequeños para que no haya absorción significativa de partículas α en la lámina; es decir, que atraviesan la lámina todas las partículas emitidas, y el único efecto es que pierden parte de su energía. Este resultado se ve confirmado experimentalmente por el hecho de que el área de ambos espectros en la figura 3.31 es igual dentro de la incertidumbre estadística.

A modo de ejemplo, la figura 3.33 recoge la distribución de energías con que las partículas α salen de la lámina (E_{out}) cuando el espesor de esta es de aproximadamente 1 mg/cm^2 , y la convolución de dicha distribución con una función gaussiana que simula la respuesta del detector, cuya resolución (anchura a mitad de la altura) es de 8 keV.

En la figura 3.34 se observa que, en el intervalo considerado, la relación de

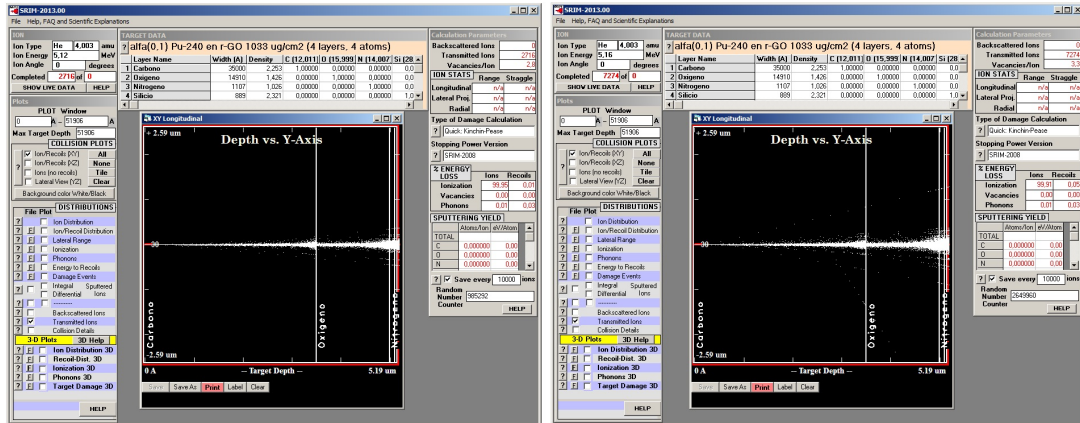


Figura 3.32: Salida gráfica de la simulación mediante el programa SRIM de un haz de partículas α de 5123,6 (izquierda) y 5168,13 keV (derecha) atravesando una lámina de C (81,6%), O (16,5%), N (1,0%), Si (0,9%) de espesor másico total $1033 \mu g/cm^2$.

la pérdida de energía ($-\Delta E$) con el espesor másico de la lámina (ρ_A) es prácticamente lineal, por lo que se puede inferir el espesor una lámina determinada por interpolación una vez medida la pérdida de energía de un haz de partículas α .

Para medir la pérdida de energía, se midió cinco veces el espectro sin inter-

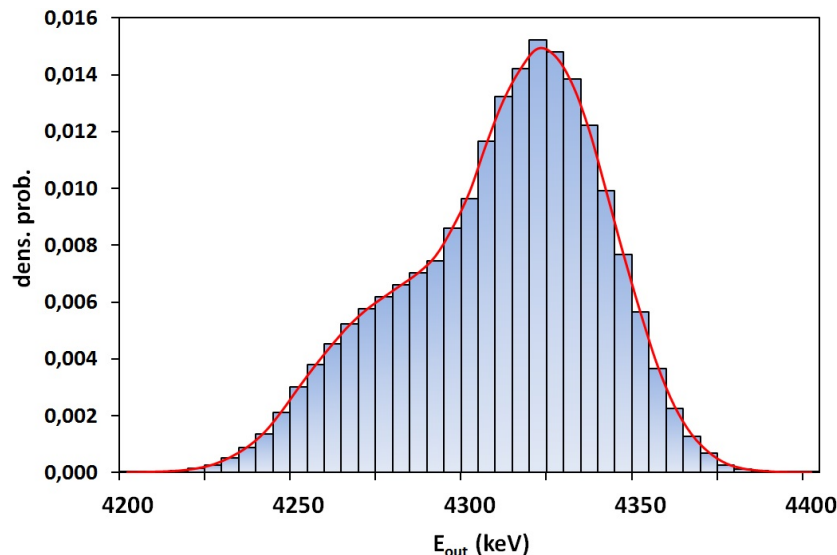


Figura 3.33: Distribución energética de un haz de partículas α procedentes de una fuente de ^{240}Pu que atraviesan una lámina de óxido de grafeno reducido de $1033 \mu g/cm^2$ de espesor másico, calculada mediante el programa SRIM. La curva roja muestra la convolución de esta distribución con una función gaussiana cuya anchura a mitad de la altura es 8 keV , que simula la respuesta del detector.

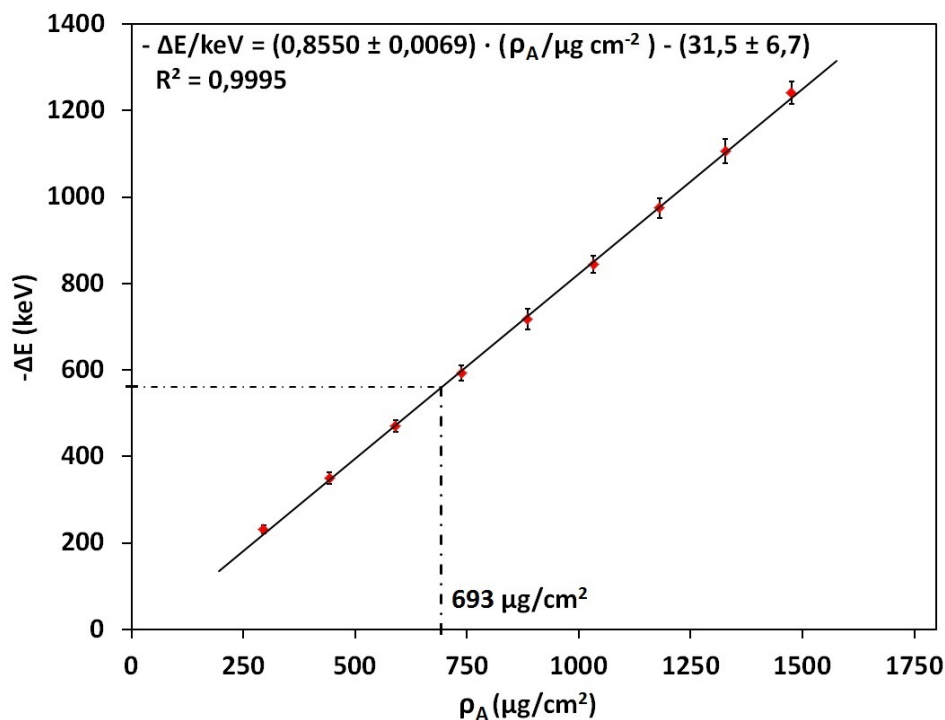


Figura 3.34: Pérdida de energía promedio de un haz de partículas α procedentes de una fuente de ^{240}Pu al atravesar una lámina de óxido de grafeno reducido en función del espesor másico de esta. Cálculo del espesor de la ventana estudiada a partir de la pérdida de energía medida.

poner la ventana y otras cinco veces el espectro con la ventana interpuesta, para obtener una medida de la dispersión. Los resultados están recogidos en la tabla 3.2. La calibración a partir de las energías de los picos α del ^{240}Pu indica que cada canal en el espectro equivale a $0,855 \text{ keV}$.

A partir de los datos obtenidos, se calculó por interpolación (figura 3.34) el espesor másico de la ventana:

$$\text{Desplazamiento} : 656,48 \text{ canales} \Rightarrow -\Delta E = 561,33 \text{ keV} \Rightarrow \rho_A = 693 \mu\text{g}/\text{cm}^2$$

El espesor másico ($693 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) es, junto con la composición elemental, el parámetro que determina la magnitud de la atenuación de los rayos X en la ventana. Su determinación mediante este procedimiento no requiere hacer ninguna suposición acerca de la densidad del material ni de su grado de cristalinidad (o, en su caso, de su estructura cristalina), puesto que tanto la pérdida de energía de las partículas α como la atenuación de rayos X dependen exclusivamente del número de átomos de cada tipo que la lámina contiene por unidad de superficie. Se elimina así otra fuente de intertumbredumbre, ya que a la dificultad práctica de medir un espesor lineal tan pequeño por medios mecánicos se añade la de

	SIN VENTANA			CON VENTANA
	$\alpha_{0,1}$	$\alpha_{0,0}$	Pos. media (ch)	$\alpha_{0,1} + \alpha_{0,0}$
	6000,12	6052,17	6038,02	5380,49
	6000,47	6052,54	6038,38	5383,02
	5998,96	6051,04	6036,88	5382,33
	6001,70	6053,79	6039,63	5380,71
	6001,31	6053,41	6039,25	5383,20
Media	6000,51	6052,59	6038,43	5381,95
Desv. est.	1,07	1,08	1,08	1,28
Desplazamiento				656,48

Tabla 3.2: Posición en el espectro (número de canal) de los picos α del ^{240}Pu medido directamente y con la ventana de grafeno interpuesta.

determinar la densidad de una lámina tan fina.

No obstante, puede resultar interesante tener una idea aproximada del grosor que corresponde a un espesor másico de $693 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Bajo la suposición razonable de que la densidad del óxido de grafeno reducido fuera similar a la del carbono grafito (aproximadamente $2,2 \text{ g}/\text{cm}^3$), se puede estimar que el espesor de la ventana es de unos $3 \mu\text{m}$.

3.4.3. Incertidumbre en el espesor

La incertidumbre de la interpolación en una recta de ecuación $-\Delta E = b \cdot \rho_A + a$ se propaga de la siguiente manera:

$$\frac{u(\rho_A)}{\rho_A} = \sqrt{\frac{u^2(-\Delta E) + u^2(a)}{(-\Delta E - a)^2} + \left(\frac{u(b)}{b}\right)^2}$$

A su vez la incertidumbre de la pendiente b tiene dos contribuciones:

- Incertidumbre en los poderes de frenado que emplea el programa SRIM para realizar la simulación. Ziegler et. al. [85] estiman que las incertidumbres en los poderes de frenado para las partículas α son inferiores al 5%. Puesto que, en intervalo considerado, $-\Delta E$ guarda una dependencia lineal con el espesor de la lámina, una incertidumbre del 5% en el poder de frenado supone un 5% en el espesor. Esto se traduce en una contribución de $0,043 \text{ keV} \cdot \text{cm}^2/\mu\text{g}$ a la incertidumbre en la pendiente.
- Incertidumbre del ajuste de la pérdida de energía ($-\Delta E$) en función del espesor másico (ρ_A), a la que además contribuye el hecho de que cada uno de los puntos lleva asociada su propia incertidumbre, debida a la

dispersión en la energía con la que salen las partículas α empleadas en la simulación. En la recta obtenida, la incertidumbre en la pendiente es de $0,0069 \text{ keV} \cdot \text{cm}^2/\mu\text{g}$, y en la ordenada en el origen, de $31,5 \text{ keV}$.

Como se puede apreciar, la contribución de la incertidumbre del ajuste es muy pequeña comparada con la de los poderes de frenado, y la incertidumbre total de la pendiente es de $0,044 \text{ keV} \cdot \text{cm}^2/\mu\text{g}$.

El valor de $-\Delta E$ medido también tiene dos fuentes de incertidumbre:

- La desviación respecto a la linealidad de la relación entre número canal y energía en la adquisición del espectro alfa. Esto se debe a dos causas principales. Por un lado, una partícula α emitida por una fuente pierde una parte de su energía antes de alcanzar el detector, debido fundamentalmente a la interacción con la ventana del detector e incluso con átomos de la propia fuente. Puesto que el poder de frenado es función de la energía, dos partículas α con distinta energía inicial no pierden la misma fracción de su energía, de manera que la energía con la que la partícula alcanza el detector no es necesariamente proporcional a la energía con la que fue emitida. Por otro lado, la energía necesaria para crear un par electrón-hueco no es una constante sino que es a su vez función de la energía de la partícula [88], por lo que el número de pares electrón-hueco no es proporcional a la energía con la que la partícula llega al detector. A partir de las determinaciones llevadas a cabo por García-Toraño et. al. [89], se puede estimar que la incertidumbre debido a la no linealidad se mantiene por debajo de 4 keV en este intervalo de energías.
- La propia determinación del centro del pico en el espectro, puesto que la adquisición de varios espectros en las mismas condiciones muestra que existe cierta dispersión. Esta contribución a la incertidumbre se puede estimar a partir de la desviación estándar de las medidas realizadas.

$$\sigma_{\text{SIN VENTANA}} = 1,07 \text{ canales} = 0,91 \text{ keV}$$

$$\sigma_{\text{CON VENTANA}} = 1,28 \text{ canales} = 1,1 \text{ keV} \implies \sigma_{\Delta E} = 1,4 \text{ keV}$$

Por último, la incertidumbre en la ordenada en el origen a se puede tomar directamente de la incertidumbre del ajuste:

$$u(a) = 6,7 \text{ keV}$$

Teniendo en cuenta todas estas contribuciones, la incertidumbre en el espesor másico de la ventana es de $35 \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

$\rho_A = (693 \pm 35) \mu\text{g}/\text{cm}^2$

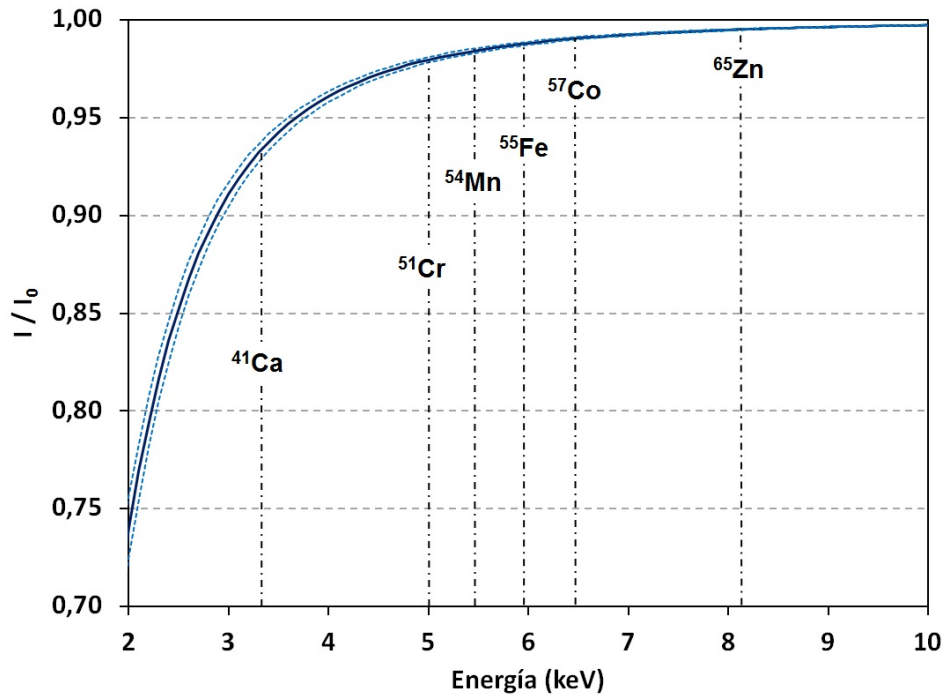


Figura 3.35: Proporción de radiación X que atraviesa cada ventana en función de la energía de la radiación. Las líneas azules discontinuas muestran la incertidumbre debida a la incertidumbre en la determinación del espesor.

3.4.4. Atenuación de la radiación en la ventana

A partir del espesor medido y haciendo uso de las secciones eficaces de interacción proporcionadas por *XCOM* para un material con esta composición elemental, se calculó la fracción de fotones incidentes que atraviesan la ventana en función de la energía de estos (Fig. 3.35). Como se puede observar, este factor se mantiene por encima del 90 % para energías superiores a 3 *keV*, y es cercana al 99 % para la energía de emisión del ^{55}Fe , por ejemplo. En la figura se marcan las energías de emisión de algunos radionucleidos de interés que se han medido en este trabajo.

La incertidumbre en el espesor de la ventana, que se ha estimado anteriormente, se traduce también en una cierta incertidumbre en la proporción de radiación transmitida a través de ella, incertidumbre que depende a su vez de la energía de la radiación. Existe además otra contribución a la incertidumbre en la atenuación, que deriva de la incertidumbre en las secciones eficaces de interacción empleadas.

Para rayos X de energía superior a 1 *keV* y suficientemente por encima de la “discontinuidad K ”, la incertidumbre en las secciones eficaces calculadas se mantiene generalmente por debajo del 1 % [90,91]. Sin embargo, existen dos bases de datos de secciones eficaces ampliamente utilizadas [92], *XCOM* y *FFAST*, que utilizan métodos de cálculo diferentes, y la diferencia entre ambas está en

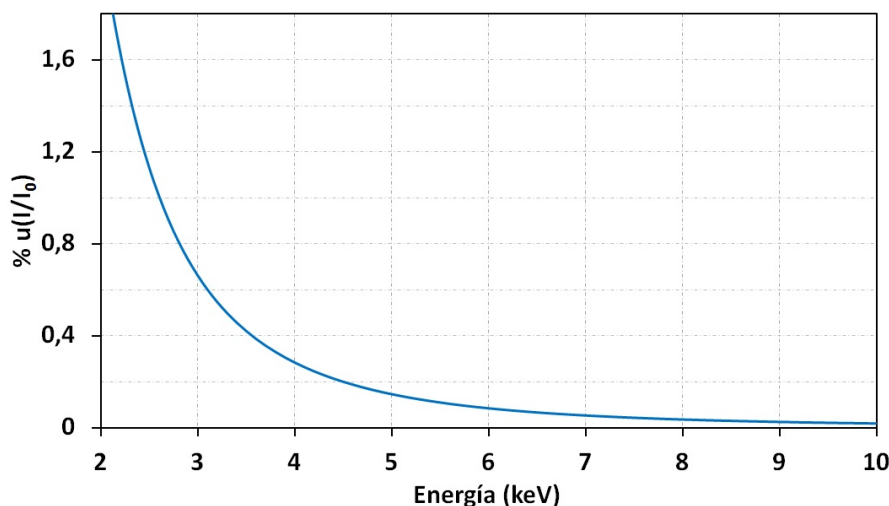


Figura 3.36: Incertidumbre en la proporción de radiación X transmitida a través de una ventana grafeno de $693 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ en función de la energía.

torno al 5 % en el rango energético considerado. Los datos experimentales avalan ambas bases de datos, pero no permiten elegir discernir cuál de ellas es más fiable [93,94]. Por ello, se ha decidido estimar de manera conservadora la incertidumbre en las secciones eficaces en un 5 %. La incertidumbre relativa total en la fracción de radiación transmitida en la ventana se muestra en la figura 3.36.

Transmisión de electrones a través de la ventana

Además de permitir el paso de la mayoría de los fotones incidentes, se espera que la ventana del detector sea capaz de impedir que los electrones emitidos por la fuente alcancen el gas del contador, lo cual podría falsear la tasa de recuento de rayos X medida. Esto es especialmente crítico en el caso de los electrones Auger, cuya energía es muy similar a la de los rayos X para cada radionucleido, y su probabilidad de emisión suele ser considerablemente elevada en los que se desintegran mediante captura electrónica.

Conociendo ya su composición y su espesor másico, se calculó mediante el código PENELOPE la fracción de electrones que atraviesan la ventana del detector en función de la energía inicial de estos (Fig. 3.37). Como se puede apreciar, la ventana deja pasar menos del 0,1 % de los electrones hasta una energía de 15 keV , lo cual incluye los electrones Auger de todos los radionucleidos medidos en este trabajo. Los cálculos indican que la transmisión de electrones en una ventana de berilio de $4 \mu\text{m}$ es similar.

Cabe mencionar que se llegó a fabricar una lámina de óxido de grafeno de hasta $120 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ (unos $0,5 \mu\text{m}$ de espesor lineal). Sin embargo, para este espesor la transmisión de electrones sí es significativa en buena parte del rango de energías considerado (Fig. 3.38), incluso es superior al 2 % para electrones de 6 keV .

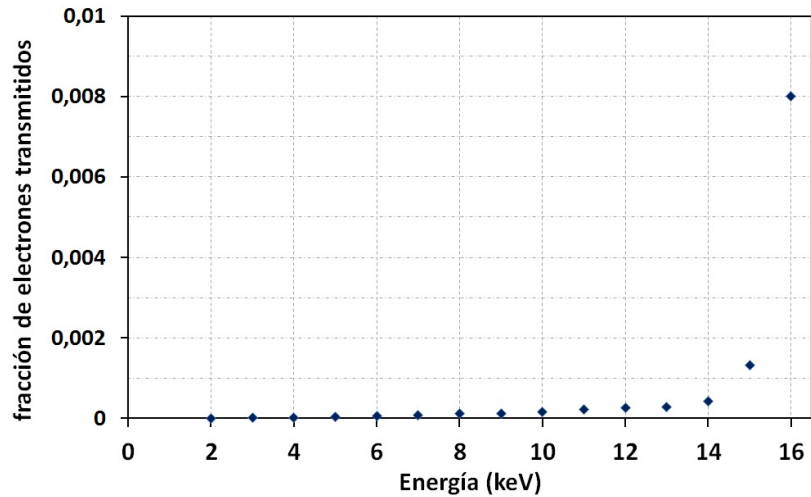


Figura 3.37: Fracción de electrones transmitidos a través de la ventana del detector, de $693 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, en función de la energía.

Algunos de los radionucleidos medidos pueden emitir, además de electrones Auger de baja energía, electrones de energías más altas, procedentes de la conversión interna de transiciones nucleares. Tal es el caso del ^{57}Co , que emite unos 4 electrones de entre 114 y 136 keV por cada 100 desintegraciones. La transmisión de electrones de este rango energético a través de la ventana utilizada es prácticamente del 100%. Sin embargo, precisamente debido a su elevada energía, la mayoría pierden solamente una pequeña fracción de esta en la interacción con la ventana, por lo que entran a la cámara del contador con una energía que queda fuera del rango energético de detección. La figura 3.39 muestra los electrones de alta energía emitidos por el ^{57}Co y la distribución de la energía con la que alcanzan el detector. Como se puede ver, la fracción de fotones que alcanzan

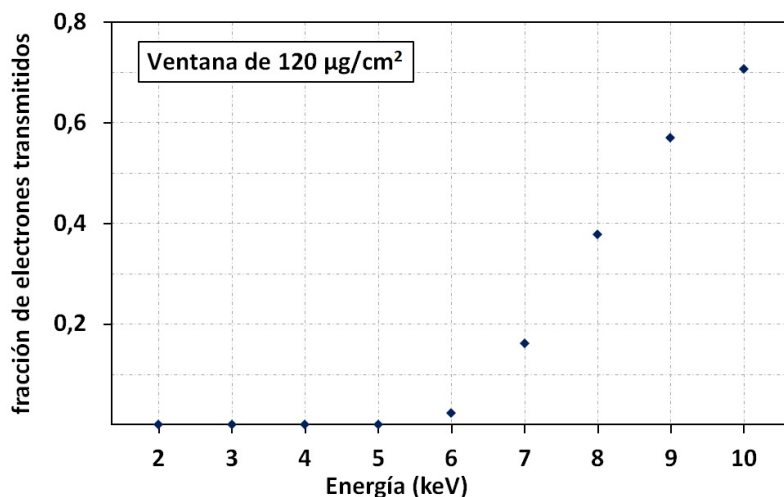


Figura 3.38: Fracción de electrones transmitidos a través de una ventana de $120 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ en función de la energía.

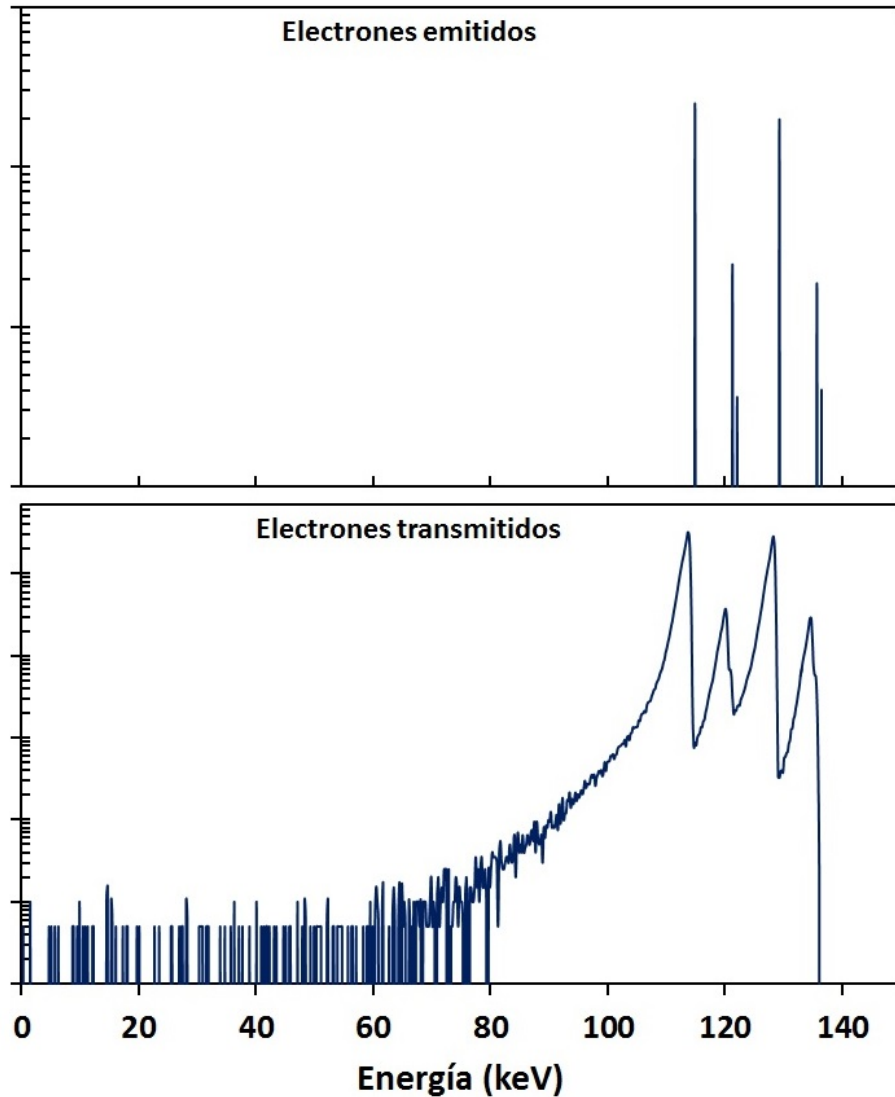


Figura 3.39: Distribución de los electrones de conversión interna de alta energía emitidos por el ^{57}Co (superior) y transmitidos a través de la ventana del detector.

el detector con una energía inferior a 15 keV (lo que podríamos considerar el rango energético de medida del contador) es completamente despreciable, por lo que la transmisión de estos electrones no afecta a las medidas. Algo similar ocurriría con el ^{44}Ti , que presenta emisión de electrones de entre 63 y 78 keV con una probabilidad significativa. El espectro de emisión de electrones por parte de ambos radionucleidos se ha obtenido mediante la función *DECAY* del código PENNUC [95], y el espectro de los electrones transmitidos se ha calculado mediante el código PENELOPE, introduciendo como datos de entrada la distribución energética obtenida con PENNUC.

Otros radionucleidos emisores de rayos X de baja energía, como el ^{41}Ca o el ^{55}Fe , no emiten electrones de conversión interna, puesto que se desintegran

exclusivamente al estado fundamental del núcleo hijo, o los emiten con muy poca probabilidad, como es el caso del ^{54}Mn , ^{51}Cr o ^{57}Ni .

3.5. Absorción en la cámara de helio

Los fotones emitidos por la fuente recorren, antes de alcanzar la ventana del detector, 20,51 mm a través del helio, correspondientes a la altura de la cámara de la fuente (c en la figura 3.19) más el grosor total de la pieza del diafragma. La sección eficaz de interacción de los rayos X con este gas es muy reducida (como se puede observar en las figuras 1.2 y 1.4). Sin embargo, puesto que se trata de un recorrido relativamente largo (comparado, por ejemplo, con el recorrido a través de la ventana), es necesario calcular la atenuación que experimenta la radiación, que puede llegar a ser significativa a bajas energías.

A partir de las secciones eficaces proporcionadas por $XCOM$, se calculó la fracción de fotones que atraviesan la cámara de helio en función de su energía (Fig. 3.40). La atenuación es inferior al 1% en todo el intervalo considerado, aunque llega a ser significativa hasta 4 ó 5 keV.

Al igual que en el caso de la atenuación en la ventana, la atenuación en el helio lleva también una incertidumbre asociada, que procede de la incertidumbre en las propias secciones eficaces de interacción, en la densidad del gas debido a posibles fluctuaciones en la presión y temperatura ambientales, y en la longitud del camino recorrido. Sin embargo, a diferencia de lo que ocurre con la ventana del detector, la atenuación en el helio es tan reducida que la contribución de la incertidumbre a la incertidumbre total es completamente despreciable. Tomando una incertidumbre del 5% en la sección eficaz de interacción, aun considerando un 1% de incertidumbre en la densidad (lo cual correspondería a una variabilidad de 10 hPa en la presión o de 3 °C en la temperatura) y de 1 mm en la longitud de la cámara (lo que sería una tolerancia conservadora en el proceso de fabricación), la incertidumbre en la transmisión en el helio es de una parte por diez mil o inferior en todo el rango de energía considerado.

Si se aumentara la presión del $\text{Ar} + \text{CH}_4$ con el fin de ampliar el rango de detección, puesto que la ventana que separa ambos gases es muy delgada, habría que aumentar igualmente la presión del He en la cavidad donde se aloja la muestra, con el consiguiente aumento de la atenuación por parte de este gas. Por este motivo, en la figura 3.40 se muestra también la atenuación de la radiación en el He a 2000 hPa.

3.6. Cálculo de correcciones por dispersión

Como consecuencia de fenómenos de dispersión en el soporte o en las paredes de la cavidad de la muestra, puede haber fotones que acaben entrando en la cámara del contador aunque inicialmente fueran emitidos en otra dirección. Esto

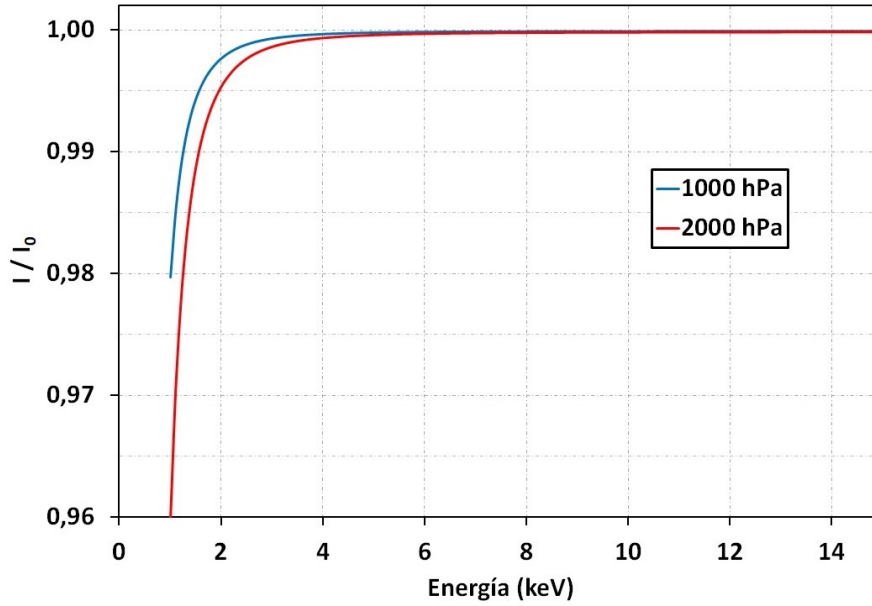


Figura 3.40: Fracción de fotones que atraviesan la cámara de helio en función de la energía.

conduce a que la eficiencia real sea mayor que la que determinaría el ángulo sólido de la medida. Por tanto, es necesario conocer esta contribución para introducir el factor de corrección en el cálculo de la eficiencia.

La figura 3.42 representa el factor de corrección por dispersión para diferentes valores de la energía de los fotones incidentes. Para cada energía, se simuló en primer lugar la emisión isotrópica de fotones y a continuación la emisión exclusivamente en el cono que define el ángulo sólido de medida (Fig. 3.41). El factor de corrección C_{disp} es entonces el cociente entre la proporción de fotones detectados en la emisión isotrópica (P_{esfera}) y la obtenida para la emisión en el cono (P_{cono}), corregida por ángulo sólido (G) de la detección:

$$C_{disp} = \frac{P_{esfera}}{G \cdot P_{cono}} \quad (3.26)$$

El exceso sobre la unidad representa la fracción de fotones que, siendo inicialmente emitidos en otra dirección, son detectados en el contador.

Puesto que se trata de cantidades del orden del tanto por mil, procedentes del cociente de dos resultados muy similares, las simulaciones se tuvieron que llevar a cabo con un elevado número de eventos, para poder mantener la incertidumbre estadística en niveles razonablemente bajos. En las simulaciones de la emisión isotrópica, se emplearon 10^9 eventos; cuando se simula la emisión restringida en el cono, penetran al detector una fracción de los fotones emitidos del orden de 200 veces mayor, por lo que se emplearon únicamente $5 \cdot 10^6$ eventos. El modelo empleado incluye el soporte utilizado para las medidas realizadas en la sección 4.3: una capa de polietileno de $75 \mu m$ sobre un disco de cuarzo de $1/16$ de

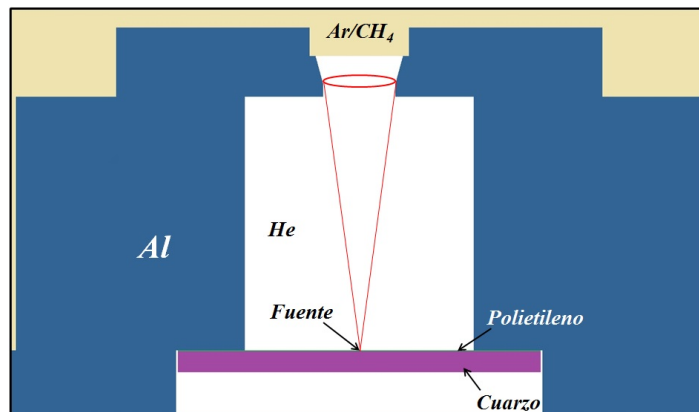


Figura 3.41: Modelo empleado en las simulaciones para el cálculo de las correcciones por dispersión.

pulgada de espesor (aproximadamente 1,6 mm).

Además de calcular la corrección por dispersión para emisiones monoenergéticas de diferentes energías, se calculó para el caso real de ^{55}Fe y ^{65}Zn . El código PENNUC, empleado para la simulación de la emisión de radionucleidos, no permite simular la emisión restringida a un cono, sino únicamente la emisión isotrópica. Por ello, se adoptaron dos soluciones diferentes: una de ellas, emplear el mismo código de PENELOPE utilizado en las simulaciones anteriores, pero, en lugar de simular una emisión monoenergética, simulando un espectro de emi-

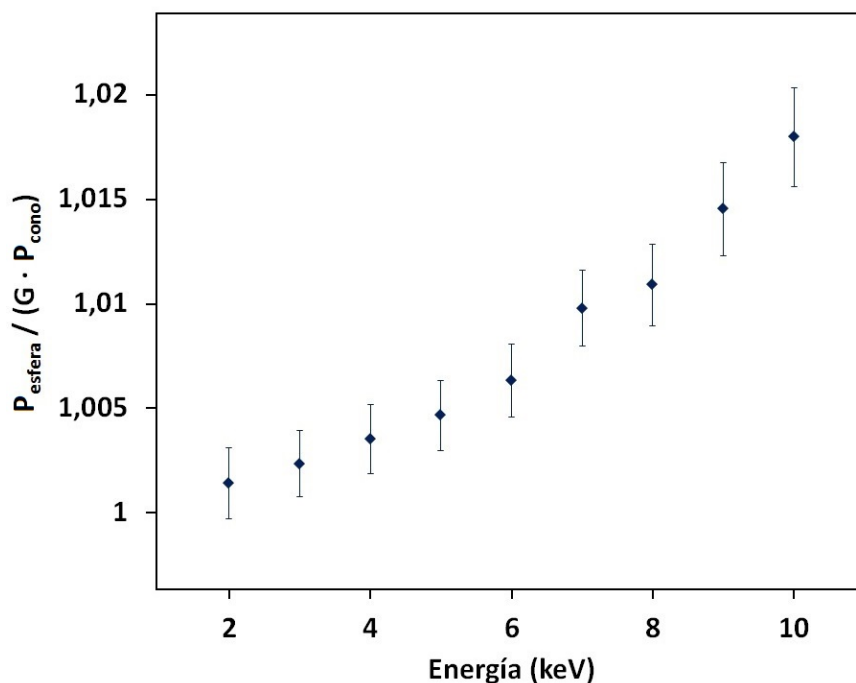


Figura 3.42: Factor de corrección por dispersión para distintas energías de la radiación incidente.

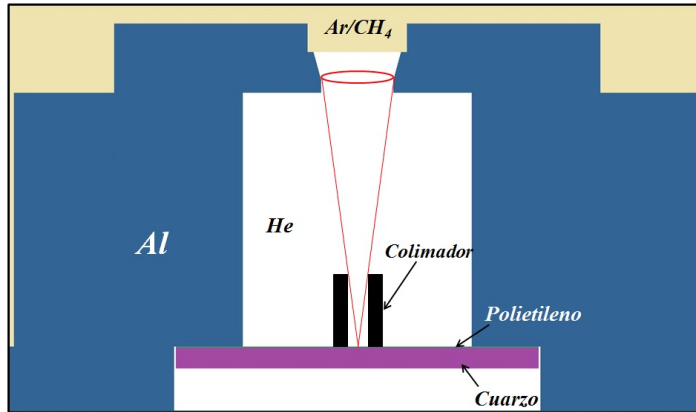


Figura 3.43: Modelo empleado en las simulaciones con PENNUC para la simulación de una emisión cónica, imponiendo un colimador ficticio con energía de truncamiento arbitrariamente alta.

sión introducido en forma de histograma con las probabilidades tomadas de la bibliografía; la otra, simular el radionucleido con PENNUC, pero colocando en la cámara de la muestra un colimador (Fig. 3.43) con un material al que se asignó una energía de truncamiento arbitrariamente alta, más alta que la mayor energía de emisión, y asignando a los materiales del soporte una energía de truncamiento igualmente elevada, de manera que toda la radiación que se emite fuera del cono sea absorbida inmediatamente. Se puede observar en el detalle de la figura 3.44 para el ejemplo del ^{55}Fe que ambos enfoques conducen al mismo resultado dentro de la incertidumbre estadística, y que a su vez el resultado es coherente con el resultado obtenido para la radiación monoenergética de 6 keV , muy próxima a la energía promedio de los rayos X del ^{55}Fe .

Los resultados de la figura 3.42 han sido obtenidos empleando únicamente el recuento del pico principal. Sin embargo, se pueden calcular también tomando la suma del pico principal y el de escape, lo cual conduce exactamente al mismo resultado, puesto que ambos picos son consecuencia de la entrada a la cámara del contador de fotones de la misma energía. Sin embargo, si se toma el área total del espectro, el factor de corrección queda sobreestimado, ya que se incluye el recuento de los fotones de fluorescencia del aluminio de las paredes de la cavidad de la muestra cuando la emisión es isotrópica. La figura, 3.45, muestra el cociente $P_{esfera}/(G \cdot P_{cono})$ calculado solamente para el pico principal, para la suma del pico principal y de escape, y para el área total del espectro. Se puede observar que la sobreestimación a la que conduce considerar toda el área del espectro es menor a medida que aumenta la energía de la radiación incidente. Esto se debe a que la contribución de la fluorescencia del aluminio cada vez es menor, ya que la autoabsorción que experimenta la radiación de fluorescencia es mayor cuanto más diferentes sean los coeficientes de atenuación de la radiación incidente y la radiación de fluorescencia (ver ecuación 1.31).

Cabe advertir que el coeficiente de corrección aquí calculado puede compren-

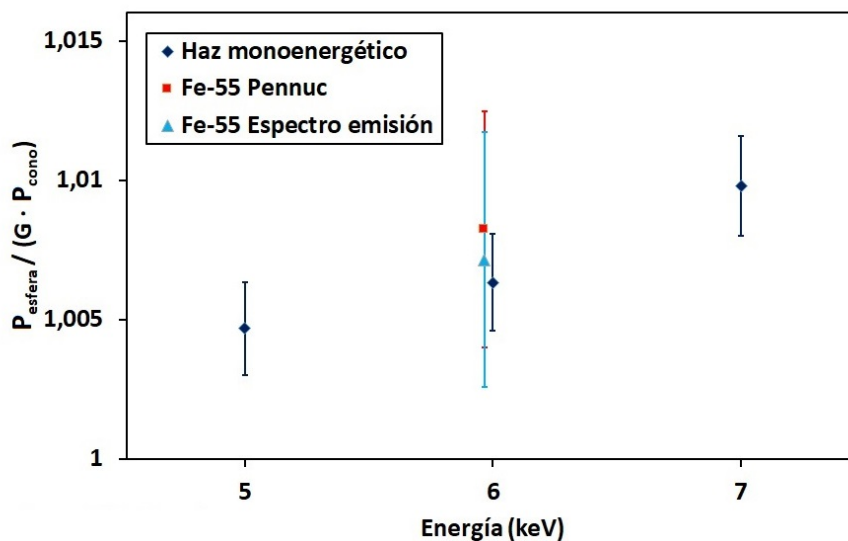


Figura 3.44: Factor de corrección para haces monoenergéticos (detalle de la Fig. 3.42) y para el ^{55}Fe , calculado mediante PENNUC y mediante el código convencional de PENELOPE introduciendo el espectro de emisión del ^{55}Fe .

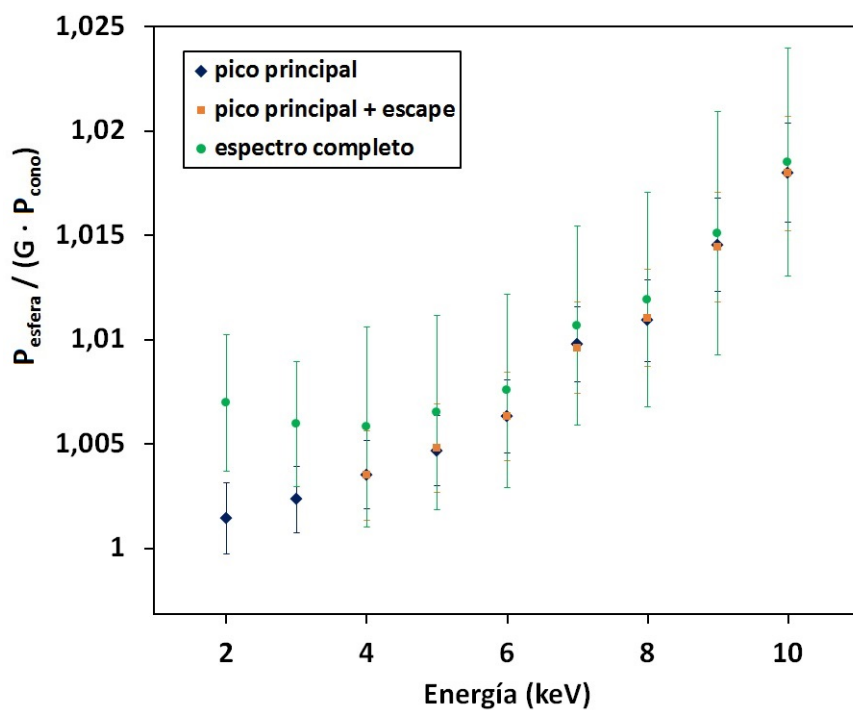


Figura 3.45: Factor de corrección por dispersión en función de si se toma exclusivamente el recuento del pico principal, la suma del pico principal y de escape, o toda el área del espectro.

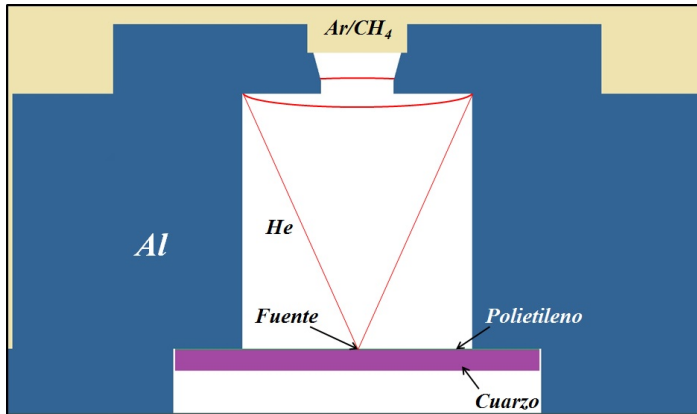


Figura 3.46: Simulación de la emisión en un cono más grande que incluya los fotones emitidos hacia el aluminio del diafragma.

der también la transmisión cerca de los bordes del diafragma. Sin embargo, esta no es la contribución mayoritaria a este coeficiente, ni da cuenta por sí misma de su aumento a medida que aumenta la energía. Para comprobarlo, se simuló, para la mayor de las energías consideradas (10 keV), que presenta un menor coeficiente de atenuación en el aluminio, la emisión en un cono más amplio, comprendiendo todo el cono definido por la pared superior de la cámara de la muestra (Fig. 3.46), de manera que sí se tienen en cuenta los fotones transmitidos en los bordes del diafragma. El factor de corrección así calculado es de $1,011 \pm 0,003$, frente al $1,018 \pm 0,002$ calculado con la emisión en el cono de detección. Esto quiere decir que parte de los fotones que entran en la cámara del contador lo hacen por transmisión en el diafragma, pero que ni siquiera para las energías más altas supone una contribución mayor que la dispersión.

3.7. Cálculo de la eficiencia intrínseca total y su incertidumbre

A partir de la probabilidad de interacción con el gas, la fracción de radiación transmitida en la ventana y en el helio y el factor de corrección por dispersión, se ha calculado la eficiencia intrínseca total de detección (Fig. 3.47). Multiplicando esta eficiencia intrínseca por el ángulo sólido de medida (que es ligeramente diferente para cada muestra, puesto que depende de su extensión), se obtendrá la eficiencia total de detección.

Del mismo modo, a partir de las incertidumbres en cada uno de los factores se ha calculado la incertidumbre relativa en la eficiencia intrínseca total (Fig. 3.48).

Sin embargo, es preciso señalar que la incertidumbre resultante es menor que la suma cuadrática de todas las incertidumbres, ya que existe una correlación entre el cálculo de la probabilidad de interacción y el de la corrección

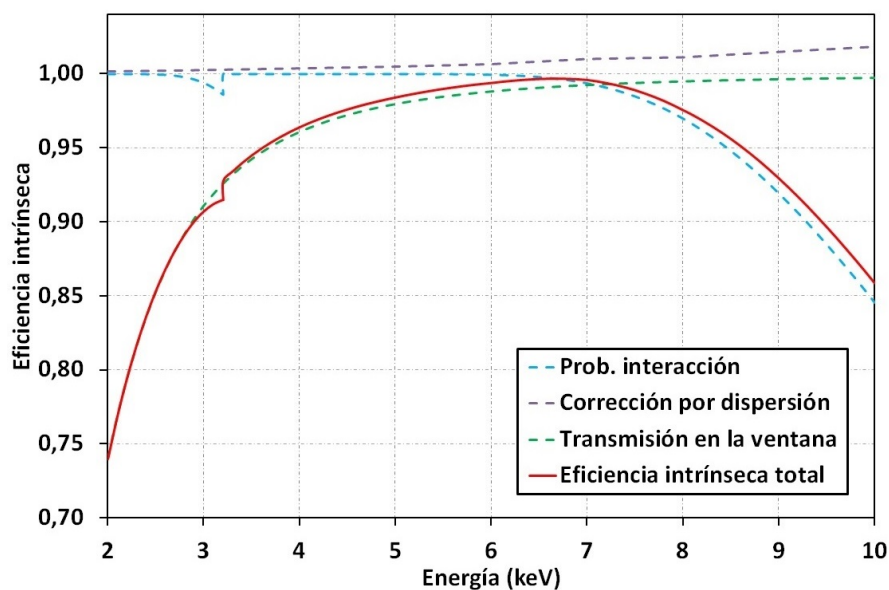


Figura 3.47: Eficiencia intrínseca total del contador proporcional en función de la energía, calculada a partir de la probabilidad de interacción con el gas, la corrección por dispersión y el factor de transmisión en el helio y en la ventana.

Nota: aunque se ha tenido en cuenta en los cálculos, no se muestra la curva de la transmisión en el helio porque es muy próxima a la unidad en todo el intervalo.

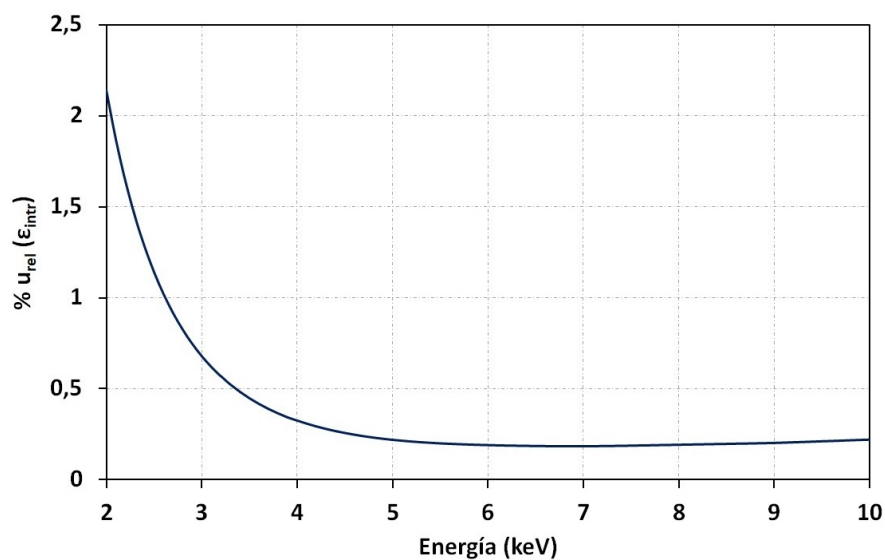


Figura 3.48: Incertidumbre en la eficiencia intrínseca de detección del contador proporcional.

Probabilidad de interacción	0,9989 (26)
Transmisión en la ventana	0,9879 (8)
Transmisión en el helio	0,99986 (1)
Corrección por dispersión	1,0071 (31)
Eficiencia intrínseca	0,9939 (19)

Tabla 3.3: Cálculo de la eficiencia intrínseca de detección para una radiación con la distribución energética de los rayos X emitidos por el ^{55}Fe .

por dispersión: puesto que la corrección por dispersión se ha calculado como el cociente

$$C_{disp} = \frac{P_{esfera}}{G \cdot P_{cono}}$$

el producto de la probabilidad de interacción por la corrección por dispersión no es más que

$$P_{int} \cdot C_{disp} = \frac{P_{esfera}}{G}$$

Por tanto, aunque en las secciones 3.3 y 3.6 se ha calculado cada contribución de manera independiente para mostrar su dependencia con la energía, la incertidumbre en el producto de ambas es únicamente la incertidumbre de la probabilidad de interacción de la simulación de la emisión esférica.

Las figuras 3.47 y 3.48 muestran la eficiencia intrínseca y su incertidumbre para emisiones monoenergéticas. Sin embargo, cuando se calculen las tasas de emisión de fuentes reales (sección 4.3), se empleará el valor calculado para la distribución de energías emitidas por el radionucleido en cuestión (ver el ejemplo del ^{55}Fe en la tabla 3.3).

3.8. Pruebas de estabilidad

Con el objetivo de comprobar la estabilidad del sistema durante medidas prolongadas, se midió un espectro de una muestra de ^{55}Fe cada hora durante cuatro días y se analizó la evolución de la posición, la anchura y el área del pico principal con el tiempo. Como se puede observar en la gráfica superior de la figura 3.49, la posición del centroide del pico presenta unas oscilaciones muy marcadas, con una amplitud total de unos 150 canales sobre 2000. Sin embargo, si se analiza la variación de la temperatura del laboratorio durante ese mismo periodo de tiempo, se puede constatar que las oscilaciones en la posición del pico coinciden con las oscilaciones en la temperatura. La presión del gas en el contador se mantiene constante (puesto que está controlada por la electroválvula), por lo que un aumento de la temperatura implica una reducción de la densidad del

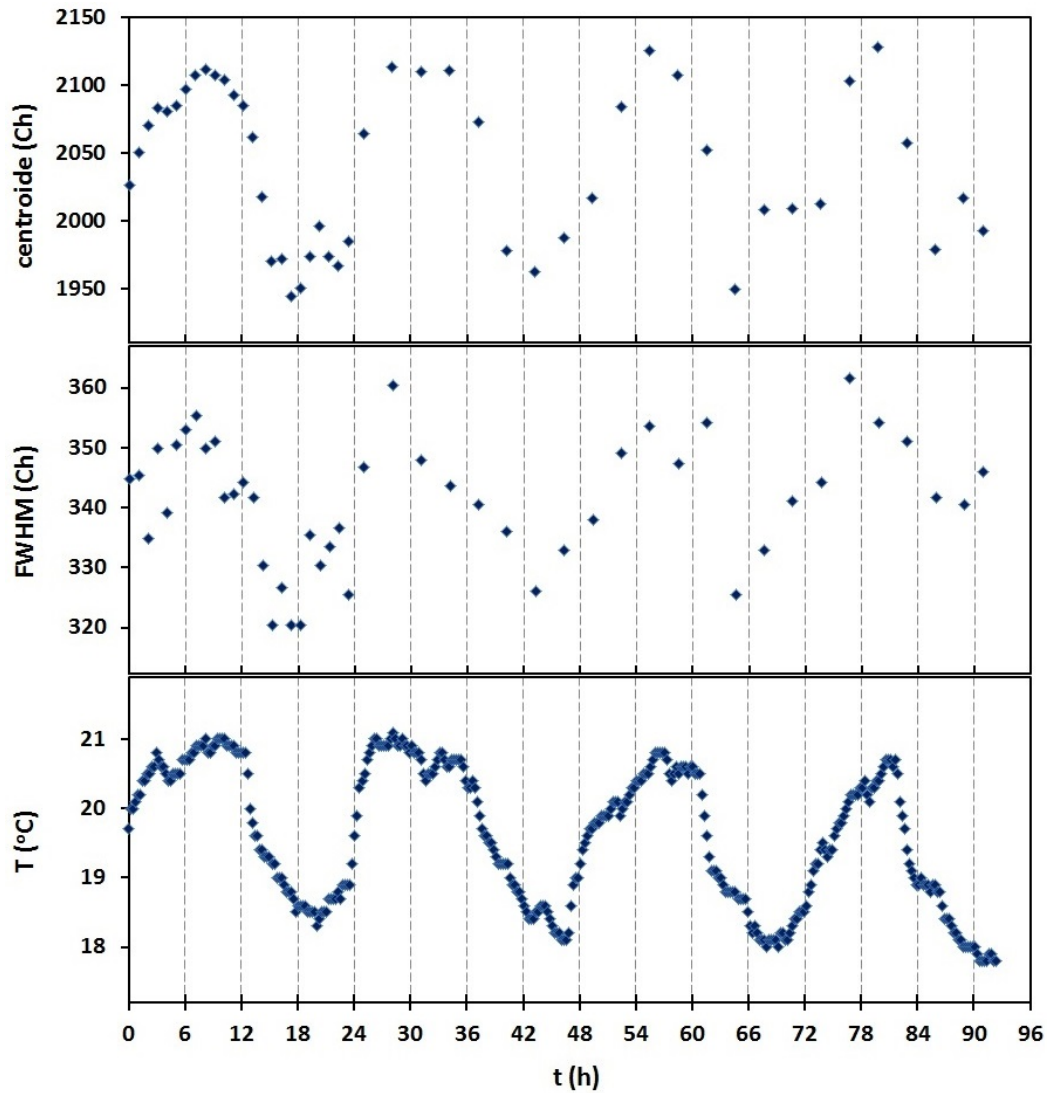


Figura 3.49: Evolución de la posición y la anchura del pico del espectro de ^{55}Fe con el tiempo.

gas. La temperatura durante el periodo de medida presenta oscilaciones con una amplitud total de $3\text{ }^{\circ}\text{C}$ aproximadamente, entre 18 y $21\text{ }^{\circ}\text{C}$. Una diferencia de temperatura de tres grados en estas condiciones supone la misma variación en la densidad del gas que una diferencia del 11 hPa en la presión. De acuerdo con el estudio de la variación de la posición del pico con la presión, presentada en la figura 2.8, una variación de 11 hPa provoca un desplazamiento de 125 canales en la posición del pico, por lo que parece evidente que las oscilaciones observadas se deben únicamente a las variaciones en la densidad del gas surgidas al mantener constante la presión mientras varía la temperatura. Por otro lado, no se aprecia ninguna otra tendencia sistemática en la posición del pico que conduzca a pensar en un deterioro de la medida.

Si bien las oscilaciones en la posición del pico deterioran ligeramente la re-

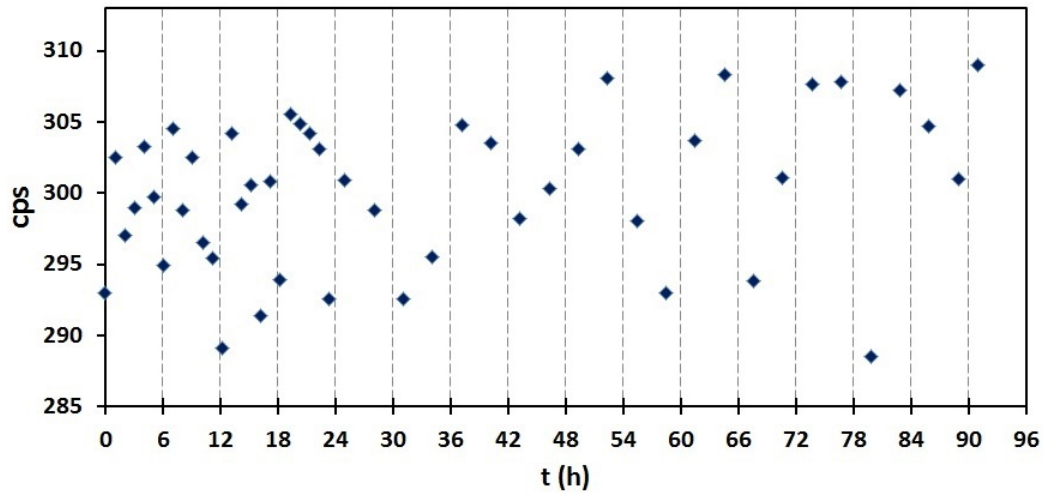


Figura 3.50: Evolución de la tasa de recuento de una muestra de ^{55}Fe con el tiempo.

solución con respecto a la resolución ideal de un contador proporcional, esto no tiene gran incidencia en la determinación de tasas de emisión. Por el contrario, resulta fundamental que la tasa de recuento no dependa de las condiciones ambientales ni se deteriore con el tiempo para medidas largas. La figura 3.50 muestra la evolución de la tasa de recuento durante los cuatro días de medida. Como se puede observar, no sigue ningún patrón de oscilación, ni una tendencia general de variación con el tiempo, sino que únicamente está sujeto a una fluctuación aleatoria propia la naturaleza probabilística de la emisión de radiación.

Capítulo 4

Resultados. Aplicación a la medida de espectros de rayos X y a la determinación de tasas de emisión

4.1. Preparación de fuentes

Para poder medir sus espectros de emisión en el contador proporcional, se prepararon fuentes de diversos radionucleidos emisores de rayos X de baja energía: ^{41}Ca , ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{57}Co y ^{65}Zn . Para preparar cada una de ellas, se depositó una gota de la correspondiente disolución sobre un soporte y posteriormente se dejó evaporar el disolvente a temperatura ambiente. El soporte está formado por una película de polietileno adherido sobre un disco de cuarzo para garantizar la resistencia mecánica, fijado a su vez sobre una diana impresa en polietileno como guía en el posicionamiento de la fuente (ver figura 4.1). En todos los casos se emplearon disoluciones comerciales, salvo la de ^{41}Ca , que se preparó a partir de CaCO_3 sólido proporcionado por el Oak Ridge National Laboratory (EEUU). Las disoluciones de ^{55}Fe y de ^{65}Zn fueron calibradas en términos de concentración de actividad en el LMRI mediante centelleo líquido, como se explica en la sección 4.3. En las demás, solamente se emplea el valor de concentración de actividad nominal proporcionada por el proveedor, puesto que no se requiere un conocimiento preciso de la actividad de las fuentes.

Estos radionucleidos cubren un rango de energías que abarca desde los $3,3\text{ keV}$, correspondiente a la energía de la línea k_α del ^{41}Ca , hasta los $8,9\text{ keV}$ de la línea k_β del ^{65}Zn . Sin embargo, por debajo de $3,3\text{ keV}$ resulta difícil encontrar radionucleidos adecuados que puedan ser empleados para la preparación de fuentes de referencia calibradas en tasa de emisión de rayos X , generalmente porque los radionucleidos que dan lugar a elementos cuyas transiciones electrónicas se encontrarían en el intervalo entre 1 y 3 keV (^{36}Cl , ^{35}S o ^{33}P) presentan exclusivamente desintegración β , que no lleva asociada ninguna reorganización de los niveles electrónicos, y por tanto no son emisores de rayos X , o bien presen-

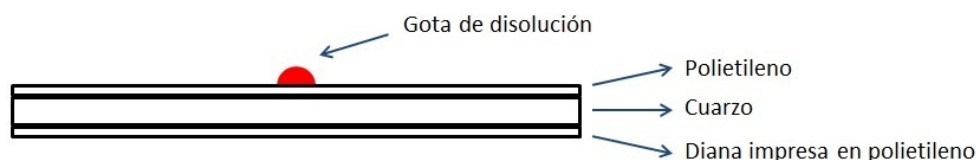


Figura 4.1: Esquema de la preparación de las fuentes radiactivas a partir de sus disoluciones (superior), deposición de la gota sobre el soporte (inferior izquierda) y colocación de la fuente en la cámara de He (inferior derecha).

tan solamente una pequeña probabilidad de captura electrónica (como es caso del ^{40}K), que hace que la probabilidad de emisión X sea demasiado baja. Únicamente el ^{37}Ar presenta una probabilidad significativa de emisión X por debajo de 3 keV , pero es difícil de manejar experimentalmente, dado que se encuentra en estado gaseoso.

Con el objetivo de poder caracterizar fuentes de referencia de energías más bajas que las que se alcanzan con los radionucleidos emisores de rayos X , resulta útil contar con fuentes de fluorescencia que, excitadas mediante la radiación de un mismo radionucleido de energía suficientemente alta (por ejemplo ^{55}Fe), emitan la radiación característica de aquellos elementos cuya energía se encuentre en el intervalo de interés. Para ello, se prepararon fuentes de fluorescencia formadas por una fuente anular de ^{55}Fe (fuente de excitación) colocada a una cierta altura sobre una lámina circular de un elemento determinado con su composición isotópica natural (no radiactivo), al que llamamos blanco de fluorescencia (figura 4.2). Los rayos X de $5,9\text{ keV}$ emitidos por el ^{55}Fe excitan los átomos del blanco de fluorescencia, que en su proceso de relajación electrónica emiten rayos X característicos de energía inferior. Los blancos de fluorescencia fueron adquiridos del Institute for Reference Materials and Measurements del Joint Research Centre de Geel (Bélgica); la fuente de excitación de ^{55}Fe fue preparada en el LMRI.

Todos los radionucleidos mencionados anteriormente a excepción del ^{41}Ca (^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{57}Co y ^{65}Zn) emiten rayos X de energía suficiente para inducir la fluorescencia de los blancos empleados. La elección de ^{55}Fe como fuente de excitación se debe, por una parte, a que no presenta ninguna emisión γ de

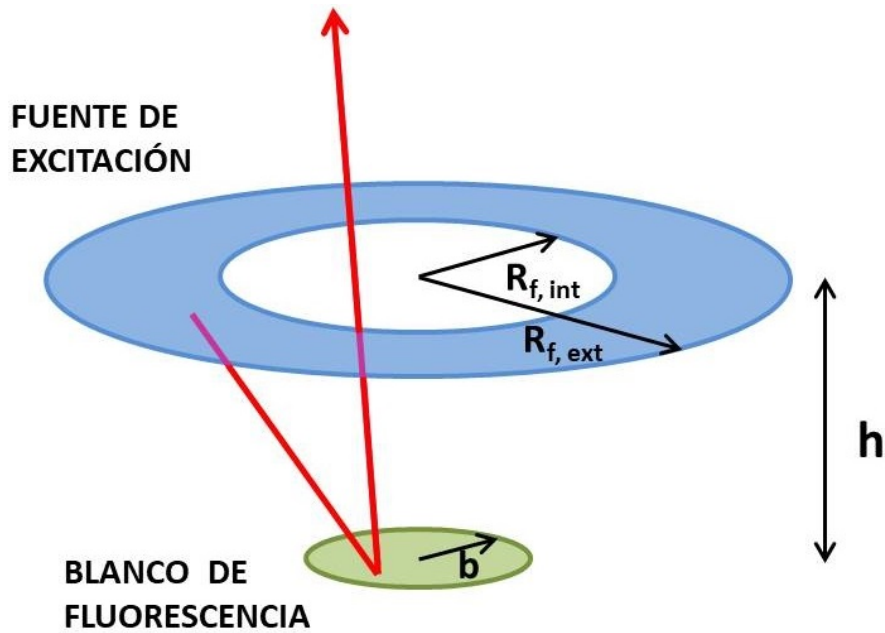


Figura 4.2: Esquema de una fuente de fluorescencia empleada en este trabajo, consistente en una fuente de excitación anular y un blanco de fluorescencia.

probabilidad significativa que pueda interferir en la medida, y por otra parte, a que tiene un periodo de semidesintegración notablemente más largo (2,7 años, frente a menos de un año del resto de radionucleidos), lo cual permite disponer de fuentes más duraderas.

Para que la excitación sea posible, la fuente ha de estar enfrentada al blanco de fluorescencia. Asimismo, para que los rayos X de fluorescencia puedan ser detectados, el blanco ha de estar orientado hacia el detector. Por ello, la fuente de excitación ha de tener forma anular, de manera que la radiación emitida por el blanco pueda pasar por la abertura del anillo y alcanzar el detector.

Para obtener la mayor señal a partir de una cantidad determinada de ^{55}Fe , es necesario que el ángulo sólido de excitación (es decir, el ángulo sólido subtendido por el blanco visto desde la fuente) sea el máximo posible. Este ángulo sólido depende de los radios interior (R_i) y exterior (R_e) de la arandela y de la distancia (h) entre la fuente y el blanco. Desde el punto de vista del ángulo sólido de la excitación, la situación más favorable es aquella en la que R_i sea lo más pequeño posible. Sin embargo, si el radio interior es demasiado pequeño, el ángulo sólido de la detección no queda definido por el diafragma del detector sino por la propia abertura de la arandela. Por otra parte, el ángulo sólido de excitación es mayor cuanto más parecidos sean R_i y R_e ; es decir, cuanto más estrecha sea la arandela. Sin embargo, existe una limitación práctica en cuanto a la masa de radionucleido que puede depositarse por unidad de superficie, por lo que cualquier cálculo para la determinación de la geometría óptima debe tener en cuenta el área total de la corona circular. Además, para unas dimensiones dadas de la arandela, el ángulo

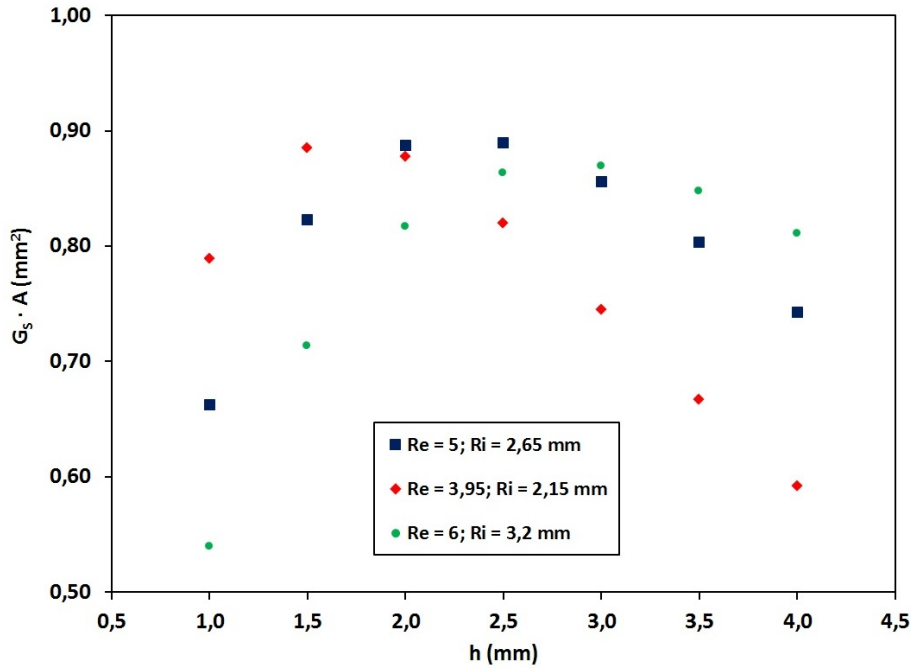


Figura 4.3: Producto del área por el ángulo sólido de excitación para diferentes dimensiones de la arandela en función de la distancia del blanco a la fuente.

sólido de excitación depende de la distancia vertical de la fuente al blanco: si $h = 0$, no se produce excitación, y el ángulo sólido va aumentando a medida que la fuente se separa del blanco hasta alcanzar un máximo, a partir del cual disminuye con la distancia.

Teniendo en cuenta todas estas consideraciones, se calculó, para varias arandelas de cobre comerciales, el producto de su superficie por el ángulo sólido de excitación en función de la distancia blanco-fuente (figura 4.3). De esta manera se compara la capacidad de excitación de la fuente para distintas geometrías bajo el supuesto de que la cantidad de hierro que puede ser depositado por unidad de superficie es constante. De acuerdo con estos resultados, se decidió utilizar una arandela de 5 mm de radio externo y 2,65 mm de radio interno.

Puesto que la fuente de ^{55}Fe debe estar orientada hacia abajo, es necesario que el hierro esté correctamente adherido al soporte. Una opción es realizar la deposición del hierro mediante sublimación a vacío (*flash evaporation*) [96], con la cual se logran capas delgadas y homogéneas correctamente adheridas, pero el rendimiento del proceso es muy bajo. Por ello, se optó por preparar la fuente mediante electrodeposición a partir de una disolución de una sal de hierro, un proceso cuyo rendimiento es mucho mayor [97], aunque entraña también una mayor complejidad experimental. La principal dificultad deriva del hecho de que la electrodeposición de hierro metálico requiere que el hierro de la célula electro-lítica se encuentre en la forma Fe^{2+} , mientras que las disoluciones comerciales suelen ser de FeCl_3 (Fe^{3+}), que es mucho más estable. El Fe^{3+} , a menos que la

disolución sea extremadamente ácida (pH inferior a 2), tiene tendencia a formar un depósito de hidróxido sobre la superficie del cátodo, que impide la deposición de hierro metálico y no se adhiere adecuadamente al cobre. Por ello, se añade ácido ascórbico al electrolito, que reduce el Fe^{3+} a Fe^{2+} , y citrato trisódico, que compleja el ion Fe^{2+} retardando así su posible reoxidación a Fe^{3+} .

Para la preparación de esta fuente, se tomaron 4 mL de una disolución de $^{55}FeCl_3$ de 740 kBq/mL de actividad nominal. Se llevó a sequedad y se redisolvió en 2 mL de HCl 1 M junto con 15 μL de una disolución de $FeCl_3$ estable de concentración 0,13 $\mu g/\mu L$. La disolución resultante se incorporó a la célula electrolítica, a la que se añadieron 2,9 mL de sulfato de amonio como electrolito, además de 4 mL de ácido ascórbico y 4 mL de citrato trisódico. Se añadieron por último unas gotas de amoniaco hasta lograr un pH de 10.

Por otro lado, se tomó una arandela de cobre de 5 mm de radio externo, 2,65 mm de radio interno y 0,8 mm de grosor, y se pulió con papel de lija para eliminar todo el óxido y las posibles impurezas que pudiera haber depositadas sobre su superficie. Una vez pulida, se fijó sobre un soporte de plástico que permite el contacto por la parte inferior con una lámina de acero que lo conecta con el circuito eléctrico. Como ánodo se empleó un cable de platino plegado en forma de espiral. La electrólisis se llevó a cabo durante una hora manteniendo una intensidad de corriente entre 0,3 y 0,4 A . Se obtuvo así una fuente anular de ^{55}Fe de aproximadamente 1 MBq de actividad.

Asimismo, se diseñó un sistema de posicionamiento que permite la colocación de la fuente de excitación sobre el blanco de fluorescencia en la geometría adecuada para la medida. Este sistema consta de dos piezas (Fig. 4.4), que se fabricaron mediante una impresora 3D. La primera de ellas (figura superior izquierda) consiste en un cilindro achatado, que presenta una hendidura circular concéntrica, donde se acopla el blanco de fluorescencia. El diámetro de esta hendidura es igual al diámetro de los soportes de los blancos, y el diámetro total de la pieza es igual al diámetro de la cavidad de la muestra, de manera que se garantiza el centramiento del blanco. La profundidad de la hendidura, a su vez, es igual al grosor de los soportes de los blancos, de tal forma que, cuando el muelle empuja la fuente hacia arriba, el blanco queda a la misma distancia del diafragma a la que se encuentra la muestra cuando se mide directamente un radionucleido (distancia c en la figura 3.19). La segunda pieza (figura inferior derecha) consiste en una corteza cilíndrica cuyo radio interno es igual al radio externo de la arandela de cobre. Una de las bases del cilindro presenta una pared donde se adhiere la fuente de excitación, con un agujero circular cuyo diámetro coincide con el diámetro interno de la arandela. Tanto los soportes de los blancos como la pieza sobre la que se acoplan presentan dos pequeños agujeros, donde quedan introducidos sendos vástagos que sobresalen de la otra pieza cuando se acopla sobre esta, de manera que se impide el desplazamiento horizontal de la fuente con respecto al blanco. El conjunto se coloca sobre el soporte de la cámara de la muestra (figura derecha), de manera que queda presionado contra la pared superior cuando esta se cierra.



Figura 4.4: Montaje de la fuente de fluorescencia empleada. Soporte del blanco (superior izquierda), soporte de la fuente (inferior izquierda) y ensamblaje de ambas sobre el soporte de la cámara de la muestra (derecha).

Nota: la fotografía del soporte de la fuente fue tomada antes de la deposición del ^{55}Fe sobre la arandela.

4.2. Medida de espectros de rayos X

Una vez puesto a punto el contador proporcional, se empleó para la medida del espectro de emisión de rayos X de las fuentes descritas anteriormente. Todas las características de los radionucleidos medidos han sido tomadas de la referencia [98].

El ^{65}Zn se desintegra por captura electrónica al nivel nuclear excitado de 1116 keV del ^{65}Cu y por captura electrónica y emisión β^+ al estado fundamental. En la desexcitación electrónica, emite rayos X de 8 keV (K_α) con una probabilidad de $34,67\%$ y de $8,9\text{ keV}$ (K_β) con una probabilidad de $4,82\%$. La emisión γ de 1116 keV presenta una probabilidad de $50,22\%$, y la de 511 keV correspondiente a la aniquilación de positrones, ocurre con una probabilidad del $2,84\%$. La fuente de ^{65}Zn medida tenía una actividad de 25 kBq , y su espectro fue medido durante 15 h (figura 4.5). El pico principal del espectro se encuentra centrado en $8,15\text{ keV}$, correspondiente a la suma de las emisiones K_α y K_β . La

anchura del pico a mitad de su altura es de $1,15 \text{ keV}$, lo cual supone un 14% de la energía del pico. Debido a la señal producida por la dispersión de la radiación γ , todo el espectro presenta un alto nivel de fondo, como consecuencia del cual el pico de escape adquiere una forma menos nítida que en el caso del ^{55}Fe , pero el solapamiento es menor que en el ^{54}Mn debido a que aparece a mayor energía.

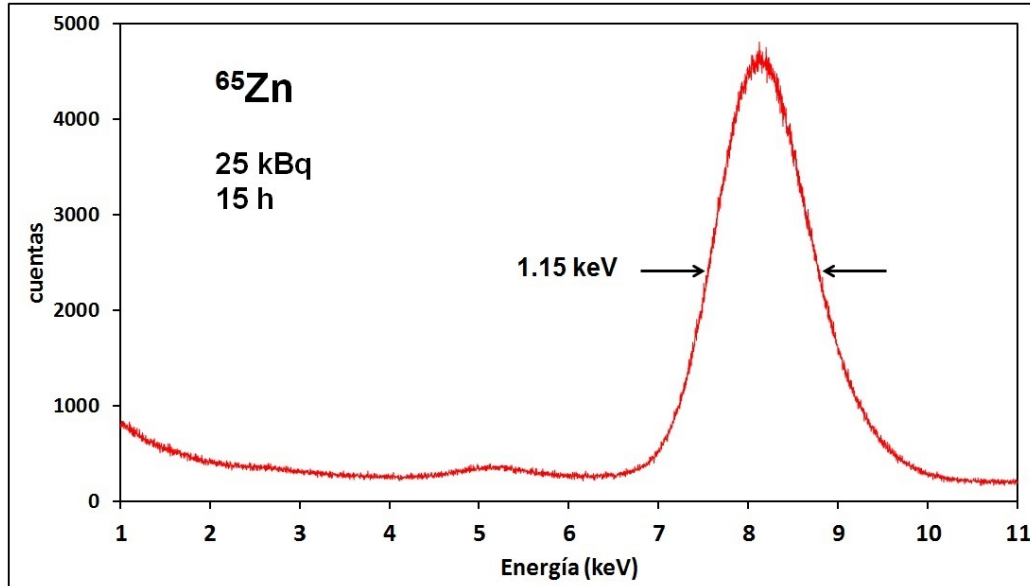


Figura 4.5: Espectro de una fuente de ^{65}Zn de 25 kBq medido durante 15 h en el contador proporcional.

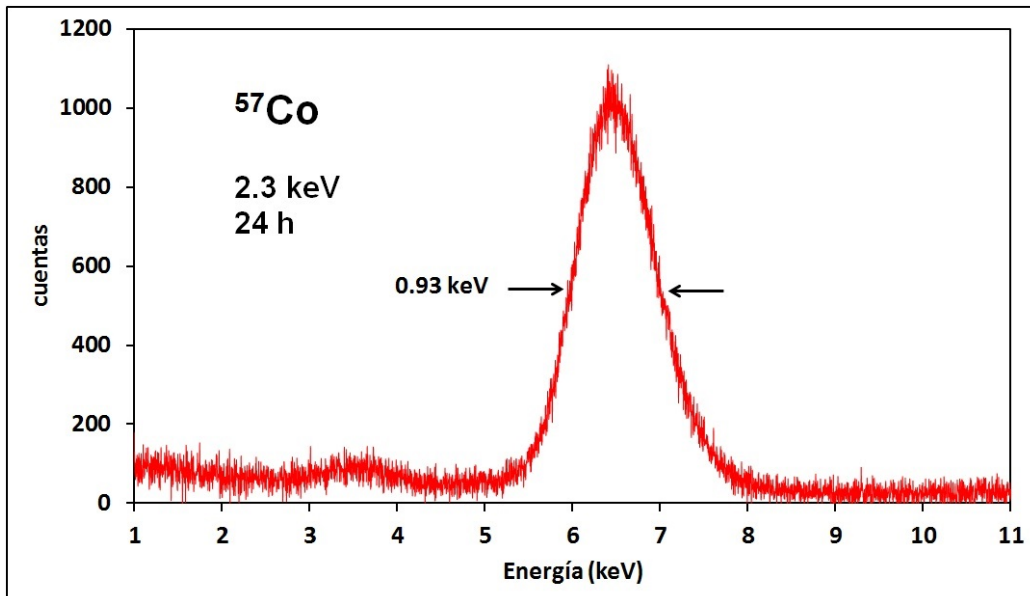


Figura 4.6: Espectro de una fuente de ^{57}Co de $2,3 \text{ kBq}$ medido durante 24 h en el contador proporcional.

El ^{57}Co se desintegra mediante captura electrónica al ^{57}Fe , mayoritariamente al estado nuclear excitado de $136,47\text{ keV}$, y en menor medida ($0,183\%$) al nivel de $706,42\text{ keV}$. El proceso de desexcitación electrónica produce la emisión de rayos X de $6,4\text{ keV}$ (K_α) con una probabilidad del $50,62\%$ y de $7,1\text{ keV}$ (K_β) con una probabilidad del $6,93\%$. Se preparó una fuente de $2,3\text{ keV}$ y se midió su espectro de rayos X (figura 4.6) durante 24 h . El pico principal, centrado en $6,4\text{ keV}$, tiene una anchura de $0,93\text{ keV}$, correspondiente al 14% de la energía del pico.

El ^{55}Fe se desintegra mediante captura electrónica al ^{55}Mn , mayoritariamente a su estado fundamental. Tan solo se observa una débil transición γ con una probabilidad del $10^{-7}\%$ a 126 keV . La desexcitación electrónica del ^{55}Mn va acompañada de emisión de rayos X de $5,9\text{ keV}$ (K_α) con una probabilidad de $25,02\%$ y de $6,5\text{ keV}$ (K_β) con una probabilidad de $3,40\%$. El espectro mostrado en la figura 4.7 corresponde a una fuente de 17 kBq medida durante 15 h . El pico principal, centrado en $5,97\text{ keV}$, presenta una resolución de $0,90\text{ keV}$, que representa un 15% de la energía del pico. Como se puede observar, el pico de escape se distingue nítidamente, puesto que el ^{55}Fe no presenta ninguna emisión γ de intensidad significativa cuya dispersión pueda superponerse con el pico.

El ^{54}Mn se desintegra mayoritariamente mediante captura electrónica al estado excitado de 835 keV del ^{54}Cr . En la desexcitación electrónica, emite rayos X de $5,4\text{ keV}$ (K_α) con una probabilidad de $22,67\%$ y de $5,9\text{ keV}$ (K_β) con una probabilidad de $3,05\%$. La desexcitación nuclear va acompañada de la emisión de radiación γ de 835 keV (superior al $99,9\%$), y apenas un $0,03\%$ de electrones de conversión. La fuente de ^{54}Mn preparada tenía una actividad de 13 kBq , y fue medida en el contador proporcional durante 20 h . El espectro medido se muestra en la figura 4.8. El pico principal, centrado en $5,48\text{ keV}$, presenta una resolución de $0,83\text{ keV}$, lo cual supone un 15% de la energía del pico. En el espectro se distingue el pico de escape, en torno a $2,5\text{ keV}$, aunque la señal producida por la dispersión de la radiación γ emitida por el propio ^{54}Mn la oculta parcialmente.

El ^{41}Ca se desintegra mediante captura electrónica directamente al estado fundamental del ^{41}K . En su proceso de relajación electrónica emite rayos X de $3,3\text{ keV}$ (K_α) con una probabilidad de $11,38\%$ y de $3,6\text{ keV}$ (K_β) con una probabilidad de $1,40\%$. La figura 4.9 presenta el espectro de una fuente de 11 kBq medido durante 20 h . Cabe puntualizar, sin embargo, que la tasa de recuento medida es significativamente menor que la esperada debido a la gran atenuación que presentaba la fuente, ya que en la disolución de partida el calcio no se encontraba en forma de sal inorgánica sino formando un complejo con un ligando orgánico, como consecuencia del cual el espesor másico de la muestra

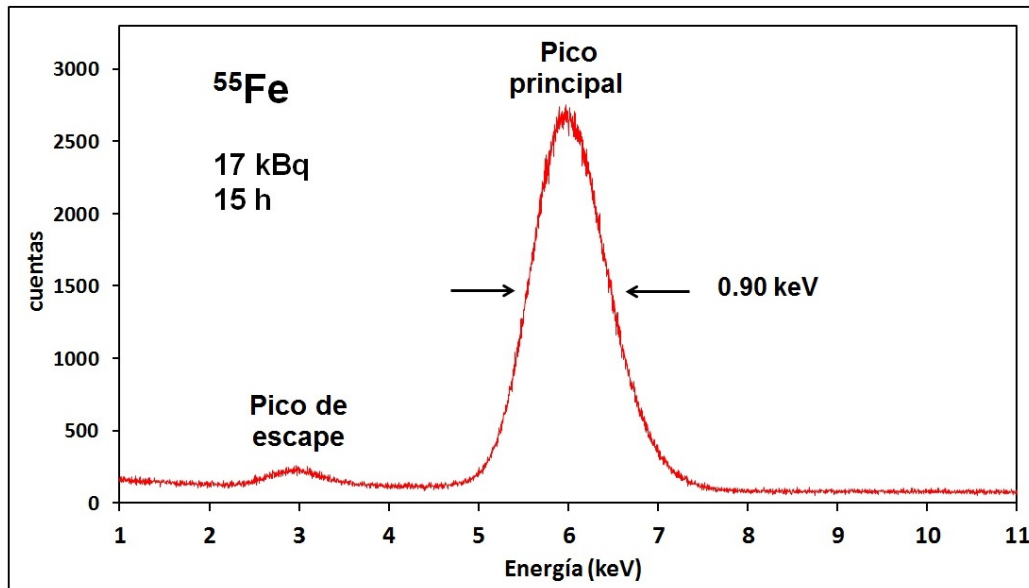


Figura 4.7: Espectro de una fuente de ^{55}Fe de 17 kBq medido durante 15 h en el contador proporcional.

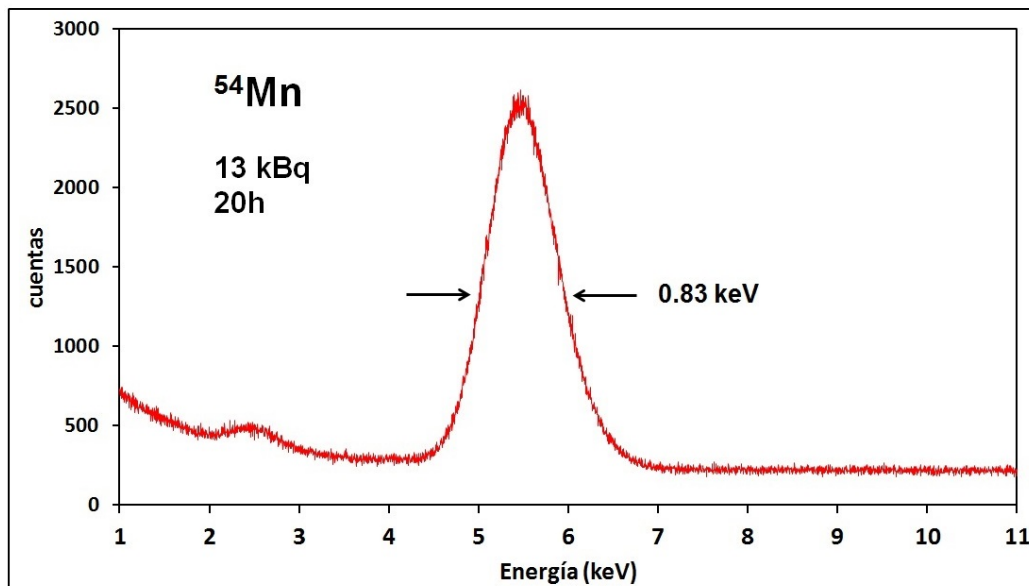


Figura 4.8: Espectro de una fuente de ^{54}Mn de 13 kBq medido durante 20 h en el contador proporcional.

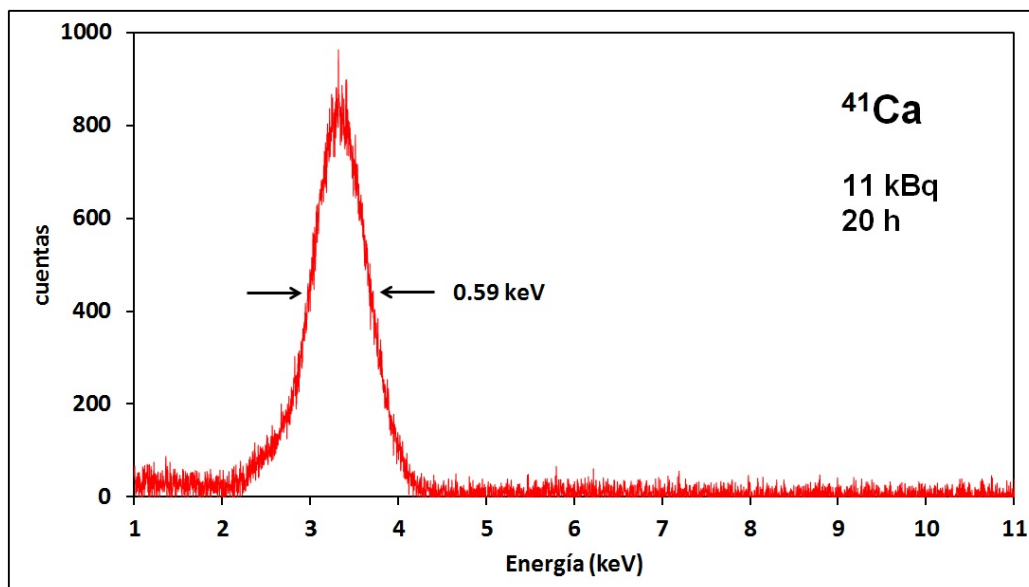


Figura 4.9: Espectro de una fuente de ^{41}Ca de 11 kBq medido durante 20 h en el contador proporcional.

era notablemente superior que en las muestras de los radionucleidos anteriores. La anchura del pico, centrado en 3,34 keV , es de 0,59 keV , que representa aproximadamente un 18 % de la energía del pico. Al igual que en el caso del ^{55}Fe , la desintegración del ^{41}Ca no va acompañada la emisión de rayos γ , por lo que el espectro no presenta un elevado nivel de fondo como consecuencia de la dispersión de esa radiación.

Mediante el sistema descrito en la sección anterior, se lograron medir también los espectros de fluorescencia del titanio (4,6 keV) y del cloro (2,6 keV) excitados con una misma fuente de ^{55}Fe (Fig. 4.10 y 4.11 respectivamente). En ambos se observa, además del pico de fluorescencia del correspondiente elemento, el pico en torno a 6 keV de los fotones procedentes de la fuente de excitación, que en el caso del titanio llega a solaparse parcialmente con el pico de fluorescencia.

La fuente de excitación a fecha de estas medidas tenía una actividad de unos 700 kBq . Sin embargo, la baja eficiencia del proceso de fluorescencia, debida en gran medida a la baja eficiencia geométrica de la excitación, hace que las tasas de recuento de estos espectros sean muy inferiores a las medidas anteriores: en torno a 0,65 cps en el caso del cloro y de 1,8 cps en el del titanio (esta diferencia se debe a que este último presenta una mayor probabilidad de absorción fotoeléctrica, puesto que su número atómico es mayor, y un mayor rendimiento de fluorescencia, y a que la radiación de fluorescencia es más energética y por lo tanto experimenta una menor autoabsorción). Debido a esta baja tasa de emisión de las fuentes de fluorescencia, estos espectros se midieron durante tiempos más largos (60 h), para tener un número de cuentas comparable al de los otros espectros.

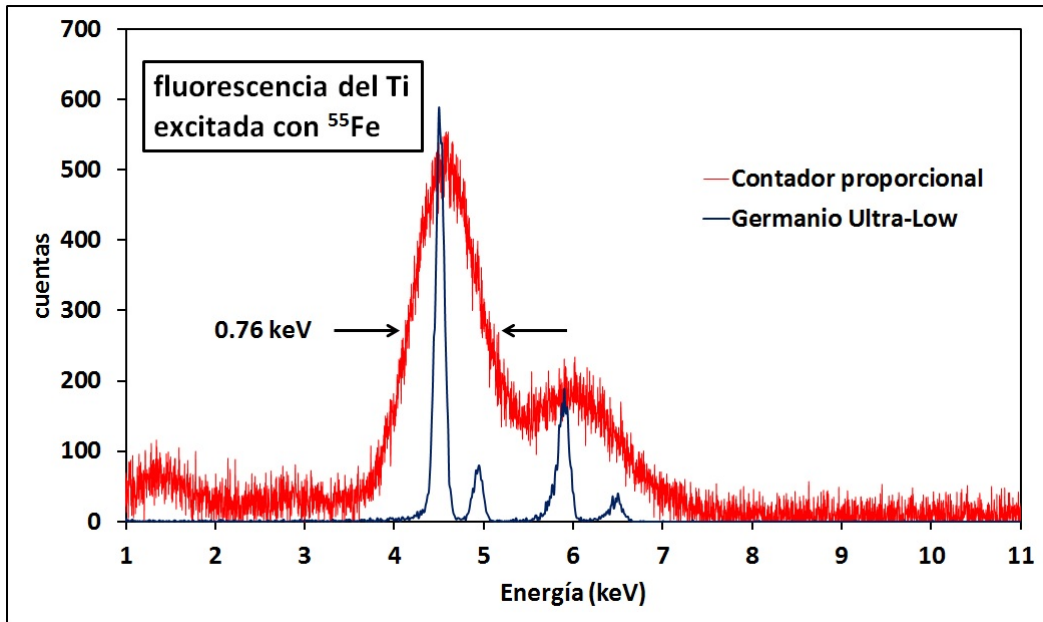


Figura 4.10: Espectro de fluorescencia del titanio excitado con una fuente de ^{55}Fe medido durante 60 h en el contador proporcional (rojo). Se muestra superpuesto sobre el espectro medido con un detector de germanio (azul).

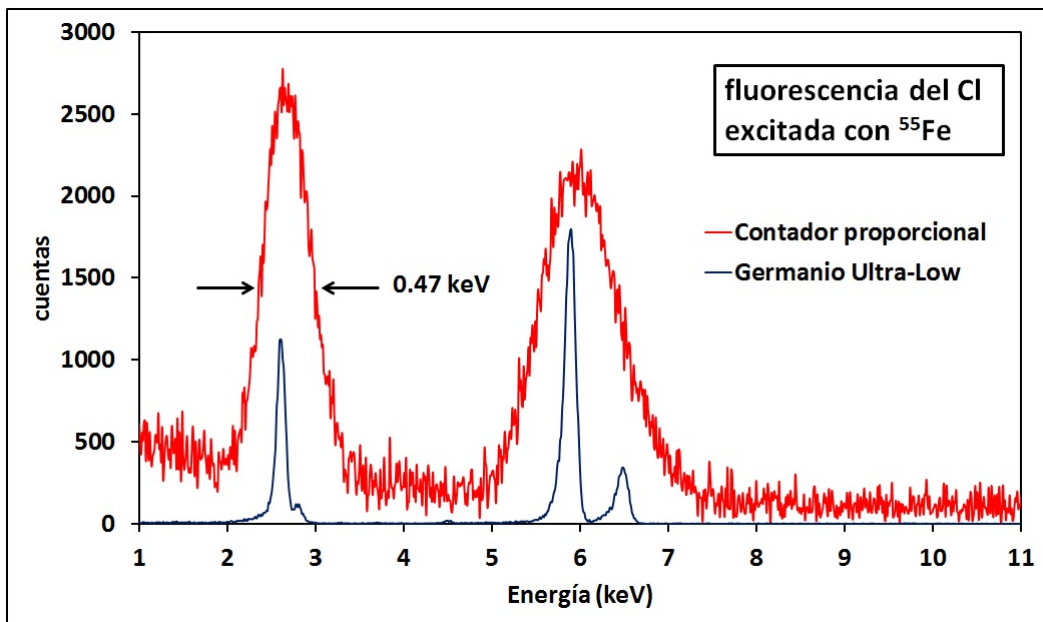


Figura 4.11: Espectro de fluorescencia del cloro excitado con una fuente de ^{55}Fe medido durante 60 h en el contador proporcional (rojo). Se muestra superpuesto sobre el espectro medido con un detector de germanio (azul).

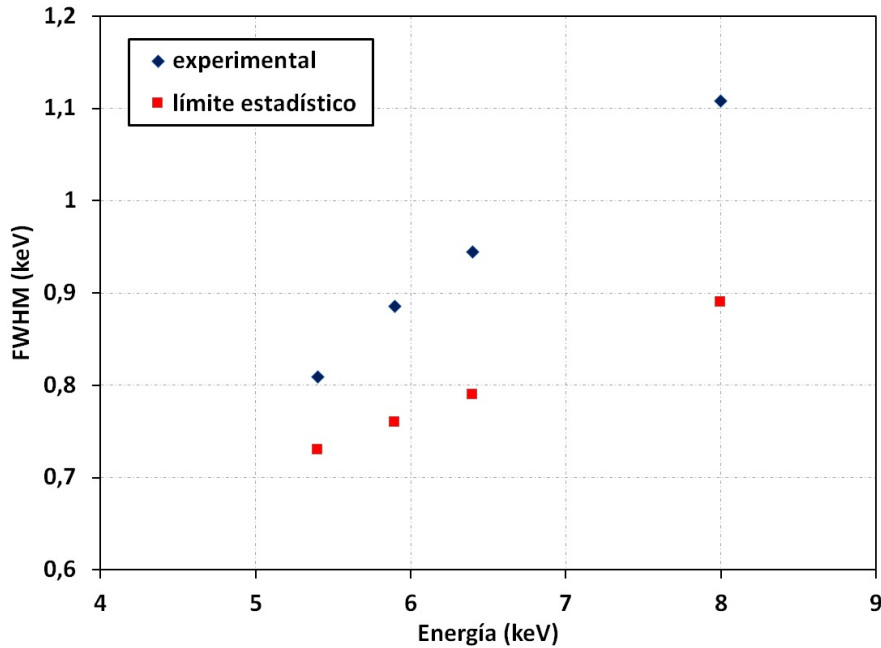


Figura 4.12: Comparación de la resolución del contador proporcional con el límite teórico derivado de la naturaleza probabilística del proceso de formación de la señal.

Si bien la forma de estos picos es algo menos suave que en los espectros de los radionucleidos, se distinguen nítidamente y muestran una forma adecuada. Así, mediante estas medidas se comprueba el buen funcionamiento del contador para la medida de fuentes con baja tasa de emisión, incluso por debajo de 3 keV .

Todos los picos de los espectros medidos son el resultado de dos bandas de emisión que un detector de ionización gaseosa es incapaz de resolver. Mediante un ajuste no lineal (detallado en la sección 4.3), se han descompuesto los picos en una suma de dos Gaussianas, con el objetivo de estimar cuál sería la resolución del contador para haces de radiación monoenergética y poder compararla así con el límite teórico calculado en la sección 3.1 (Fig. 4.12). Como se puede observar, la anchura experimental es en todos los casos algo superior al límite estadístico, debido a un cierto ensanchamiento que produce el propio ruido electrónico o pequeñas oscilaciones de las condiciones de presión y temperatura del gas durante la medida.

4.3. Medida absoluta de la tasa de emisión

Con el objetivo de comprobar las prestaciones de este contador proporcional como técnica absoluta, se midió la concentración de actividad de una disolución de ^{55}Fe y se comparó el resultado con el valor obtenido mediante otra técnica primaria empleada en el laboratorio (TDCR, *Triple-to-Double Coincidence Ratio* [99, 100]). Cabe señalar que el contador proporcional desarrollado en este

trabajo permite realizar medidas absolutas de tasa de emisión, no de actividad. Sin embargo, puesto que no se dispone de otra técnica primaria que pueda proporcionar medidas absolutas de tasa de emisión para el ^{55}Fe , la única manera de comparar la medida del contador con la medida efectuada por otra técnica es convertir la tasa de emisión en un valor de actividad, para lo cual es necesario utilizar los valores de probabilidad de emisión recogidas en la bibliografía. Una vez comprobado el correcto funcionamiento del contador, el objetivo sería el inverso: a partir de la medida de tasa de emisión realizada con el contador y la medida de actividad obtenida mediante otra técnica, se pueden determinar probabilidades de emisión.

4.3.1. Procedimiento experimental

Mediante la técnica TDCR, basada en medidas de centelleo líquido, se midió la concentración de actividad de una disolución de ^{55}Fe libre de portador. Las medidas se llevaron a cabo mediante un equipo comercial HIDEX 300SL y un sistema desarrollado en el propio laboratorio empleando un módulo electrónico MAC3 proporcionado por el Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) de Francia. El valor obtenido mediante esta técnica fue de $(657 \pm 7) \text{ Bq/mg}$ a la fecha de referencia. Partiendo de esa misma disolución, se prepararon tres fuentes por deposición de una gota como ha sido descrito en la sección 4.1, y cada una de esas fuentes se midió en el contador proporcional durante 15 h.

Para determinar la tasa de recuento, se ajustó el pico a una combinación lineal de dos gaussianas (correspondientes a las emisiones K_α y K_β del ^{55}Fe) más un fondo lineal de pendiente y ordenada en el origen ajustables. En este ajuste, se impuso como condición que la anchura de las dos curvas gaussianas fueran iguales ($\sigma_1 = \sigma_2 = \sigma$), y la separación entre sus centros se mantuvo constante e igual a $0,6 \text{ keV}$ ($m_2 - m_1 = 0,6 \text{ keV}$). De esta manera, la función de ajuste es

$$y(x) = G_1 + G_2 + \text{fondo} \quad (4.1)$$

donde

$$\begin{aligned} G_1 &= A_1 \cdot \exp\left(-\frac{(x - m_1)^2}{2\sigma^2}\right) \\ G_2 &= A_2 \cdot \exp\left(-\frac{(x - (m_1 + 0,6 \text{ keV}))^2}{2\sigma^2}\right) \\ \text{fondo} &= a + bx \end{aligned} \quad (4.2)$$

Los parámetros del ajuste son, por tanto, la altura de cada una de las gaussianas (A_1 y A_2), su anchura (σ) y la posición de la primera de ellas (m_1).

El área de cada pico se calcula entonces como

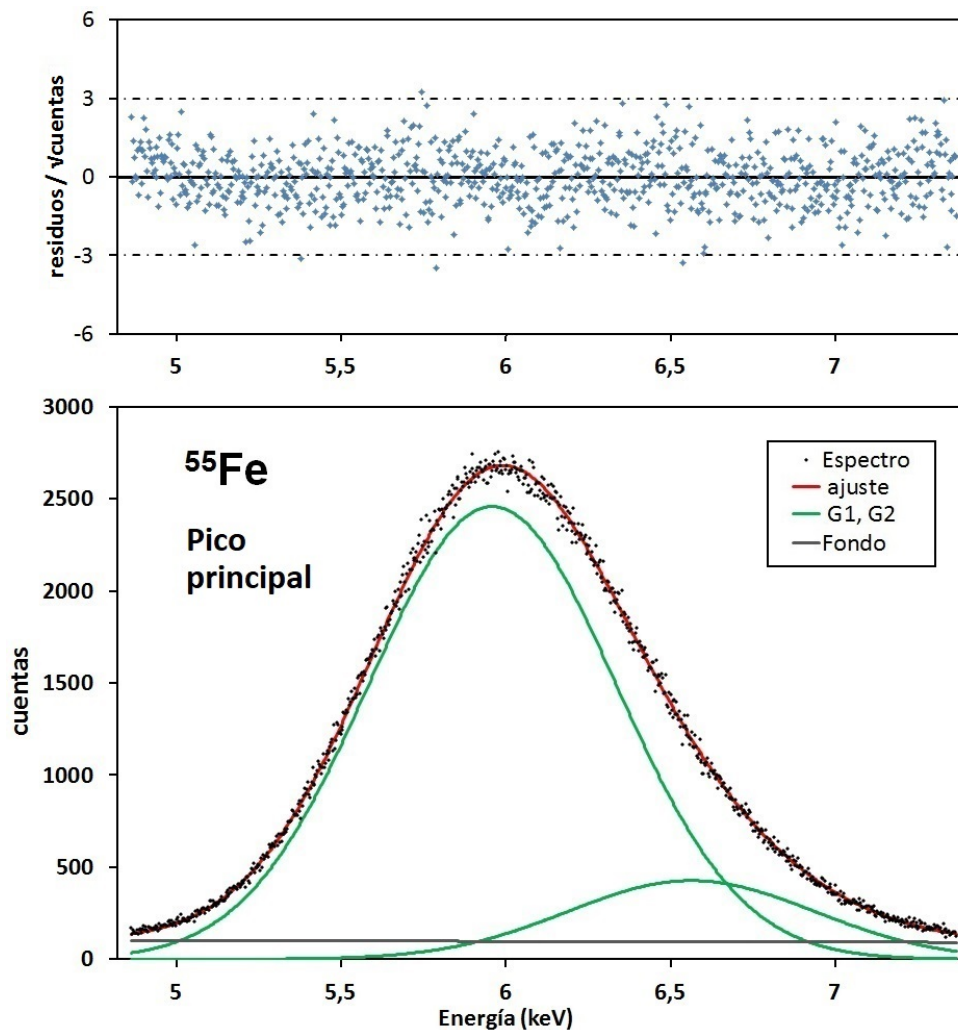


Figura 4.13: Ajuste del pico principal del espectro de una muestra de ^{55}Fe medido con el contador proporcional para la determinación de la tasa de emisión.

$$\text{Área} = (A_1 + A_2) \cdot \sigma \cdot \sqrt{2\pi} \quad (4.3)$$

El ajuste fue llevado a cabo mediante el código DATAPLOT, desarrollado en el NIST (Estados Unidos) [101].

La figura 4.13 muestra el ajuste del pico principal, y la 4.14, el ajuste del pico de escape. Como se puede observar, el espectro experimental se ajusta adecuadamente a la función, y los residuos son pequeños y no siguen ningún patrón definido.

A partir de la tasa de recuento calculada del ajuste, y aplicando las correcciones descritas en el capítulo 3, se calculó la tasa de emisión de cada una de las tres fuentes (tabla 4.1).

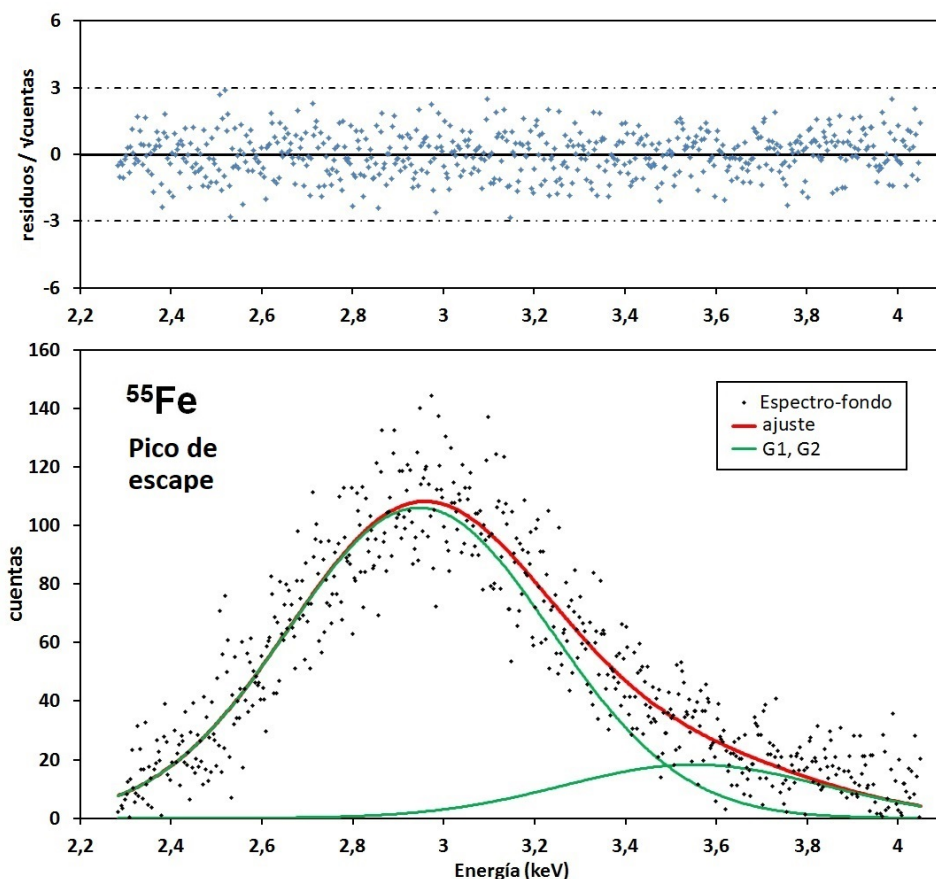


Figura 4.14: Ajuste del pico de escape del espectro de una muestra de ^{55}Fe medido con el contador proporcional para la determinación de la tasa de emisión.

No es necesario realizar correcciones adicionales debido a la presencia de impurezas. Dependiendo del proceso de obtención, ^{55}Fe puede contener impurezas de ^{59}Fe o de ^{55}Co . Este último tiene un periodo de semidesintegración de unas pocas horas, por lo que, aunque hubiera estado presente originalmente en la disolución, ya se habría desintegrado por completo en el momento de la medida, tras los aproximadamente dos años que transcurrieron desde su adquisición. El periodo del ^{59}Fe es de unos 44 días, por lo que su concentración habría disminuido en casi un factor 10^5 desde su obtención, sumado al hecho de que su probabilidad de emisión de rayos X de energías próximas a 6 keV que pudieran interferir en la medida de ^{55}Fe es del orden del 0,02 %.

Para obtener un valor de actividad, se dividió la tasa de emisión entre la probabilidad de emisión recogida en la bibliografía [102], y, dividiendo entre la masa de cada fuente, se obtuvo la actividad por unidad de masa de la disolución inicial. Como se puede observar en la tabla, los valores de concentración de actividad determinados a partir de las tres fuentes son compatibles.

El promedio de la concentración de actividad medido a partir de las tres

Número de muestra		# 1	# 2	# 3
masa de la muestra (mg)		27,956 (28)	25,672 (26)	30,163 (30)
tasa de recuento (s^{-1})	pico principal	22,37 (13)	20,64 (12)	24,34 (14)
	pico de escape	0,71 (12)	0,68 (11)	0,77 (13)
	total	23,08 (18)	21,33 (17)	25,11 (19)
Eficiencia intrínseca		0,9939 (19)		
Ángulo sólido		0,004460 (29)	0,004463 (29)	0,004466 (29)
Tasa de emisión (s^{-1})		5208 (54)	4808 (50)	5657 (57)
Probabilidad de emisión		0,2842 (48)		
Actividad (kBq)		18,33 (36)	16,92 (34)	19,90 (39)
Concentr. de actividad (Bq/mg)		655 (13)	659 (13)	660 (13)

Tabla 4.1: Determinación de la concentración de actividad de la disolución original de ^{55}Fe a partir de las tasas de recuento de las fuentes medidas.

fuentes es de

$$(658 \pm 13) \text{ Bq/mg}$$

Este valor y el obtenido mediante TDCR son compatibles, y su discrepancia es muy inferior a la incertidumbre en la probabilidades de emisión bibliográficas empleadas para el cálculo de la actividad. Esto implica, por una parte, que los resultados obtenidos mediante las dos técnicas empleadas no presentan diferencias significativas, y por otra, que sería posible calcular la probabilidad de emisión mediante la combinación de una medida absoluta en actividad con la medida absoluta de tasa de emisión proporcionada por el contador proporcional.

4.3.2. Análisis de incertidumbres

El cómputo de las incertidumbres en este trabajo se ha llevado a cabo de acuerdo con las recomendaciones internacionales del BIPM [103]. La tabla 4.2 recoge detalladamente todas estas componentes.

La incertidumbre en la determinación de la tasa de emisión de cada una de las fuentes se compone de la incertidumbre en la eficiencia intrínseca del contador (calculada en la sección 3.7), en la eficiencia geométrica (sección 3.2) y la incertidumbre en la tasa de recuento, proporcionada por el ajuste de los picos. Esta última incluye implícitamente la incertidumbre en la determinación del fondo, ya que este fue incluido como una función ajustable.

La incertidumbre en la actividad de cada muestra se compone de la incertidumbre en la determinación de su tasa de emisión más la incertidumbre en las probabilidades de emisión tomadas de la bibliografía. La incertidumbre en la concentración de actividad incluye también la incertidumbre de la pesada, aunque esta contribución es muy reducida con respecto a las demás.

Incertidumbre estándar / 10^{-2}				
Cantidad Q	Incert. relativa de Q	Contribución a la incert. total	Tipo	Comentario
Estadística de recuento	0,77	0,77	B	Obtenido del ajuste. Incluye fondo
tiempo muerto/vivo	0,01	0,01	B	
Ángulo sólido	0,65	0,65	B	De las dimensiones de la cámara
Eficiencia intrínseca	0,19	0,19	B	De la probabilidad de interacción, correcciones por dispersión y atenuación en la ventana y el He
COMBINADA tasa emisión	1	1		
Datos nucleares empleados	1,7	1,7	B	De las probabilidades de emisión tomadas de la bibliografía
COMBINADA actividad		2,0		
Pesada	0,1	0,1	B	
COMBINADA Concentr. Act.		2,0		

Tabla 4.2: Análisis de incertidumbres en la determinación de la concentración de actividad.

4.3.3. El problema del pico de escape

En los espectros de ^{55}Fe medidos para la determinación de las tasas de emisión de estas muestras, ha sido posible calcular el área del pico de escape mediante el ajuste matemático a la función propuesta, puesto que el pico es nítidamente distinguible del fondo y presenta una forma asemejable a una gaussiana. Sin embargo, en otros radionucleidos que también emitan radiación γ , como es el caso del ^{54}Mn y del ^{65}Zn (figuras 4.8 y 4.5), la dispersión gamma puede distorsionar la forma del pico de escape y dificultar su ajuste. En estos casos, únicamente es posible calcular experimentalmente el área del pico principal, y sería entonces necesario calcular el factor de corrección por escape mediante una simulación de Monte Carlo. La figura 4.15 (azul) muestra el cociente entre el área del pico principal y el área total en el espectro calculado mediante simulaciones con PENELOPE para distintas energías de la radiación incidente.

Con el objetivo de comprobar la fiabilidad del factor de corrección por escape calculado por Monte Carlo, se comparó el cociente entre el área del pico principal y el área total en los espectros de ^{55}Fe medidos experimentalmente con el factor de corrección obtenido en un espectro simulado con PENNUC. La figura 4.16 (rojo) muestra el espectro de ^{55}Fe obtenido mediante la simulación,

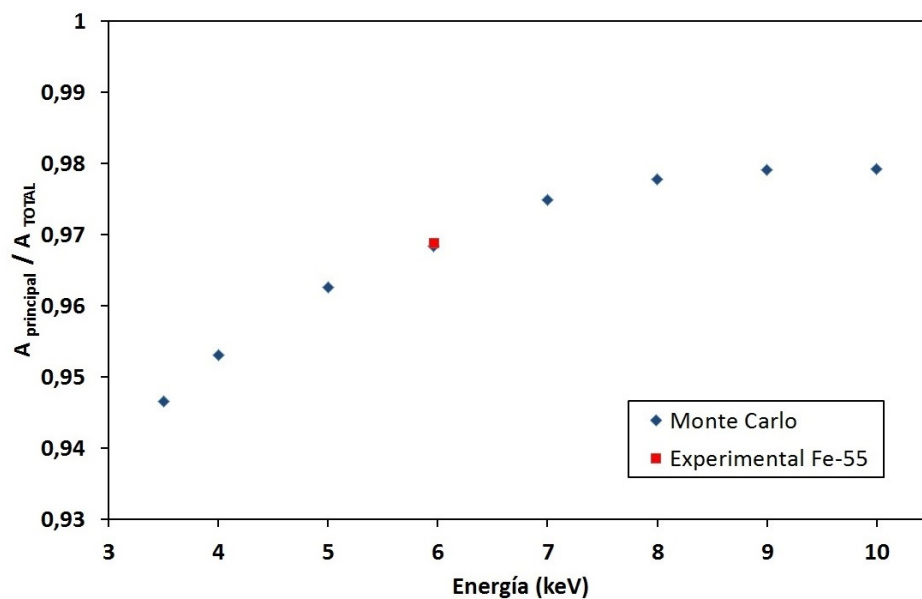


Figura 4.15: Factor de corrección por escape en función de la energía de la radiación incidente calculado mediante simulaciones de Monte Carlo (azul) y experimental obtenido para la muestra 2 de ^{55}Fe (rojo).

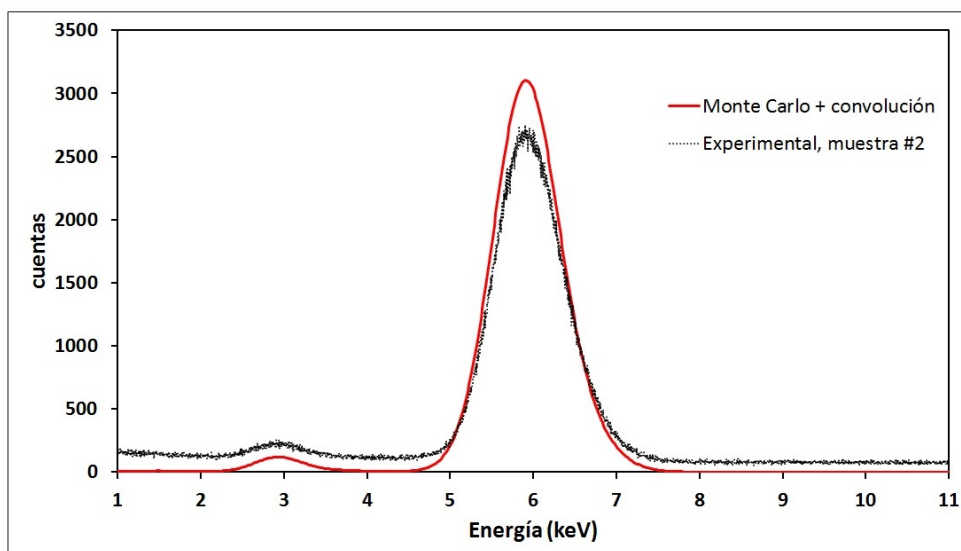


Figura 4.16: Espectro experimental de la muestra 2 de ^{55}Fe (negro) y espectro obtenido mediante la simulación de Monte Carlo con PEN-NUC (rojo), convolucionado con la resolución gaussiana del detector y multiplicado por la actividad de la muestra 2 y por los factores de transmisión en la ventana y el He .

$A_{\text{pico principal}}/A_{\text{TOTAL}}$		
EXPERIMENTAL	Muestra 1	0,969 (9)
	Muestra 2	0,968 (8)
	Muestra 3	0,969 (9)
	MEDIA	0,9688 (9)
Monte Carlo		0,9683 (12)

Tabla 4.3: Cociente entre el área del pico principal y el área total obtenido para las tres muestras medidas de ^{55}Fe comparado con el valor obtenido en el espectro simulado por Monte Carlo.

convolucionado con la respuesta gaussiana del detector, y en negro se muestra el espectro experimental obtenido en la medida de la muestra 2 (el espectro obtenido de la simulación se ha multiplicado por la actividad de la muestra para comparar el espectro simulado y el experimental).

La tabla 4.3 recoge la comparación del factor de corrección por escape calculado mediante la simulación con el obtenido experimentalmente para cada una de las tres muestras medidas. Como se puede apreciar, existe una buena correspondencia entre ellos, lo cual indica que el valor de tasa de emisión obtenido por el procedimiento de aplicar al área del pico principal un factor de corrección por escape calculado por Monte Carlo sería perfectamente fiable.

4.3.4. Medida de la tasa de emisión de una fuente de ^{65}Zn

Con el objetivo de poner en práctica la determinación de tasas de emisión mediante la aplicación del factor de corrección por escape calculado por Monte Carlo, se midió la tasa de emisión de una fuente de ^{65}Zn , en que el nivel de fondo del espectro ocasionado por la dispersión γ impide la correcta cuantificación del pico de escape. Al igual que se hizo en el caso del ^{55}Fe , se infirió la concentración de actividad de la disolución original a partir de la masa de la muestra y de las probabilidades de emisión tomadas de la bibliografía [102], para poder comparar el resultado con el valor obtenido mediante otras técnicas.

Para ello, se preparó una muestra por deposición de una gota de masa conocida de una disolución de ZnCl_2 sobre un soporte, como se ha relatado en la sección 4.1. Se midió el espectro de esta muestra en el contador proporcional durante 60 h y se ajustó el pico principal a la suma de dos gaussianas más un fondo lineal (ecuación 4.2). Este ajuste, junto con los residuos, se muestra en la figura 4.17. Puesto que el nivel de fondo es muy elevado, para facilitar la visualización, en la figura se muestra el espectro experimental al que se le ha sustraído ya la función del fondo obtenida en el ajuste, y este valor es el que se compara con la suma de las gaussianas.

A partir de las dos gaussianas se obtuvo el área del pico principal, y aplicando

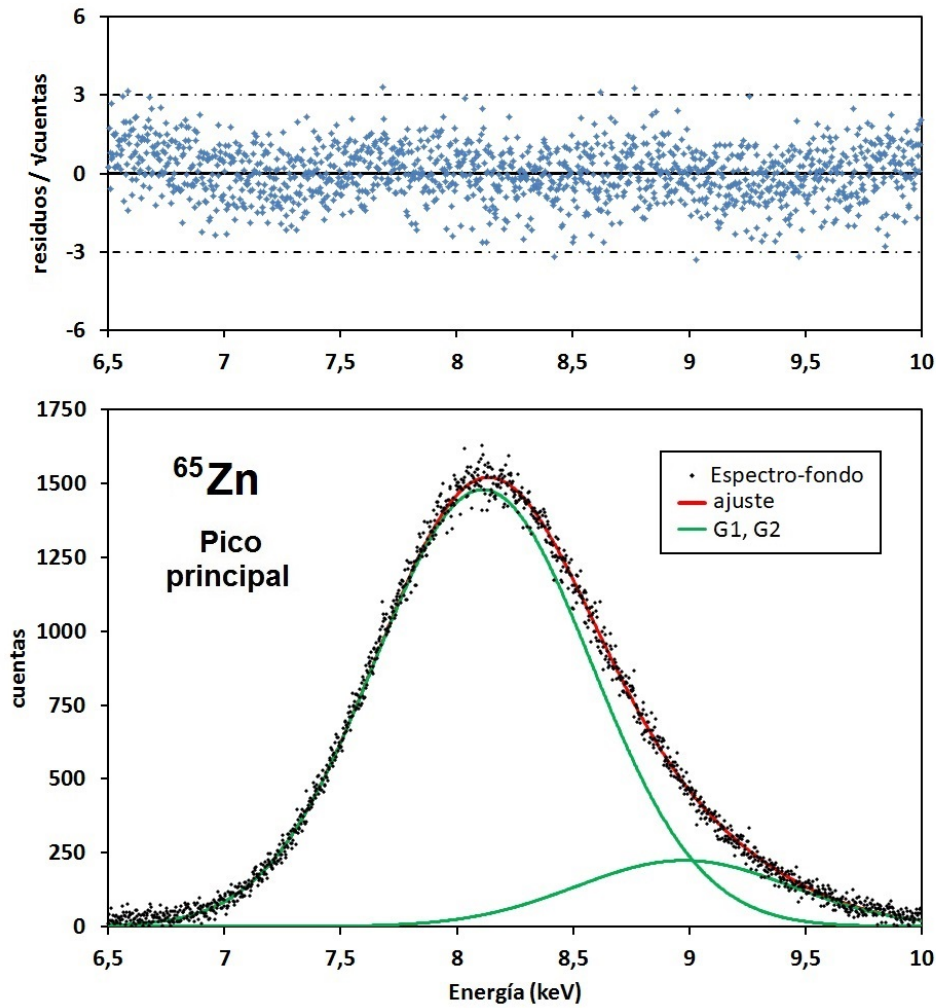


Figura 4.17: Ajuste del pico principal del espectro de una muestra de ^{65}Zn medido con el contador proporcional para la determinación de la tasa de emisión.

la corrección por escape obtenida por Monte Carlo, se calculó el área total. Mediante la aplicación de los diversos factores de corrección, se determinó la tasa de emisión de la fuente (Tabla 4.4).

Mientras que en las medidas de ^{55}Fe el tiempo de medida (15 h) era despreciable frente al periodo de semidesintegración del radionucleido (2,727 años), para las medidas de ^{65}Zn sí es necesario realizar la corrección por decaimiento durante la medida, ya que esta dura varios días y su periodo es de 244 días. Por ello, para obtener la tasa de recuento al comienzo de la medida, es necesario multiplicar la tasa de recuento promedio por un factor de corrección:

$$N_0 = \langle N \rangle \frac{\lambda t_{\text{medida}}}{1 - e^{-\lambda t_{\text{medida}}}} \quad (4.4)$$

tasa de recuento (s^{-1})	Pico principal	3,524 (14)
	Corr. escape	0,9783
	Pico principal+escape	3,602 (15)
	Corr. decaimiento	1,00356 (1)
	Total	3,615 (15)
Ángulo sólido		0,004540 (30)
Prob. interacción		0,9603 (41)
Corr. dispersión		1,0118 (37)
Atenuación ventana		0,9889 (8)
Atenuación He		0,99993 (1)
Corr. autoabsorción		0,99965 (3)
Corr. suma coinc.		0,9981 (3)
Tasa de emisión (s^{-1})		831 (8)
Probabilidad de emisión		0,3949 (26)
Actividad (kBq)		2103 (25)
masa de la muestra (mg)		24,170 (24)
Concentr. de actividad (Bq/mg)		87 (1)

Tabla 4.4: Determinación de la concentración de actividad de la disolución original de ^{65}Zn a partir de las tasas de recuento de la fuente medida.

Nota: La corrección por atenuación en la ventana es similar a la de la medida del ^{55}Fe aunque la energía de los rayos X es mayor porque tuvo que utilizarse una ventana de repuesto, cuyo grosor era mayor que el de la anterior.

donde λ es la constante de desintegración ($\ln 2/T_{1/2}$). Para el caso de una medida de 60 h de ^{65}Zn , este factor de corrección es igual a 1,0036.

A diferencia de la disolución de ^{55}Fe empleada en la medida anterior, la disolución de ^{65}Zn contenía una cantidad significativa de ZnCl_2 estable o portador (unos 55 $\mu\text{g/g}$), por lo que el espesor de la fuente es mayor y es necesario considerar la autoabsorción. A partir de la concentración total de ZnCl_2 de la disolución, la masa de la alícuota depositada y el diámetro estimado de la fuente, se estimó un espesor másico de unos 8,6 $\mu\text{g/cm}^2$. Tomando la sección eficaz de interacción de $X\text{COM}$ y aplicando la ecuación 1.30 se estimó la autoabsorción en la muestra.

Al contrario de lo que sucede con el ^{55}Fe , que no presenta ninguna emisión γ de probabilidad significativa, en la medida del ^{65}Zn es necesario considerar la necesidad de aplicar una corrección por suma en coincidencia. El 50,77 % de los fotones X_k emitidos por el ^{65}Zn se emiten en coincidencia con un fotón γ de 1116 keV [102]. Cierta proporción de estos fotones γ pueden acabar depositando parte de su energía dentro del contador como consecuencia de una sucesión de procesos de dispersión elástica, inelástica, formación de pares (si la energía es suficientemente elevada), o finalmente absorción fotoeléctrica. Por tanto, existe una probabilidad no nula de que al detectarse un fotón X_k se detecte a la vez

(dentro de la resolución temporal del detector) un fotón que sea consecuencia de esa emisión γ emitida simultáneamente, y por tanto el evento no sea registrado en el pico principal del espectro, sino con una energía más alta. Será necesario entonces aplicar un factor de corrección que dé cuenta de los fotones X_k que son detectados en el contador pero que son registrados con una energía más alta y por tanto no contribuyen al área del pico.

Para poder evaluar esta corrección, se calculó la fracción de fotones γ que depositan parte o la totalidad de su energía en el contador proporcional. Para ello, se realizó la simulación de Monte Carlo de la emisión isotrópica de 10^7 fotones de 1116 keV desde la posición de la muestra en el modelo del contador proporcional. El espectro de energía depositada en el gas del contador se muestra en la figura 4.18. Este cálculo indica que, por cada fotón de 1116 keV emitido por la muestra, $0,0037 \pm 0,0005$ depositan parte de su energía en el contador. Puesto que el $50,77\%$ de las veces que se emite un fotón X_k se emite también un fotón γ , por cada fotón X_k detectado, $0,0019 \pm 0,0003$ se registran con una energía mayor. Por ello, es necesario dividir la tasa de recuento entre $1 - 0,0019$ para obtener la tasa real de fotones detectados.

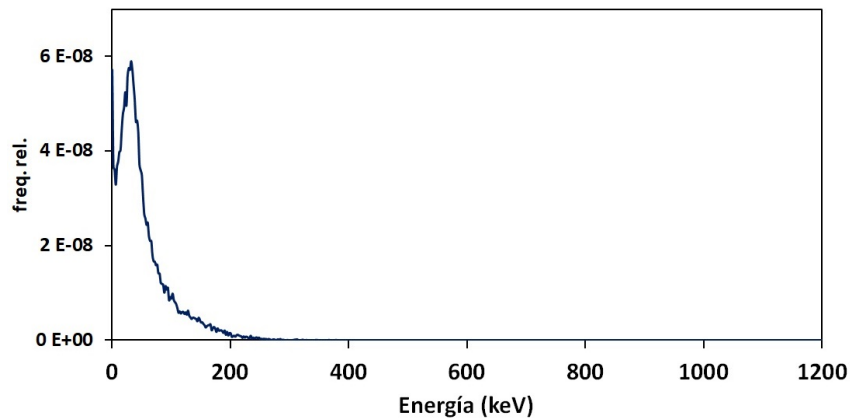


Figura 4.18: Señal en el contador proporcional debida a la emisión de fotones γ de 1116 keV por parte de la muestra, calculada mediante una simulación de Monte Carlo con PENELOPE.

Las demás correcciones son formalmente idénticas a las aplicadas a la medida de ^{55}Fe en la sección anterior.

Las posibles impurezas de ^{64}Cu , ^{67}Cu y ^{69m}Zn tienen periodos de semidesintegración de algunas horas, por lo que, de haber estado presentes originalmente en la disolución, ya habrían desaparecido en el momento de la medida, puesto que había transcurrido más de un año desde su adquisición. Las posibles impurezas de ^{60}Co , con un periodo más largo, no se han observado en el espectro gamma. Por tanto, no es necesario realizar ninguna corrección por este motivo.

La concentración de actividad de la disolución original se calibró de manera independiente mediante dos técnicas de centelleo líquido: TDCR (empleando los

mismos equipos que para la medida del ^{55}Fe de la sección 4.3.1) y CIEMAT-NIST [104, 105] (mediante un equipo comercial Tri-Carb 4910TR). El valor obtenido mediante TDCR fue de $(87,5 \pm 0,6) \text{ Bq/mg}$ y mediante CIEMAT-NIST de $(87,0 \pm 0,6) \text{ Bq/mg}$. Con el objetivo de poder comparar la medida del contador proporcional con estas otras dos técnicas, se convirtió el valor obtenido de tasa de emisión en concentración de actividad, empleando la probabilidad de emisión bibliográfica y la masa de la alícuota. La concentración de actividad así determinada fue de $87 \pm 1 \text{ Bq/mg}$, lo cual está en buena consonancia con el resultado de las dos técnicas de centelleo líquido.

4.3.5. Determinación de probabilidades de emisión mediante medidas independientes de la actividad

El contador proporcional presentado en este trabajo opera como técnica absoluta para la determinación de tasas de emisión. Así pues, mediante la combinación con la medida de la actividad de una muestra proporcionada por otra técnica (como TDCR o CIEMAT-NIST), se puede determinar la probabilidad de emisión X_k de un radionucleido.

Sin embargo, la mayor objeción que puede hacerse al empleo de estas técnicas es que ambas precisan del conocimiento del esquema de decaimiento y son sensibles a las probabilidades de emisión. Si bien es cierto que el resultado final puede no ser muy sensible a esas probabilidades, convirtiendo el método en “cuasi-primario”, siempre queda impreso en el procedimiento la utilización de datos que sólo han podido ser conocidos mediante calibraciones anteriores.

Por ello, se ha considerado en este trabajo la posibilidad de, en el futuro, determinar probabilidades de emisión de algunos radionucleidos mediante una técnica que no requiera conocer previamente la actividad de la muestra.

Este método [50] consiste en la medida en coincidencia de los rayos X detectados con el contador proporcional, cuya eficiencia de detección se conoce de manera absoluta, y los rayos γ detectados en un detector de alta eficiencia intrínseca en este rango, como puede ser un detector de NaI , cuya eficiencia total de detección no es necesario conocer. Como se verá, esta determinación no requiere ningún conocimiento previo de las probabilidades de emisión, por lo que se trata de un método, si se nos permite decirlo así, “más absoluto” que el TDCR o CIEMAT-NIST.

Para evaluar esta posibilidad, se ha decidido realizar una medida preliminar de la probabilidad de emisión X_k del ^{65}Zn . Este radionucleido, como se ha dicho anteriormente, decae por captura electrónica al ^{65}Cu mediante dos ramas, una de ellas al estado fundamental y la otra a un estado excitado de 1116 keV , desde donde se emite un fotón de esa energía, siendo despreciable el fenómeno de conversión interna. El esquema simplificado de decaimiento puede verse en la figura 4.19. En el proceso de relajación electrónica que sucede a la desintegración por captura, el ^{65}Cu emite rayos X_k de entre 8 y 9 keV (además de los X_L , de

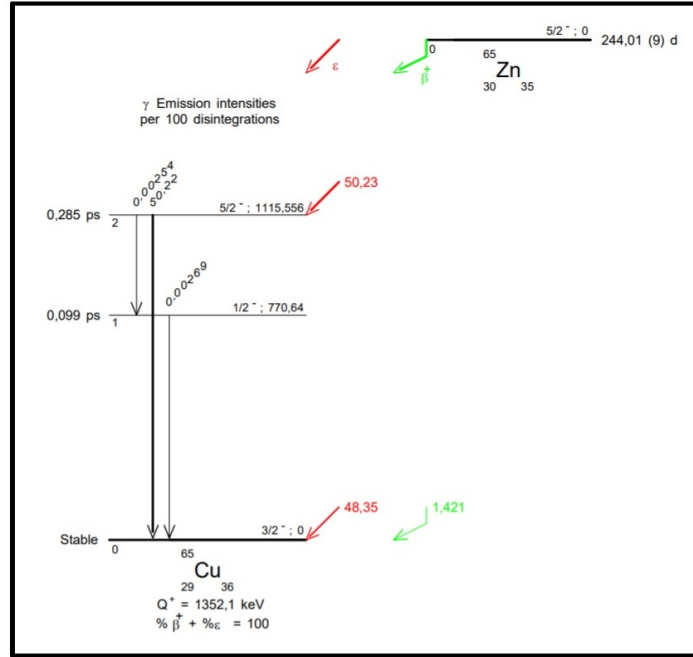


Figura 4.19: Esquema de la desintegración del ^{65}Zn . Tomado de [98].

energía mucho menor). El valor aceptado actualmente en la bibliografía para la probabilidad de emisión X_k es de 0,3949. La otra forma de desintegración que presenta en menor proporción el ^{65}Zn , la desintegración β^+ , no es de utilidad para esta medida.

La medida consiste en contar durante un determinado tiempo t_{medida} el número de fotones γ detectados en el detector de $\text{NaI}(\text{Tl})$ y el número de eventos registrados simultáneamente en el $\text{NaI}(\text{Tl})$ y en el contador proporcional. La estandarización del ^{65}Zn mediante coincidencias $4\pi\text{PC} - \gamma$ ha sido llevada a cabo y descrita en varias ocasiones [106–108]. Solé et al. [50], en cuyo trabajo se basa esta medida, emplean en cambio un contador proporcional de ángulo sólido definido para la medida específica de la probabilidad de emisión $P_k \omega_k$.

Para ello, se colocó una fuente de ^{65}Zn en la cámara de la muestra del contador proporcional, se llenaron las dos cámaras con sus respectivos gases y se polarizó el contador con una tensión de 1900 V para la medida de los rayos X como en ocasiones anteriores. Adicionalmente, debajo de la cámara de la muestra, se colocó un detector de $\text{NaI}(\text{Tl})$ cilíndrico de 2×2 pulgadas ($5 \times 5 \text{ cm}$) modelo Harshaw, sensible a la radiación γ de 1116 keV. La medida de la fuente se llevó a cabo durante 110 000 s. La señal procedente del detector de $\text{NaI}(\text{Tl})$ es procesada por un amplificador Tennelec y conducida a un analizador monocanal modelo Ortec 551, que selecciona los pulsos del pico de absorción total. La señal procedente del contador proporcional se procesa, como en ocasiones anteriores, mediante un preamplificador Ortec 142 PC y un amplificador Ortec 671, y desde allí es conducida a otro analizador monocanal que únicamente elimina los pulsos de muy baja amplitud para eliminar el ruido electrónico y los pulsos debidos a

la detección de fotones X_L . Las señales de ambas vías se dirigen a un módulo de coincidencias que produce un pulso lógico cuando recibe por las dos vías sendas señales simultáneas. Puesto que la formación de la señal en el contador proporcional es más lenta que en el detector de $NaI(Tl)$, la señal de la vía X se retarda un tiempo suficiente para que las señales lleguen a la vez al módulo de coincidencias. Adicionalmente, se impone que los pulsos de salida del mono-canal de la vía γ sean suficientemente largos (varias decenas de microsegundos) para abarcar la dispersión que existe en el tiempo de formación de la señal del contador proporcional. La señal de la vía γ se dirige, además de al módulo de coincidencias, a una escala para el recuento de los eventos γ .

Así, la tasa de recuento γ es

$$N_\gamma = N_0 P_{\epsilon_{0,2}} \frac{1}{1 + \alpha} \epsilon_\gamma \quad (4.5)$$

donde N_0 es la actividad de la fuente, $P_{\epsilon_{0,2}}$ es la probabilidad de captura electrónica al segundo nivel nuclear excitado (de 1116 keV), ϵ_γ es la eficiencia de detección γ y α es la suma de los coeficientes de conversión interna.

La tasa de coincidencias es entonces

$$N_{X_k, \gamma} = N_\gamma P_k \omega_k \epsilon_X = N_0 P_{\epsilon_{0,2}} \frac{1}{1 + \alpha} \epsilon_\gamma P_k \omega_k \epsilon_{X_k} \quad (4.6)$$

donde ϵ_{X_k} es la eficiencia de detección de los fotones X_k , P_k es la fracción de desintegraciones que se producen por captura de un electrón de la capa k y ω_k es el rendimiento de fluorescencia de la capa k , es decir, la probabilidad de que una vacante en la capa k implique la emisión de un fotón X_k . El producto $P_k \omega_k$ es entonces la probabilidad de emisión de fotones X_k , es decir, el número de fotones X_k emitidos en cada desintegración radiactiva.

El cociente entre la tasa de coincidencias y la tasa γ proporciona

$$\frac{N_{X_k, \gamma}}{N_\gamma} = \epsilon_{X_k} P_k \omega_k \quad (4.7)$$

Puesto que la eficiencia de detección del contador proporcional, ϵ_{X_k} , se conoce de manera absoluta, la medida de este cociente permite determinar la probabilidad de emisión $P_k \omega_k$ sin necesidad de conocer la actividad de la fuente.

Tanto a la tasa de recuento γ como a la de coincidencias es necesario restarles la medida del fondo, debido a la presencia de radionucleidos ambientales o radiación cósmica que puede originar una señal tanto en el contador proporcional como en el detector γ , y cuya contribución puede llegar a ser muy significativa. La medida del fondo se llevó a cabo durante 250 000 s.

Además, a la tasa de coincidencias hay que restarle la tasa de coincidencias accidentales, ya que existe cierta probabilidad de que dos fotones que no pro-

Tasa bruta gamma	17,683 (13)
Tasa fondo gamma	14,201 (8)
Tasa neta gamma (N_γ)	3,482 (15)
Tasa bruta coincidencias	0,0127 (3)
Tasa fondo coincidencias	0,00477 (14)
Tiempo de resolución τ_r (μs)	3,20 (3)
Tasa contador proporcional	20,083 (14)
Tasa coincidencias accidentales	0,00227 (2)
Tasa neta coincidencias ($N_{X_k, \gamma}$)	0,0080 (4)
Eficiencia X_k (ϵ_{X_k})	0,00432 (4)
$P_k \omega_k$	0,380 (25)

Tabla 4.5: Determinación de la probabilidad de emisión $P_k \omega_k$ del ^{65}Zn a partir de la medida de coincidencias de los fotones X_k y γ .

ceden de la misma desintegración sean detectados con una separación temporal inferior al tiempo de resolución de la medida, y por tanto serán contabilizadas como una coincidencia aun cuando en realidad son eventos independientes.

En un modelo simplificado, válido siempre que las tasas de recuento de ambos detectores sean pequeñas respecto del inverso del tiempo de resolución, la tasa de coincidencias accidentales es igual a

$$N_{accid} = 2 \tau_r N_X N_\gamma \quad (4.8)$$

donde τ_r es el tiempo de resolución del sistema de coincidencias, N_X es la tasa de recuento en el contador proporcional y N_γ es la tasa de recuento del detector γ . El estudio exhaustivo de las correcciones a la medida por coincidencias se recoge en [109].

Los resultados preliminares arrojan un valor de $P_k \omega_k = (0,380 \pm 0,025)$ (Tabla 4.5).

Este resultado está lejos de ser definitivo, ya que una medida precisa de la probabilidad de emisión por este método requeriría una estadística de recuento mucho mayor, con tiempos de medida más largos, pero sin duda abre la puerta a la aplicación del contador proporcional a este tipo de medidas.

Capítulo 5

Conclusions

A new instrument has been designed and built from scratch for the absolute measurement of low-energy X -ray emission rates. It consists in an argon-methane proportional counter that operates under the principle of low-solid-angle counting. Its dimensions and operating parameters have been chosen to ensure a high intrinsic efficiency, a good reproducibility in the charge collection and a low uncertainty in the determination of emission rates.

Calculations showed that a 20-*cm*-diameter cylinder filled with $Ar + CH_4$ (9:1) at 1000 *hPa* suffices to keep the probability of interaction with the gas over 90% in the energy range covered. Experimental tests indicated that a 1900-*V* tension is adequate for the correct formation of the signal and to minimize the electronic noise, and the operating parameters of the electronic chain were set accordingly.

An alternative material has been employed for the detector window: reduced graphene oxide, which was found to have some mechanical advantages over beryllium: it is less fragile and rigid, which allows a better coupling with the diaphragm, thus ensuring a good hermeticity between the source and the counting chamber. It is not toxic, so no especial precautions need to be taken for its manipulation, unlike beryllium, whose inhalation can cause respiratory diseases. Its attenuation coefficient for photons is higher than that of beryllium, but on the other hand it is possible to obtain extremely thin foils that keep X -ray attenuation at a reasonably low level while preserving a good mechanical endurance. As a matter of fact, the lower limit on their thickness is not set by the making process but by the requirement to stop all the Auger electrons emitted by the sources measured.

A gas-control system has been set up that allows the simultaneous pumping of both chambers and their filling with their corresponding gases, as well as the operation of the counter under a continuous flow of argon-methane.

The electric field inside the counter has been modeled in order to determine the region of space where charge multiplication takes place. Additionally, the

space distribution of the charge created in the interaction of the incident radiation with the gas has been studied by means of Monte Carlo simulations. All these calculations indicated that the multiplication region is cylindrically shaped along most of the length of the counter and that its volume is small enough so that virtually no charge is created inside this region, which are two basic criteria for a reproducible charge multiplication. Even though simulations showed that there is a wide dispersion in the distance from the electrons created to the anode, a detailed calculation proved that the dispersion in the initial drift velocity and in the collection time is much smaller, which makes recombination rather homogeneous.

The dimensions that define the solid angle have been measured with metrological precision in order to determine the geometric efficiency. An uncertainty close to 0.6 % in the solid angle has been attained. Autoradiographs of the sources are taken, in order to account for their extension and shape as well.

The intrinsic efficiency of the counter has been determined from the probability of interaction with the counting gas, the attenuation in the detector window and in the helium and the correction factor for scattering, by means of a combination of Monte Carlo simulations and analytical calculations with interaction cross sections. The overall intrinsic efficiency is above 90 % in the whole interval from 3 to 9 keV. It was determined with an uncertainty close to 0.2 %, which, along with the accuracy in the solid angle, allows the determination of emission rates with an uncertainty below 1 %.

The stability of the instrument over long measurements was tested by measuring successive spectra of an ^{55}Fe source for several days. It was found that the position of the peak presents some oscillations, which can be attributed to changes in the gas density due to oscillations in the room temperature. This contributes to a slight widening of peaks, but does not affect the accuracy of the determination of emission rates, since the count rate does not decline over time but it only presents some random fluctuation.

Once the counter was built, set up and characterized, it was employed for the measurement of several sources of low-energy X-ray emitting radionuclides: ^{41}Ca , ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{57}Co and ^{65}Zn . An ^{55}Fe excitation source was prepared by electrodeposition in order to measure the fluorescence spectra of titanium and chlorine as well. A good spectral quality and resolution were obtained down to 2.6 keV (chlorine's fluorescence X-rays). The width of the peaks is not much higher than the lower theoretical limit set by the statistics of the detection process.

Its performance as an absolute technique was tested by measuring the emission rates of several ^{55}Fe sources and, taking tabulated emission probabilities, inferring the activity concentration of its parent solution in order to compare the result with the one obtained by another primary technique in the laboratory. Both results were found to be in very good agreement, and the discrepancy is far below the uncertainty in the tabulated emission probabilities.

Even though the area of the escape peak can be determined in the ^{55}Fe spectrum, this is not possible for all radionuclides, since the background due to γ -scattering can mask the peak to some degree, or at least hamper its mathematical processing. For this reason, we studied the possibility to compute the count rate through the determination of the main-peak area and applying a correction factor for escape calculated by Monte Carlo simulations. By comparing the contribution of the escape peak to the total area in a simulated spectrum with the experimental result in ^{55}Fe spectra, it was concluded that it is perfectly reliable to determine the count rate by this procedure. This way of evaluating the count rate could be tested experimentally through the measurement of the emission rate of a ^{65}Zn source, for which the escape-peak area cannot be accurately determined, so the correction factor has to be applied. As in the case of ^{55}Fe , the activity concentration of the parent solution was inferred by applying the emission probabilities taken from the bibliography, and the result was compared with two other techniques of the laboratory. A good agreement has been found.

Since it operates satisfactorily for the absolute determination of X -ray emission rates, it can be employed in the future for the standardization of sources in terms of emission rate, which can in turn be used for the calibration of secondary standards, and this calibration will be independent of any previous knowledge of emission probabilities.

By combining the measurement of emission rates carried out by this counter with the measurement of activity provided by other primary techniques in the laboratory, it will be possible to determine emission probabilities of X -ray-emitting radionuclides. If lines k_α and k_β are to be resolved, measurements will have to be done in combination with a semiconductor detector. The possibility to determine X -ray emission probabilities independently of any measurement of activity has been tested as well. A preliminary measurement of the ^{65}Zn emission probability by $X - \gamma$ coincidence has been carried out, and the result opens the door to the application of the proportional counter to this kind of measurements. Longer measurements will be carried out in the near future to obtain a more accurate value of this probability, and this procedure will be extended to the measurement other X - γ -emitters.

It is left for future work to design an assembly system for fluorescence sources that allows a completely reproducible positioning of the fluorescence target, thus ensuring the reproducibility of the measurement solid angle regardless of the target's thickness, just as it has already been done for radionuclides sources. This will allow the standardization of sources in terms of emission rate at lower energies than those obtained with X -ray emitting radionuclides.

The possibility to operate at higher pressures will be studied, in order to extend the energy range of the measurements. It might be interesting to achieve high efficiencies with low uncertainties beyond 11 keV as well, that is to say beyond the k discontinuity of germanium, thus allowing the calibration of this kind of detectors in that energy region.

Bibliografía

- [1] IIFP, Roadmap document on atomic Fundamental Parameters for X-ray methodologies.
- [2] B. Denecke, G. Grosse, U. Watjen, W. Bambynek, and C. Ballaux. Efficiency calibration of Si(Li) detectors with X-ray reference sources at energies between 1 and 5 keV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 286(3):474 – 479, 1990.
- [3] J. Plagnard, C. Hamon, and M.C. Lépy. Study of scattering effects in low-energy gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 66(6):769 – 773, 2008. Proceedings of the 16th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications.
- [4] C. Domergue, J. Riffaud, M.-C. Lépy, C. Destouches, N. Thiollay, H. Philibert, O. Vigneau, L. Gravier, J.M. Girard, and J. Bonora. Improvement of the activity measurement method for solid dosimeters emitting x-rays. *Applied Radiation and Isotopes*, 134:182 – 189, 2018. ICRM 2017 Proceedings of the 21st International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications.
- [5] M.-C. Lépy, L. Brondeau, Y. Ménesguen, S. Pierre, and J. Riffaud. Consistency of photon emission intensities for efficiency calibration of gamma-ray spectrometers in the energy range from 20keV to 80keV. *Applied Radiation and Isotopes*, 134:131 – 136, 2018. ICRM 2017 Proceedings of the 21st International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications.
- [6] V.H. Elvira, V. Peyrés, M. Roteta, A. Fernández-Sotillo, and E. García-Toraño. Absolute determination of low-energy X-ray emission rates with a proportional counter. *Applied Radiation and Isotopes*, 160:109113, 2020.
- [7] V.H. Elvira, M. Roteta, A. Fernández-Sotillo, and E. García-Toraño. Design and optimization of a proportional counter for the absolute determination of low-energy X-ray emission rates. *Review of Scientific Instruments*, 91:103304, 2020.
- [8] Robley D. Evans. *The Atomic Nucleus*. McGraw-Hill, New York (USA), 1 edition, 1955.

- [9] XCOM, 2017. <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html>.
- [10] Arthur H. Compton. A quantum theory of the scattering of x-rays by light elements. *Phys. Rev.*, 21:483 – 502, 1923.
- [11] Glenn F. Knoll. *Radiation Detection and Measurement*. Wiley, New York (USA), 4 edition, 2010.
- [12] Klaus Debertin and Richard G. Helmer. *Gamma- and X-ray spectrometry with semiconductor detectors*. North-Holland, Amsterdam (Netherlands), 1 edition, 1988.
- [13] John S. Townsend. *Electricity in Gases*. Oxford University Press, London (UK), 1 edition, 1915.
- [14] Valentin T. Jordanov and Glenn F. Knoll. Digital synthesis of pulse shapes in real time for high resolution radiation spectroscopy. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 345(2):337 – 345, 1994.
- [15] Valentin T. Jordanov. Real time digital pulse shaper with variable weighting function. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 505(1):347 – 351, 2003. Proceedings of the tenth Symposium on Radiation Measurements and Applications.
- [16] Giancarlo Ripamonti, Andrea Castoldi, and Emilio Gatti. Multiple delay line shaping: a new class of weighting functions suitable for digital signal processing. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 340(3):584 – 593, 1994.
- [17] Robert Grzywacz. Applications of digital pulse processing in nuclear spectroscopy. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 204:649 – 659, 2003. 14th International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques Related to their Applications.
- [18] R.E. Chrien and R.J. Sutter. Noise and pileup suppression by digital signal processing. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 249(2):421 – 425, 1986.
- [19] V. Drndarevic, P. Ryge, and T. Gozani. Digital signal processing for high rate gamma-ray spectroscopy. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 277(2):532 – 536, 1989.

- [20] K. Vetter, A. Kuhn, M.A. Deleplanque, I.Y. Lee, F.S. Stephens, G.J. Schmid, D. Beckedahl, J.J. Blair, R.M. Clark, M. Cromaz, R.M. Diamond, P. Fallon, G.J. Lane, J.E. Kammeraad, A.O. Macchiavelli, and C.E. Svensson. Three-dimensional position sensitivity in two-dimensionally segmented hp-ge detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 452(1):223 – 238, 2000.
- [21] M. Mutterer, Wladyslaw Trzaska, G.P. Tyurin, Aleksei Evsenin, J. Kalben, J. Kemmer, Maciej Kapusta, V.G. Lyapin, and S. Khlebnikov. Breakthrough in pulse-shape based particle identification with silicon detectors. *Nuclear Science, IEEE Transactions on*, 47:756 – 759, 07 2000.
- [22] A. Fallu-Labruyere, H. Tan, W. Hennig, Y.X. Chu, M. Momayezi, and W.K. Warburton. Extending the operation of a position-sensitive photomultiplier tube to 1 million counts per second. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 563(1):54 – 57, 2006. Proceedings of the 7th International Workshop on Radiation Imaging Detectors.
- [23] David V. Jordan, Andrea S. Renholds, John E. Jaffe, Kevin K. Anderson, L. René Corrales, and Anthony J. Peurrung. Simple classical model for fano statistics in radiation detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 585(3):146 – 154, 2008.
- [24] U. Fano. On the theory of ionization yield of radiations in different substances. *Phys. Rev.*, 70(1-2):44–52, 1946.
- [25] U. Fano. Ionization yield of radiations. ii. the fluctuations of the number of ions. *Phys. Rev.*, 72(1):26–29, 1947.
- [26] Average energy required to produce an ion pair. Technical Report ICRU/31, International Commission on Radiation Units and Measurements, Washington, DC (USA), 1979.
- [27] H. S. Snyder. Fluctuations for proportional counters. *Physical Review*, 72:181, 1947.
- [28] J. Byrne. Statistics of the electron-multiplication process in proportional counters. *Proceedings of the Royal Society of Edinburgh Section A: Mathematical and Physical Sciences*, 66:33 – 45, 1962.
- [29] J. Byrne. Statistics of electron avalanches in the proportional counter. *Nuclear Instruments and Methods*, 74(2):291 – 296, 1969.
- [30] M.W. Charles and B.A. Cooke. Proportional counter resolution. *Nuclear Instruments and Methods*, 61(1):31 – 36, 1968.

- [31] Particle counting in radioactivity measurements. Technical Report ICRU/52, International Commission on Radiation Units and Measurements, Bethesda (USA), 1994.
- [32] W. B. Bambynek. *Precise Solid-Angle Counting*. International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 1967. Proceedings of a Symposium. Vienna, 10-14 October 1966.
- [33] O. Klein and T. Nishina. Über die Streuung von Strahlung durch freie Elektronen nach der neuen relativistischen Quantendynamik von Dirac. *Zeitschrift für Physik*, 52:853–868, 1929.
- [34] Bruno B. Rossi and Hans H. Staub. *Ionization Chambers and Counters*. McGraw-Hill, New York (USA), 1 edition, 1949.
- [35] Samuel Curran and J.D. Craggs. *Counting tubes: theory and applications*. Academic Press, London (UK), 1 edition, 1949.
- [36] Denis H. Wilkinson. *Ionization Chambers and Counters*. Cambridge University Press, Cambridge (UK), 1 edition, 1950.
- [37] P.J. Champion. A study of proportional counter mechanisms. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 19(3):219 – 234, 1968.
- [38] W. Bambynek. On selected problems in the field of proportional counters. *Nuclear Instruments and Methods*, 112(1):103 – 110, 1973.
- [39] Geoffrey Dearnaley and David C. Northrop. *Semiconductor Counters for Nuclear Radiations*. Wiley, New York (USA), 2 edition, 1966.
- [40] G. Bertolini and A. Coche. *Semiconductor Detectors*. Elsevier-North Holland, Amsterdam (Netherlands), 1 edition, 1968.
- [41] B. Rosner, D. Gur, and L. Shabason. Efficiency of Ge(Li) and Si(Li) planar detectors in the 2-5 keV energy range. *Nuclear Instruments and Methods*, 131(1):81 – 83, 1975.
- [42] Sam J. Cipolla and Mary J. Hewitt. Calibration source effects in Si(Li) detector efficiency determinations. *Nuclear Instruments and Methods*, 136(2):347 – 348, 1976.
- [43] Chizuo Mori, Hiroshi Noguchi, Nobuhito Ishigure, and Tamaki Watanabe. Low energy X-ray calibration sources for proportional counters using radionuclides. *Nuclear Instruments and Methods*, 155(3):435 – 442, 1978.
- [44] Kunihiro Shima. Si(Li) detector efficiency for 0.7-6 keV X-ray energy region. *Nuclear Instruments and Methods*, 165(1):21 – 26, 1979.

- [45] J. Pálinkás and B. Schlenk. Efficiency calibration of a Si(Li) X-ray detector in the 1.5-60 keV energy region. *Nuclear Instruments and Methods*, 169(3):493 – 498, 1980.
- [46] J.L. Campbell and L.A. McNelles. An inter-comparison of efficiency-calibration techniques for semiconductor X-ray detectors. *Nuclear Instruments and Methods*, 125(2):205 – 223, 1975.
- [47] Michael J. Tolson and Nicholas M. Spyrou. Calibration of low energy photon detectors for microbeam pixe analysis. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 193(1):99 – 103, 1982.
- [48] B. Denecke, G. Grosse, and T. Szabo. Gain stabilisation of gas-flow proportional counters. *Applied Radiations and Isotopes*, 49(9-11):1117 – 1121, 1998.
- [49] B. Denecke, W. Bambynek, G. Grosse, U. Watjen, and C. Ballaux. A set of X-ray fluorescence reference sources for the intrinsic efficiency calibration of Si(Li) detectors down to 1 keV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 49(1):152 – 156, 1990.
- [50] V. A. Solé, B. Denecke, D. Mouchel, and W. Bambynek. Measurement of $P_K\omega_k$ in the decay of ^{65}Zn and the K-shell fluorescence yield of copper. *Applied Radiation and Isotopes*, 45(9):941 – 944, 1994.
- [51] J. Plagnard. Modernisation d’un compteur proportionnel à angle solide défini pour la mesure d’émetteurs X de basses énergies. Technical Report LPRI/96/010, Laboratoire Primaire de Rayonnements Ionisants, Commissariat à l’Énergie Atomique, Saclay (France), 1996.
- [52] M.C. Lépy, J.L. Campbell, J.M. Laborie, J. Plagnard, P. Stemmler, and W.J. Teesdale. Experimental study of the response of semiconductor detectors to low-energy photons. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 439(2):239 – 246, 2000.
- [53] R. R. Nair, H. A. Wu, P. N. Jayaram, I. V. Grigorieva, and A. K. Geim. Unimpeded permeation of water through helium-leak-tight graphene-based membranes. *Science*, 335:442–444, 2012.
- [54] B.D. Ramsey, R.F. Elsner, and M.C. Weisskopf. The effects of contamination on gaseous x-ray detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 270(1):178 – 184, 1988.
- [55] F. Salvat. *PENELOPE-2014: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport*. OECD/NEA Data Bank,

- NEA/NSC/DOC(2015)3, Issy-les-Moulineaux (France), 2015. Disponible desde <http://www.nea.fr/lists/penelope.html>.
- [56] Quickfield, Modelling of 3D heat transfer, DC-conduction and electrostatics, 2017. <https://quickfield.com/>.
- [57] Ward Diethorn. A methane proportional counter system for natural radio-carbon measurements. Technical Report NYO-6628, Carnegie Institute of Technology, Pittsburgh, Pensilvania (EE. UU.), 1956.
- [58] Richard S. Wolff. Measurement of the gas constants for various proportional-counter gas mixtures. *Nuclear Instruments and Methods*, 115(2):461 – 463, 1974.
- [59] Masayuki Kase, Jun Kikuchi, and Tadayoshi Doke. Fano factor in gas mixture of $Ar + 10\%CH_4$. *Nuclear Instruments and Methods*, 163(1):289 – 291, 1979.
- [60] T. E. Bortner, G. S. Hurst, and W. G. Stone. Drift velocities of electrons in some commonly used gases. *Review of Scientific Instruments*, 28(2):103–108, 1957.
- [61] R. K. Manchanda, R. K. Sood, D. J. Grey, and D. J. Isbister. Transport and recombination of electrons in a high pressure proportional counter using different gas mixtures. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 595(3):605 – 615, 2008.
- [62] W. Blum and L. Rolandil. *Particle Detection with Drift Chambers*. Springer, Berlin (Germany), 1 edition, 1993.
- [63] K. Kleinknecht. *Detectors for Particle Radiation*. Cambridge University Press, Cambridge (UK), 1 edition, 1986.
- [64] A. E. Sherwood and J. M. Prausnitz. Intermolecular potential functions and the second and third virial coefficients. *Journal of Chemical Physics*, 41(2):429–437, 1964.
- [65] A. H. Jaffey. Solid angle subtended by a circular aperture at point and spread sources: Formulas and some tables. *The Review of Scientific instruments*, 25(4):349 – 354, 1954.
- [66] N. Blachman. Private communication to B. J. Burtt. *Nucleonics*, 5:28 – 43 (Appendix C), 1949.
- [67] R. Schiedt. Die zahl der von uran emittierten alpha-teilchen. *Sitzberg. Akad. Wiss. Wien Math.-naturw. Klasse Abt.IIa*, 144:191–211, 1935.

- [68] L. R. Zumwalt. Absolute beta-counting using end-window gm counters and experimental data on beta-particle scattering effects. *Oak Ridge National Laboratory Report Mon C-397; Atomic Energy Commission Report AECU-567*, 1949 -1950.
- [69] A. H. Jaffey. Solid angle subtended by a circular aperture at point and spread sources: Formulae and some tables. *Argonne National Laboratory Report ANL-4875*, 1952.
- [70] L. Ruby and J.B. Rechen. A simpler approach to the geometrical efficiency of a parallel-disk source and detector system. *Nuclear Instruments and Methods*, 58(2):345 – 346, 1968.
- [71] Lawrence Ruby. Further comments on the geometrical efficiency of a parallel-disk source and detector system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 337(2):531 – 533, 1994.
- [72] John T. Conway. Generalizations of ruby’s formula for the geometric efficiency of a parallel-disk source and detector system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 562(1):146 – 153, 2006.
- [73] N. Tsoufanidis. *Measurement and Detection of Radiation*. Hemisphere, Washington (USA), 1983.
- [74] S. Pommé. A complete series expansion of Ruby’s solid-angle formula. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 531(3):616 – 620, 2004.
- [75] S. Pommé, L. Johansson, G. Sibbens, and B. Denecke. An algorithm for the solid angle calculation applied in alpha-particle counting. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 505:286 – 289, 2003. Proceedings of the tenth Symposium on Radiation Measurements and Applications.
- [76] John T. Conway. Geometric efficiency for a parallel-surface source and detector system with at least one axisymmetric surface. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 583(2):382 – 393, 2007.
- [77] John T. Conway. Calculations for a disk source and a general detector using a radiation vector potential. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 589(1):20 – 33, 2008.

- [78] John T. Conway. Analytical solution for the solid angle subtended at any point by an ellipse via a point source radiation vector potential. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 614(1):17 – 27, 2010.
- [79] John T. Conway. Geometric efficiency for a circular detector and a linear source of arbitrary orientation and position. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 622(3):555 – 566, 2010.
- [80] John T. Conway. Geometric efficiency for a circular detector and a ring source of arbitrary orientation and position. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 640(1):99 – 109, 2011.
- [81] M.J Prata. Analytical calculation of the solid angle subtended by a circular disc detector at a point cosine source. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 521(2):576 – 585, 2004.
- [82] García-Toraño, T. Durán Ramiro, C. Burgos, and M. Begoña Ahedo. Defined solid-angle counter with variable geometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 66(6):881 – 885, 2008. Proceedings of the 16th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications.
- [83] Dongxing Yang, Aruna Velamakanni, Gölay Bozoklu, Sungjin Park, Meryl Stoller, Richard D. Piner, Sasha Stankovich, Inhwa Jung, Daniel A. Field, Carl A. Ventrice, and Rodney S. Ruoff. Chemical analysis of graphene oxide films after heat and chemical treatments by x-ray photoelectron and micro-raman spectroscopy. *Carbon*, 47(1):145 – 152, 2009.
- [84] Hans Bethe. Zur theorie des durchgangs schneller korpuskularstrahlen durch materie. *Annalen der Physik*, 397:325–400, 1930.
- [85] J. P. Biersack J. F. Zieglerl and U. Littmark. *The Stopping and Ranges of Ions in Matter*. Pergamon, 1977.
- [86] J. F. Zieglerl. *Helium. Stopping Powers and Ranges in All Elements*. Pergamon, New York (USA), 1977.
- [87] SRIM, The Stopping and Range of Ions in Matter, 2017. <http://www.srim.org/>.
- [88] W.N. Lennard and G.R. Massoumi. Anomalous pulse heights in silicon detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 48(1):47 – 50, 1990.

- [89] Eduardo García-Toraño, M. Teresa Crespo, Miguel Roteta, Goedele Sibbens, Stefaan Pommé, Alejandro Martín Sánchez, M. Pilar Rubio Montero, Simon Woods, and Andy Pearce. α -particle emission probabilities in the decay of ^{235}U . *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 550(3):581 – 592, 2005.
- [90] X-ray form factor, attenuation and scattering tables, Summary of uncertainties, 2020. <https://physics.nist.gov/PhysRefData/FFast/Text2000/sec09.html>.
- [91] C. T. Chantler. Theoretical form factor, attenuation and scattering tabulation for $Z=1-92$ from $E=1-10$ eV to $E=0.4-1.0$ MeV. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 24(1):71 – 643, 1995.
- [92] Note on NIST X-ray attenuation databases, 2020. <https://www.nist.gov/pml/note-nist-x-ray-attenuation-databases#ref>.
- [93] E.B. Saloman, J.H. Hubbell, and J.H. Scofield. X-ray attenuation cross sections for energies 100 eV to 100 keV and elements $z = 1$ to $z = 92$. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 38(1):1 – 196, 1988.
- [94] E.B. Saloman and J.H. Hubbell. X-ray attenuation coefficients (total cross sections): Comparison of the experimental data base with the recommended values of Henke and the theoretical values of Scofield for energies between 0.1-100 keV. Technical Report NBSIR 86-3431, National Bureau of Standards, Center for Radiation Research, Gaithersburg, Maryland (USA), 1986.
- [95] E. García-Toraño, V. Peyrés, M.-M. Bé, C. Dulieu, M.-C. Lépy, and F. Salvat. Simulation of decay processes and radiation transport times in radioactivity measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 396:43 – 49, 2017.
- [96] A. Kacperek, B. Denecke, D. Reher, and W. Bambynek. The standardization of x-ray sources below 4 keV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 192(1):109 – 115, 1982.
- [97] B. Carmon and M. Pasi. Electrodeposition of a strongly adhesive iron-55 source for use in x-ray fluorescence analysis. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 32(8):600, 1981.
- [98] Nucléide, Atomic and nuclear data, CEA/LNE-LNHB, Saclay, Francia, 2020. <http://www.lnhb.fr/nuclear-data/nuclear-data-table/>.
- [99] R. Broda, P. Cassette, and K. Kossert. Radionuclide metrology using liquid scintillation counting. *Metrologia*, 44:S36–S52, 2007.

- [100] E. García-Toraño, V. Peyrés, M. Roteta, M. Mejuto, A. Sánchez-Cabezudo, and E. Romero. Standardisation and half-life of ^{89}Zr . *Applied Radiation and Isotopes*, 134:421 – 425, 2018. ICRM 2017 Proceedings of the 21st International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications.
- [101] Dataplot, 2019. <https://www.itl.nist.gov/div898/software/dataplot/homepage.html>.
- [102] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, E. Browne, C. Baglin, V. Chechev, N. Kuzmenko, R. Helmer, F. Kondev, D. MacMahon, and K.B. Lee. Table of Radionuclides, Monographie BIPM-5 3. Technical report, Bureau International de Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2006.
- [103] Evaluation of measurement data - Guide to the expression of uncertainty in measurement. Joint Committee for Guides in Metrology, JCGM 100:2008, 2008. www.bipm.org.
- [104] Agustín Grau Malonda and Eduardo García-Toraño. Evaluation of counting efficiency in liquid scintillation counting of pure β -ray emitters. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 33(4):249 – 253, 1982.
- [105] Miguel Roteta, Virginia Peyrés, and Eduardo García-Toraño. Standardization of Sn-113. *Applied Radiation and Isotopes*, 87:162 – 165, 2014. Proceedings of the 19th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications 17-21 June 2013, Antwerp, Belgium.
- [106] E.L. Grigorescu, Maria Sahagia, Anamaria Razdolescu, and C. Ivan. Standardization of some electron capture radionuclides. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 369(2):414 – 420, 1996.
- [107] Maria Sahagia, C. Ivan, E.L. Grigorescu, M. Capogni, P.De Felice, and A. Fazio. Standardization of ^{65}Zn by $4\pi\text{PC}-\gamma$ coincidence counting method with efficiency extrapolation. *Applied Radiation and Isotopes*, 60(2):423 – 427, 2004. Proceedings of the 14th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, ICRM 2003.
- [108] N.I. Karmalitsyn, T.E. Sazonova, S.V. Sepman, and A.V. Zanevsky. Standardization of ^{65}Zn . *Applied Radiation and Isotopes*, 60(2):391 – 395, 2004. Proceedings of the 14th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, ICRM 2003.
- [109] David Smith. Improved correction formulae for coincidence counting. *Nuclear Instruments and Methods*, 152(2):505 – 519, 1978.

- [110] LNHB, 2020. <http://www.lnhb.fr/presentation-en/>.
- [111] P. Magnier. Mesures précises du nombre de photons Xk d'énergies comprises entre 3 et 30 keV émis par des sources radioactives, 1978. Mémoire CNAM.
- [112] A. Levtchenko. Remise en fonctionnement, caractérisation et développement d'un compteur proportionnel à angle solide défini pour des mesures de flux de photons X. Technical Report LNHB 2012/41, Laboratoire National Henri Becquerel, 2012.

Índice de figuras

1.1. Scheme of photoelectric absorption (left) and the two possible ways for subsequent electronic relaxation (right): photon emission (top) or Auger electron emission (bottom).	19
1.2. Dependence of the photoelectric absorption probability on the energy for different elements. Data from [9].	20
1.3. Scheme of inelastic scattering.	20
1.4. Dependence of the probability of inelastic scattering on the energy for different elements. Data from [9].	21
1.5. Dependence of the probability of pair production on the energy for different elements. Data from [9].	22
1.6. Contributions to the overall probability of interaction of a photon with matter. Example of Ar. Data from [9].	23
1.7. Scheme of the gamma spectrum recorded when a beam of monoenergetic photons with energy $h\nu$ reaches the detector.	25
1.8. Working principle of a gas-filled detector.	28
1.9. Regions of operation of gas-filled detectors. Response to radiation of two different energies ($E_2 > E_1$). Figure taken from [11] and modified.	29
1.10. Electronic chain to turn the current pulse output of the detector into a measurable signal.	30
1.11. Current output from a hypothetical detector where current flows for a time essentially equal to the charge collection time t_c (top). Voltage pulse output from a voltage-sensitive preamplifier whose time constant $\tau \equiv RC$ is very large compared to t_c (bottom). Figure taken from [11] and modified.	31
1.12. Example of the current output from a hypothetical detector (top). Voltage output from a charge-sensitive preamplifier (bottom). Figure taken from [11] and modified.	32

1.13. Example of the output of a charge-sensitive preamplifier (left), differentiator (middle) and integrator (right) in the amplifier. Figure taken from [11] and modified.	33
1.14. Scheme of the detection geometries where the sources in placed inside the detection system: (a) 4π (b) 2π	41
1.15. Scheme of low-solid-angle counting.	42
1.16. Attenuation in a beryllium window as a function of its thickness and the energy of the radiation. Interaction cross-sections obtained from [9].	45
1.17. Fraction of radiation absorbed by the helium in the source chamber as a function of the path length for different energies at $20^{\circ}C$ and $1000\ hPa$. Interaction cross-sections obtained from [9].	46
1.18. Dependence of attenuation in helium on the temperature and the pressure. Results for a 2-cm -chamber and for X -rays of $2\ keV$. Interaction cross-sections obtained from [9].	47
1.19. Scheme of self-attenuation in a radioactive source (left) and in a fluorescence target(right).	47
1.20. Self-attenuation of X -rays from different sources as a function of their mass thickness. Interaction cross-sections obtained from [9].	48
1.21. Self-attenuation in different fluorescence targets excited with $6\ keV$ X -rays from ^{55}Fe as a function of the mass thickness of the target. Interaction cross-sections obtained from [9].	49
1.22. Notation used in the equation for the calculation of scattering. Taken from [32] and modified.	50
1.23. Notation used in the computation of scattering in the walls. Extension of Fig. 1.22.	51
2.1. Esquema del contador proporcional.	57
2.2. Fotografía del contador proporcional en operación. Nota: Para una mayor claridad se ha retirado el blindaje de plomo exterior a la hora de tomar la fotografía.	58
2.3. Sistema tensor del hilo de oro y su conexión con el circuito. Detalle de los planos (superior) y fotografía el interior de la cámara (inferior).	59
2.4. Lámina de óxido de grafeno autosoportada antes de la reducción (izquierda) y lámina reducida (derecha).	61
2.5. Colocación de la ventana de óxido de grafeno reducido en el diafragma del contador.	62

2.6.	Sistema de control de gases en el contador proporcional.	63
2.7.	Señal de salida del preamplificador (amarilla) y del amplificador (azul) del contador proporcional recogidas mediante un osciloscopio.	64
2.8.	Posición del centro del pico del espectro de rayos X de ^{55}Fe en función de la presión del gas del contador.	64
3.1.	Distribución espacial de los electrones generados en el $Ar + CH_4$ (rojo), en el He (verde) en el Al (azul) cuando un haz de fotones de 2, 4, 6 y 10 keV respectivamente son emitidos hacia el contador.	66
3.2.	Captura de pantalla del programa Quickfield para el cálculo del campo eléctrico en el interior del contador.	68
3.3.	Voltaje y componente radial del campo eléctrico dentro del contador cuando la tensión del cable es de 1900 V	71
3.4.	Representación, mediante superficies de nivel, de la componente radial del campo eléctrico en el interior del contador cuando el voltaje aplicado al ánodo es de 1 900 V . Obtenidas exportando los resultados de Quickfield en 2D y asignándole a cada punto (r, l) una distribución de ángulos azimutales.	71
3.5.	Campo eléctrico en el centro del contador ($z = 0$) en función de la distancia al ánodo para distintos valores del voltaje aplicado.	72
3.6.	Zona de multiplicación en el contador proporcional cuando se aplica al hilo una diferencia de potencial de 1900 V . El hilo, de 15 μm de radio, se representa como un cilindro negro a lo largo del eje y . Los ejes x y z , que definen la coordenada radial, se representan a escala; el eje y , coordenada longitudinal, naturalmente no, para poder representar toda la longitud de la cámara.	73
3.7.	Radio umbral de multiplicación en el centro del detector ($z = 0$) en función del voltaje aplicado al ánodo.	73
3.8.	Límite estadístico de la resolución de un contador proporcional de Ar/CH_4 atendiendo a la dispersión estadística de la generación de carga, incluyendo la creación de electrones primarios y la multiplicación en el proceso de avalancha.	75
3.9.	Distribución de distancias al ánodo de los electrones generados en el gas del contador debido a la incidencia de un haz de fotones de 6 keV . Nota: el menor número de electrones generados a distancias próximas a 10 cm se debe a que la ventana del detector no se encuentra exactamente a 10 cm del ánodo sino a aproximadamente 9,7.	76

3.10. Distribución de los electrones generados por un haz monoenergético de 6 keV en función del campo eléctrico al que están sometidos en el momento de su generación.	76
3.11. Velocidad de los electrones en función del campo eléctrico al que están sometidos. Figura extraída de [11] y modificada; datos de [60].	77
3.12. Distribución de velocidades de los electrones generados en el gas del contador como consecuencia de la incidencia de un haz de fotones de 6 keV.	78
3.13. Tiempo que tarda un electrón en alcanzar la posición $r = 0$ (el ánodo) bajo la acción del campo eléctrico en función de su posición inicial, considerando un contador proporcional cilíndrico ideal de Ar/CH_4 a 20 °C y $10^5 Pa$	79
3.14. Distribución de velocidades de los electrones generados en el gas del contador como consecuencia de la incidencia de un haz de fotones de 6 keV.	80
3.15. Notación utilizada en las expresiones para el cálculo.	81
3.16. Error de truncamiento en función del número de términos de la expansión en serie para el método de Jaffey.	85
3.17. Error de truncamiento en función del número de términos de la expansión en serie para el método de Ruby-Pommé.	87
3.18. Ángulo sólido definido por una abertura circular en un punto para distintos valores de r/D . La curva roja corresponde a un polinomio de segundo grado.	89
3.19. Esquema en dos y en tres dimensiones del sistema de control del ángulo sólido.	91
3.20. Ángulo sólido para una fuente puntual en función de la relación entre el diámetro del diaphragma (a) y la distancia de la fuente al diafragma (z).	91
3.21. Esquema de la medida de la pieza por la técnica de medición óptica.	92
3.22. Fotografía de la medida de la réplica con el proyector de perfiles para la determinación de la altura de la parte cilíndrica del diafragma.	93
3.23. Ángulo sólido de medida con la pieza utilizada en función del radio de la fuente (b).	94
3.24. Ángulo sólido de medida con la pieza utilizada y supuesta una fuente de 1,5 cm de radio en función del descentramiento respecto al centro del soporte.	95
3.25. Autorradiografía de la fuente de ^{55}Fe (izquierda) y mapa de la actividad relativa obtenida de esta (derecha).	96

3.26. Modelo del contador para la simulación por Monte Carlo.	97
3.27. Proporción de fotones que depositan su energía en el $Ar + CH_4$ de entre todos los que alcanzan esa cavidad.	98
3.28. Secciones eficaces de interacción fotoeléctrica, dispersión elástica y dispersión inelástica para una mezcla de $Ar + CH_4$ en fracción molar 9:1.	98
3.29. Poder de frenado de una partícula cargada a medida que penetra en un material. Figura extraída de [11].	101
3.30. Fracción de partículas α que atraviesan una lámina en función del espesor de esta.	101
3.31. Espectro α de una fuente de ^{240}Pu medido directamente (superior) y medido con la ventana de grafeno interpuesta entre la fuente y el detector (inferior).	103
3.32. Salida gráfica de la simulación mediante el programa SRIM de un haz de partículas α de 5123,6 (izquierda) y 5168,13 keV (derecha) atravesando una lámina de C (81,6%), O (16,5%), N (1,0%), Si (0,9%) de espesor másico total 1033 $\mu g/cm^2$	104
3.33. Distribución energética de un haz de partículas α procedentes de una fuente de ^{240}Pu que atraviesan una lámina de óxido de grafeno reducido de 1033 $\mu g/cm^2$ de espesor másico, calculada mediante el programa <i>SRIM</i> . La curva roja muestra la convolución de esta distribución con una función gaussiana cuya anchura a mitad de la altura es 8 keV , que simula la respuesta del detector.	104
3.34. Pérdida de energía promedio de un haz de partículas α procedentes de una fuente de ^{240}Pu al atravesar una lámina de óxido de grafeno reducido en función del espesor másico de esta. Cálculo del espesor de la ventana estudiada a partir de la pérdida de energía medida.	105
3.35. Proporción de radiación X que atraviesa cada ventana en función de la energía de la radiación. Las líneas azules discontinuas muestran la incertidumbre debida a la incertidumbre en la determinación del espesor.	108
3.36. Incertidumbre en la proporción de radiación X transmitida a través de una ventana grafeno de 693 $\mu g/cm^2$ en función de la energía.	109
3.37. Fracción de electrones transmitidos a través de la ventana del detector, de 693 $\mu g/cm^2$, en función de la energía.	110
3.38. Fracción de electrones transmitidos a través de una ventana de 120 $\mu g/cm^2$ en función de la energía.	110

3.39. Distribución de los electrones de conversión interna de alta energía emitidos por el ^{57}Co (superior) y transmitidos a través de la ventana del detector.	111
3.40. Fracción de fotones que atraviesan la cámara de helio en función de la energía.	113
3.41. Modelo empleado en las simulaciones para el cálculo de las correcciones por dispersión.	114
3.42. Factor de corrección por dispersión para distintas energías de la radiación incidente.	114
3.43. Modelo empleado en las simulaciones con PENNUC para la simulación de una emisión cónica, imponiendo un colimador ficticio con energía de truncamiento arbitrariamente alta.	115
3.44. Factor de corrección para haces monoenergéticos (detalle de la Fig. 3.42) y para el ^{55}Fe , calculado mediante PENNUC y mediante el código convencional de PENELOPE introduciendo el espectro de emisión del ^{55}Fe	116
3.45. Factor de corrección por dispersión en función de si se toma exclusivamente el recuento del pico principal, la suma del pico principal y de escape, o toda el área del espectro.	116
3.46. Simulación de la emisión en un cono más grande que incluya los fotones emitidos hacia el aluminio del diaphragma.	117
3.47. Eficiencia intrínseca total del contador proporcional en función de la energía, calculada a partir de la probabilidad de interacción con el gas, la corrección por dispersión y el factor de transmisión en el helio y en la ventana. Nota: aunque se ha tenido en cuenta en los cálculos, no se muestra la curva de la transmisión en el helio porque es muy próxima a la unidad en todo el intervalo.	118
3.48. Incertidumbre en la eficiencia intrínseca de detección del contador proporcional.	118
3.49. Evolución de la posición y la anchura del pico del espectro de ^{55}Fe con el tiempo.	120
3.50. Evolución de la tasa de recuento de una muestra de ^{55}Fe con el tiempo.	121
4.1. Esquema de la preparación de las fuentes radiactivas a partir de sus disoluciones (superior), deposición de la gota sobre el soporte (inferior izquierda) y colocación de la fuente en la cámara de He (inferior derecha).	124

4.2. Esquema de una fuente de fluorescencia empleada en este trabajo, consistente en una fuente de excitación anular y un blanco de fluorescencia.	125
4.3. Producto del área por el ángulo sólido de excitación para diferentes dimensiones de la arandela en función de la distancia del blanco a la fuente.	126
4.4. Montaje de la fuente de fluorescencia empleada. Soporte del blanco (superior izquierda), soporte de la fuente (inferior izquierda) y ensamblaje de ambas sobre el soporte de la cámara de la muestra (derecha). Nota: la fotografía del soporte de la fuente fue tomada antes de la deposición del ^{55}Fe sobre la arandela.	128
4.5. Espectro de una fuente de ^{65}Zn de 25 kBq medido durante 15 h en el contador proporcional.	129
4.6. Espectro de una fuente de ^{57}Co de 2,3 kBq medido durante 24 h en el contador proporcional.	129
4.7. Espectro de una fuente de ^{55}Fe de 17 kBq medido durante 15 h en el contador proporcional.	131
4.8. Espectro de una fuente de ^{54}Mn de 13 kBq medido durante 20 h en el contador proporcional.	131
4.9. Espectro de una fuente de ^{41}Ca de 11 kBq medido durante 20 h en el contador proporcional.	132
4.10. Espectro de fluorescencia del titanio excitado con una fuente de ^{55}Fe medido durante 60 h en el contador proporcional (rojo). Se muestra superpuesto sobre el espectro medido con un detector de germanio (azul).	133
4.11. Espectro de fluorescencia del cloro excitado con una fuente de ^{55}Fe medido durante 60 h en el contador proporcional (rojo). Se muestra superpuesto sobre el espectro medido con un detector de germanio (azul).	133
4.12. Comparación de la resolución del contador proporcional con el límite teórico derivado de la naturaleza probabilística del proceso de formación de la señal.	134
4.13. Ajuste del pico principal del espectro de una muestra de ^{55}Fe medido con el contador proporcional para la determinación de la tasa de emisión.	136
4.14. Ajuste del pico de escape del espectro de una muestra de ^{55}Fe medido con el contador proporcional para la determinación de la tasa de emisión.	137

4.15. Factor de corrección por escape en función de la energía de la radiación incidente calculado mediante simulaciones de Monte Carlo (azul) y experimental obtenido para la muestra 2 de ^{55}Fe (rojo).	140
4.16. Espectro experimental de la muestra 2 de ^{55}Fe (negro) y espectro obtenido mediante la simulación de Monte Carlo con PENNUC (rojo), convolucionado con la resolución gaussiana del detector y multiplicado por la actividad de la muestra 2 y por los factores de transmisión en la ventana y el He .	140
4.17. Ajuste del pico principal del espectro de una muestra de ^{65}Zn medido con el contador proporcional para la determinación de la tasa de emisión.	142
4.18. Señal en el contador proporcional debida a la emisión de fotones γ de 1116 keV por parte de la muestra, calculada mediante una simulación de Monte Carlo con PENELOPE.	144
4.19. Esquema de la desintegración del ^{65}Zn . Tomado de [98].	146
5.1. Fotografía del contador proporcional del LNHB.	190
5.2. Espectro de una fuente de ^{55}Fe de 40 kBq medido durante 5 h con el contador proporcional del LNHB.	191
5.3. Evolución de la posición, anchura y tasa de recuento del pico del espectro de ^{55}Fe medido con el contador proporcional del LNHB.	193
5.4. Evolución de la tasa de recuento del pico del espectro de ^{55}Fe medido con el contador proporcional del LNHB operado en flujo continuo de argón-metano.	194
5.5. Modelo geométrico para la simulación de Monte Carlo de la fuente de fluorescencia.	194
5.6. Preparación de la fuente de excitación de ^{65}Zn y colocación junto con el blanco de fluorescencia para la medida del espectro.	195
5.7. Espectro de fluorescencia del titanio excitado con una fuente de ^{65}Zn de 515 kBq medido durante 2 h en el contador proporcional del LNHB.	195

Índice de tablas

3.1. Resultados de la medida del radio del diagrafma a partir del ajuste a una circunferencia de las coordenadas de 360 puntos, repetida cinco veces.	94
3.2. Posición en el espectro (número de canal) de los picos α del ^{240}Pu medido directamente y con la ventana de grafeno interpuesta. . .	106
3.3. Cálculo de la eficiencia intrínseca de detección para una radiación con la distribución energética de los rayos X emitidos por el ^{55}Fe	119
4.1. Determinación de la concentración de actividad de la disolución original de ^{55}Fe a partir de las tasas de recuento de las fuentes medidas.	138
4.2. Análisis de incertidumbres en la determinación de la concentración de actividad.	139
4.3. Cociente entre el área del pico principal y el área total obtenido para las tres muestras medidas de ^{55}Fe comparado con el valor obtenido en el espectro simulado por Monte Carlo.	141
4.4. Determinación de la concentración de actividad de la disolución original de ^{65}Zn a partir de las tasas de recuento de la fuente medida. Nota: La corrección por atenuación en la ventana es similar a la de la medida del ^{55}Fe aunque la energía de los rayos X es mayor porque tuvo que utilizarse una ventana de repuesto, cuyo grosor era mayor que el de la anterior.	143
4.5. Determinación de la probabilidad de emisión $P_k \omega_k$ del ^{65}Zn a partir de la medida de coincidencias de los fotones X_k y γ	148

ANEXOS

ANEXO 1

Absolute determination of low-energy *X*-ray emission rates with a proportional counter

V. H. Elvira, V. Peyrés, M. Roteta, A. Fernández-Sotillo,
E. García-Toraño

Applied Radiation and Isotopes, 160 : 109113, 2020



Contents lists available at ScienceDirect

Applied Radiation and Isotopes

journal homepage: <http://www.elsevier.com/locate/apradiso>

Absolute determination of low-energy X-ray emission rates with a proportional counter

V.H. Elvira^{a,*}, V. Peyrés^a, M. Roteta^a, A. Fernández-Sotillo^b, E. García-Toraño^a

^a CIEMAT, Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes (LMRI), Avenida Complutense 40, 28040, Madrid, Spain

^b CIEMAT, Unidad de Pilas de Combustible, Avenida Complutense 40, 28040, Madrid, Spain

ARTICLE INFO

Keywords:

Low-energy X-rays
Absolute techniques
Proportional counter
Defined-solid-angle counting

ABSTRACT

A defined-solid-angle proportional counter has been designed for the absolute determination of X-ray emission rates between 2 keV and 10 keV. The main features of the counter are described in this work, and spectra of two radionuclides with low-energy X-ray emissions are presented. The activity concentration of an ⁵⁵Fe solution was determined by measuring the emission rate of three samples and using tabulated emission probabilities. This activity concentration is compared with the value obtained by liquid scintillation counting, and an excellent agreement has been found.

1. Introduction

The accurate measurement of low-energy X-rays presents some major difficulties arising from self-absorption, fluorescence in the detector and absorption or scattering in the housing of the sample or in the detector itself. In addition, some other problems hamper the mathematical processing of the spectra, namely the non-negligible natural width of the peaks and the tail they may present due to inelastic scattering of the X-rays, along with the interference of the scattering of gamma radiation emitted both by the radionuclide that is being measured and externally to the detector (Denecke et al., 1990b; Plagnard et al., 2008; Domergue et al., 2018; Lépy et al., 2018).

Further progress in some areas of science, such as internal dosimetry in nuclear medicine, analysis of materials, enforcement of environmental regulations and even basic research, depends, to a certain degree, on the improvement on the knowledge of fundamental parameters (FP) such as fluorescence yields or X-ray emission probabilities, some of which were determined with large uncertainties and with significant discrepancies among different measurements (IIFP, 2017). An alternative that has been recently developed is the use of metallic magnetic calorimeters, MMC (Rodrigues et al., 2014), which are based on the temperature rise caused by the interaction of a photon with a piece of material. Since the physical principle on which they are based is not the charge creation, they circumvent the intrinsic limitation in energy resolution that conventional detectors present, and they make it possible to reach energy resolutions that are one order of magnitude smaller than

that of semiconductor detectors. For this reason, they have been recently used for the determination of fundamental nuclear decay data (MetroMMC, 2020), especially for L X-rays (Rodrigues et al., 2017), whose discrimination requires an excellent resolution.

Given the complexity of X-ray emission spectra of many radionuclides, an ideal detector should have a good energy resolution, which can be provided by semiconductor detectors. However, absolute measurement with this kind of detectors is hampered by the fact that the measurement geometry and their internal structure cannot be accurately determined, which makes it necessary to calibrate them through the experimental measurement of previously calibrated sources combined with Monte Carlo simulations.

Nevertheless, the measurement of emission probabilities with these systems presents a major problem, which arises from recursive dependence: it is necessary to calibrate the detector using sources that emit X-rays in that range, and, if those sources have been calibrated in activity, the calibration of the secondary detector relies on the knowledge of the same emission probabilities that have not been yet accurately determined. In order to get rid of this recursive dependence, it would be necessary to use sources that have been calibrated in emission rate by an absolute method.

The physical principle of a gas-filled detector, as well as their operation in the proportional region, is well known. The objective of this work is to develop a proportional counter that operates as an absolute counter in the range from 2 keV to 10 keV and that can be used for the calibration of reference sources in terms of emission rate.

* Corresponding author.

E-mail address: victor.hernandez@ciemat.es (V.H. Elvira).

<https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2020.109113>

Received 29 March 2019; Received in revised form 6 February 2020; Accepted 2 March 2020

Available online 5 March 2020

0969-8043/© 2020 Elsevier Ltd. All rights reserved.

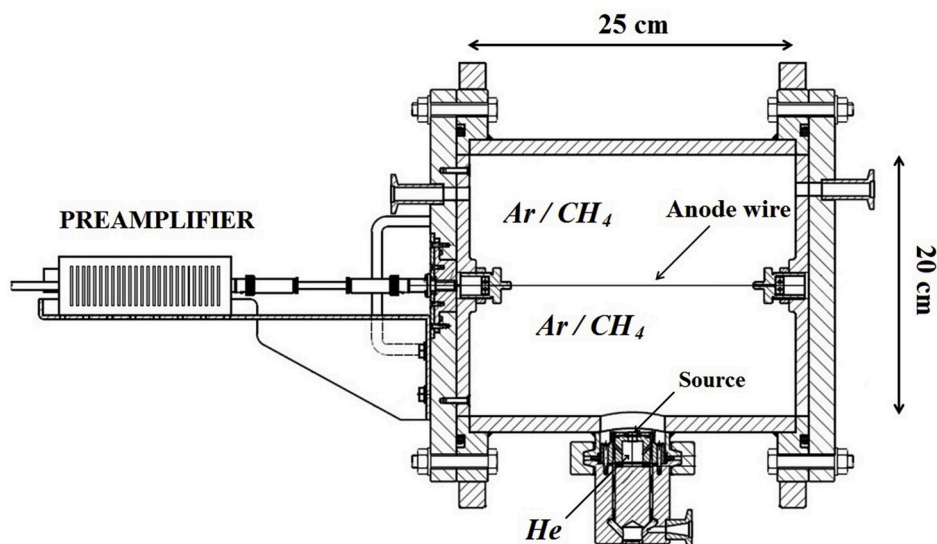


Fig. 1. Scheme of a longitudinal section of the proportional counter.

In order to minimize the uncertainties related to the absorption in the source holder and in the source itself, the counter was designed to operate under the principle of defined-solid-angle counting (Bambynek, 1967). Special care has been taken to design a system that guarantees the reproducible positioning of the source and thus the accurate definition of the solid angle. The dimensions have been measured with an accuracy that ensures an uncertainty close to 0.5% in the solid angle.

Similar X-ray counting systems based on the principle of proportional counters have been described previously in the literature, albeit there are significant differences between them. The counter described by Plagnard (1996) is not intended to operate as an absolute instrument. On the contrary, the system reported by Denecke et al. (1998) is based on the defined-solid-angle-counting principle. Energy resolutions reported by both authors are close to 0.9 keV or 0.95 keV for the main X-ray peak of ^{55}Fe (about 6 keV). Its use for the standardization of X-ray fluorescence reference sources (Denecke et al., 1990a; Denecke et al., 1990b) and for the determination of fluorescence yields (Solé et al., 1994) have been also described in the literature.

2. Design of the counter

The counting chamber (see Fig. 1) consists of a 20-cm-diameter, 25-cm-long aluminum cylinder, whose bases are covered with a Teflon layer in the inner part. The chamber is filled with a mixture of argon (90%) and methane (10%) at a pressure of 10^5 Pa. The charge is collected by a gold wire to which a 1900 V positive voltage is applied. The source is placed in a smaller chamber, adjacent to the counting chamber, filled with helium at the same pressure, in order to minimize the X-ray absorption before reaching the counting chamber. Both chambers are connected through a small diaphragm and separated by a thin window. The design of the source chamber guarantees the reproducibility of the source positioning, and the accurate measurement of its dimensions enables an uncertainty in the solid angle close to 0.5%. A gas control system allows operating under a continuous flow of argon. The counter is shielded by a set of 5-cm-thick lead bricks in order to reduce the natural background.

The design of the counter involved a large number of analytical calculations and Monte Carlo simulations that cannot be described in detail here. Therefore, only a few aspects are presented now, and the interested reader can find complete details elsewhere (Elvira,

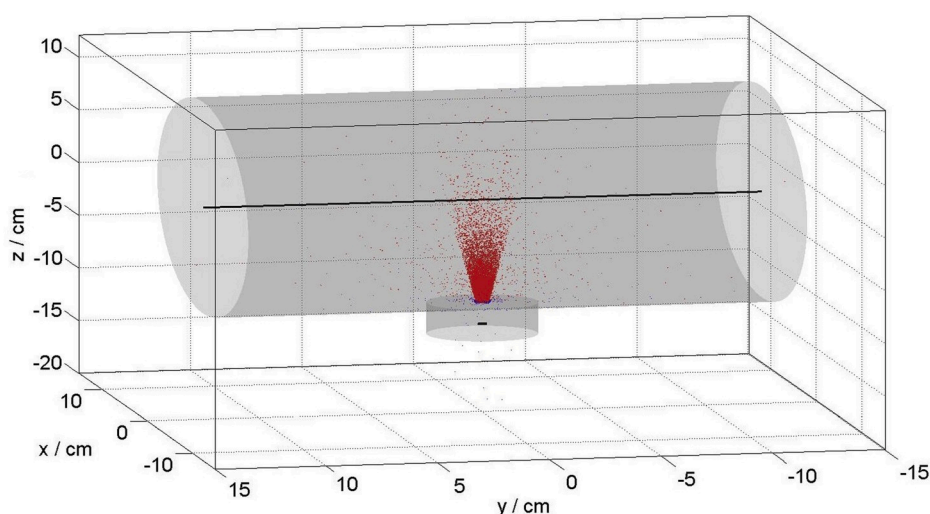


Fig. 2. Monte Carlo simulation of the interaction of a 6 keV X-ray beam with the counting chamber. The electrons created in the gas are shown in red. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

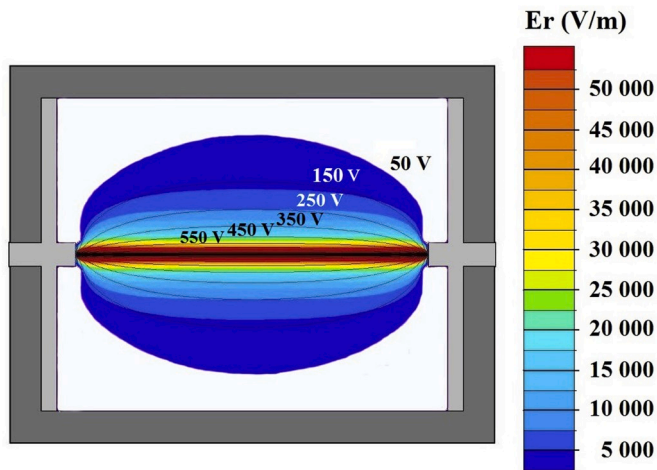


Fig. 3. Electric potential (equipotential lines, black) and radial component of the electric field (color code) in a longitudinal section of the counter when a 1900 V bias is applied to the anode wire. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

unpublished).

2.1. Energy deposition and charge creation

The aim of this work was to develop a proportional counter that operates as an absolute counter for X-rays with energies from 2 keV to 10 keV. In order for a measurement to be absolute, it is necessary to know which fraction of the emitted radiation is detected, so that the emission rate can be computed by applying the adequate correction factor. One of the elements of this correction factor is the intrinsic efficiency, i.e. the fraction of the radiation entering the counting chamber that is detected. In order to minimize the uncertainty in this component, the dimensions of the counter were chosen so that nearly 100% of the photons interact with the gas. With this purpose, simulations were carried out by means of PENELOPE code (Salvat, 2015), which accounts for the interactions of electrons with matter in a very accurate way. These calculations showed that over 90% of the radiation up to 9 keV interacts with the counting gas within a 20-cm-diameter counter operating at 10^5 Pa. Calculations have been made for different operating pressures in order to consider the extension of the energy range in the future.

Fig. 2 depicts the location of the electrons created when a beam of 6-keV X-rays is emitted towards the counting chamber (i.e. inside the cone subtended by the diaphragm). It can be seen that most of the electrons are created in the lower part of the counter, and there is almost no interaction with the helium or with the aluminum across the counter. Extended numerical and graphical details are provided in the reference mentioned above.

2.2. Characterization of the electric field

When working in the proportional regime, the multiplication zone must be kept small compared with the volume of the counter (ideally only a few times bigger than the anode wire, which in this counter is approximately $30 \mu\text{m}$ diameter) in order for the multiplication process to be reproducible and independent of the point where the primary charge was created.

Although a complete description of the charge collection has not been carried out in this study, the electric field inside the counter was modelled by means of the software Quickfield®. Calculations indicated that the optimal operating voltage was 1900 V. The aim was to choose a voltage that makes the multiplication zone small enough and essentially

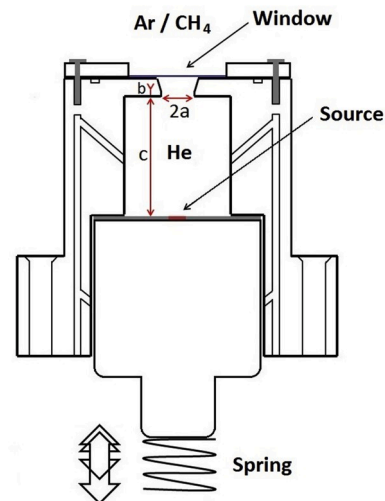


Fig. 4. Scheme of a longitudinal section of the source chamber.

homogeneous (that is to say cylindrically shaped over most of the length of the anode). Fig. 3 shows the electric potential and the radial component of the electric field in a longitudinal section of the counter when the selected voltage is applied to the anode wire.

For a typical counting gas mixture like Ar/CH₄ (9:1) at 10^5 Pa, the multiplication process occurs above $4.8 \cdot 10^6$ V/m. From the values of electric field obtained with Quickfield, the extension of the multiplication zone was found to be essentially cylindrical, with a diameter of $94 \mu\text{m}$, which is roughly three times the diameter of the wire. It was therefore concluded that the requirements for a reproducible multiplication are met.

2.3. Measurement of the solid angle

A positioning system was designed to guarantee the reproducibility of the source position (Fig. 4), thus allowing an accurate definition of the solid angle. The source is deposited on a rigid disc whose diameter is equal to the diameter of the chamber where it is placed. A spring pushes the upper end of the cylinder to ensure that the source-to-window distance does not depend on the thickness of the source holder and it does not contribute to the uncertainty in the geometric efficiency. The solid angle is then subtended by the diaphragm that connects the source and the counting chamber. The radius of the diaphragm (a) and the source-to-diaphragm distance ($z \equiv b + c$) are thus the dimensions that determine the solid angle.

These dimensions were accurately measured in the Centro Español de Metrología (CEM):

$$a = (2.5289 \pm 0.0032) \text{ mm } (k = 1)$$

$$z = (18.54 \pm 0.05) \text{ mm } (k = 1)$$

For a point source, this leads to a solid angle of.

$$G_p = (0.4587 \pm 0.0027) \%$$

However, for the accurate determination of the solid angle of the extended source, a self-radiography of the source is taken. Jaffey's method (Jaffey, 1954) is used to calculate the solid angle for each point, and the integral is computed over the extension of the source, weighted with the relative intensities given by the radiography (García-Toraño, 2008).



Fig. 5. Graphene-oxide window before (left) and after (right) reduction.

2.4. Detector window

The source and counting chambers must be separated by a thin layer made of a material with relatively low atomic number, in order to minimize the absorption of X-rays. A beryllium window was considered in preliminary stages of the design. However, foils of this material tend to be somewhat brittle, and given the design of the diaphragm it was difficult to achieve a good impermeability between both chambers, precisely due to their rigidity.

The solution adopted was to make a carbon-based window, made of reduced graphene oxide. The impermeability of this kind of membranes to helium has been verified in the literature (Nair et al., 2012), which makes them suitable for this application. With this purpose, a commercial graphene oxide aqueous suspension (concentration 4 mg/mL) purchased from Graphenea was used as precursor. A small volume was deposited on a hydrophobic surface and dried at room temperature in order to obtain a self-supported graphene oxide film (GO). This film was reduced chemically, using an aqueous solution of L-ascorbic acid with a concentration of 0.7 g/L as reductant. The reduction was carried out at 50 °C for 6 h. Afterwards, the reduced graphene oxide film (rGO) was dried at room temperature. The film was cut into a 12-mm square and placed on the diaphragm.

The self-supported films have been characterized before and after reduction (Fig. 5) by X-Ray photoelectron spectroscopy (XPS) and attenuated total reflectance Fourier transformed infrared (ATR-FTIR) spectroscopy. Both techniques confirm that, after reduction, the graphene film still contains a certain proportion of oxygenated groups. As it has been reported (Yang et al., 2009), a complete reduction of this kind of films is extremely difficult even at high temperature on a hydrogen atmosphere.

2.5. Measurement of the window thickness

The carbon window is too thin for its thickness to be measured by purely mechanical methods. Therefore, it was determined by measuring the energy loss of α -particles when passing through the foil.

The energy loss of the α -particles was determined by comparing the α -spectrum of a ^{240}Pu source measured directly and the spectrum measured after placing the foil between the source and the detector.

For the determination of the thickness through this method, it is necessary to know the stopping power of the material, and therefore its elemental composition, which was measured by XPS analysis. Next, by means of the software SRIM (SRIM, 2019), which uses the stopping powers given by Ziegler et al. (1977), the passage of α -alpha particles emitted by ^{240}Pu through a layer with this composition was simulated. This simulation was carried out for layers of various thicknesses, in order to characterize the dependence of the energy loss on the mass thickness of the foil. Then, the energy loss measured experimentally was interpolated in the curve, thus obtaining the mass thickness of the foil:

Table 1
Attenuation of X-rays of various energies in the detector window.

E (keV)	attenuation (%)
2	26.0 (15)
3	8.9 (5)
5	2.03 (10)
6	1.18 (6)
8	0.50 (3)
10	0.259 (13)

$$\sigma = (693 \pm 35) \mu\text{g}/\text{cm}^2$$

which implies an attenuation of (1.18 ± 0.06) % for the main peak of ^{55}Fe X-rays (Table 1 shows the attenuation for some other values of the incident energy).

2.6. Gas control system

The gas control system (Fig. 6) was designed in such a way that vacuum and subsequent filling can be done simultaneously in both chambers, thus guaranteeing that the difference of pressure on both sides of the window can be controlled.

A manometer is placed at the entrance of each chamber (M_1 and M_2). Two fine-control valves (V_5 and V_6) placed right before the manometers regulate the entrance of both gases in their chambers. In addition, shut-off valves (V_3 and V_4) are closed for safety reasons when the counter is not in use. Vacuum in both chambers is created by means of a rotatory pump, separated from the whole system by two shut-off valves (V_1 and V_2). The manometer placed right at the end of the pump (M_0) only controls that the pumping is taking place properly.

The counter is operated under a continuous flow of the counting gas. For this purpose, a fine-control valve (V_7) releases gas from the counter chamber, and an electronic valve (EV) opens when the pressure at M_1 is below 10^5 Pa and closes when it is higher. (When the counter is in use under continuous flow, valves V_3 and V_5 are fully opened, and it is only EV that controls the gas entrance). Since EV opens and closes to compensate any deviation from 10^5 Pa inside the counter, it is the opening of V_7 that determines the rate of the gas exit, and thus the flow. Measurements for this work have been made under a flow of 1.6 L/h. No significant broadening of peaks in the spectra has been observed due to a lack of stability in the pressure controlled by the electrovalve.

2.7. Electronics

A 1900 V bias is applied by means of a Bertan 315 power supply. The charge is collected on a 30- μm -diameter gold wire. The signal is processed by a preamplifier Ortec 142 PC, shaped by an amplifier Ortec 671 using a shaping time of 3 μs , and analyzed by a multichannel analyzer Ortec 927. The stability of the electronic chain and the dead time control was tested by means of a pulse generator.

3. Measurement of X-ray spectra

Sources of ^{55}Fe and ^{54}Mn were prepared by deposition of a drop of solution on a holder and measured in the proportional counter. The holder consisted of a polyethylene disc stuck on a quartz disc to guarantee structural integrity. The whole system is placed on a plastic target to enable the correct centering of the drop deposited. The holder is introduced into the source chamber and pressed against its upper wall as described in section 2.3.

The ^{55}Fe source had an activity of approximately 17 kBq, and the spectrum was measured for 15 h (Fig. 7, top). The resolution for the main peak of ^{55}Fe , at 6 keV, is around 0.90 keV, measured as the full width at half-maximum.

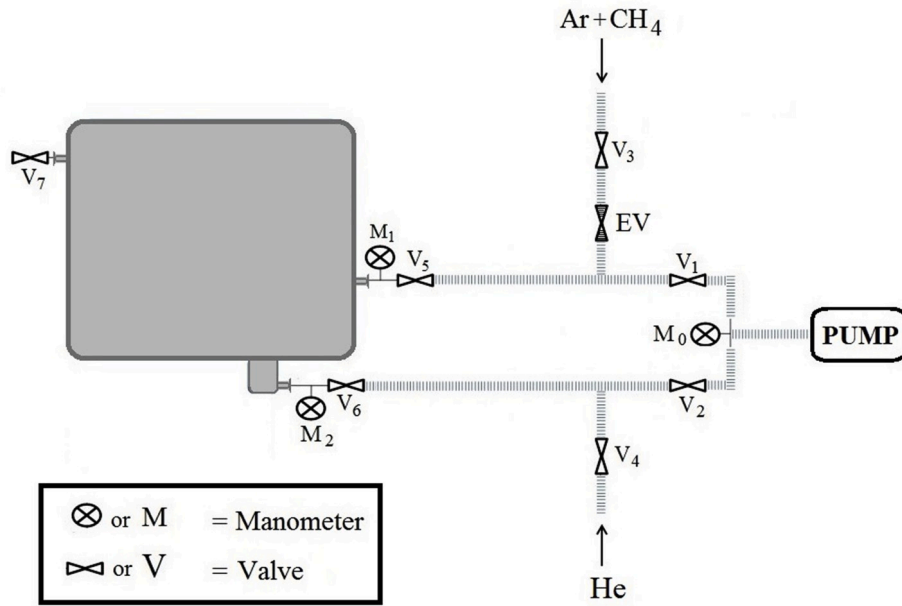


Fig. 6. Gas control system for the proportional counter.

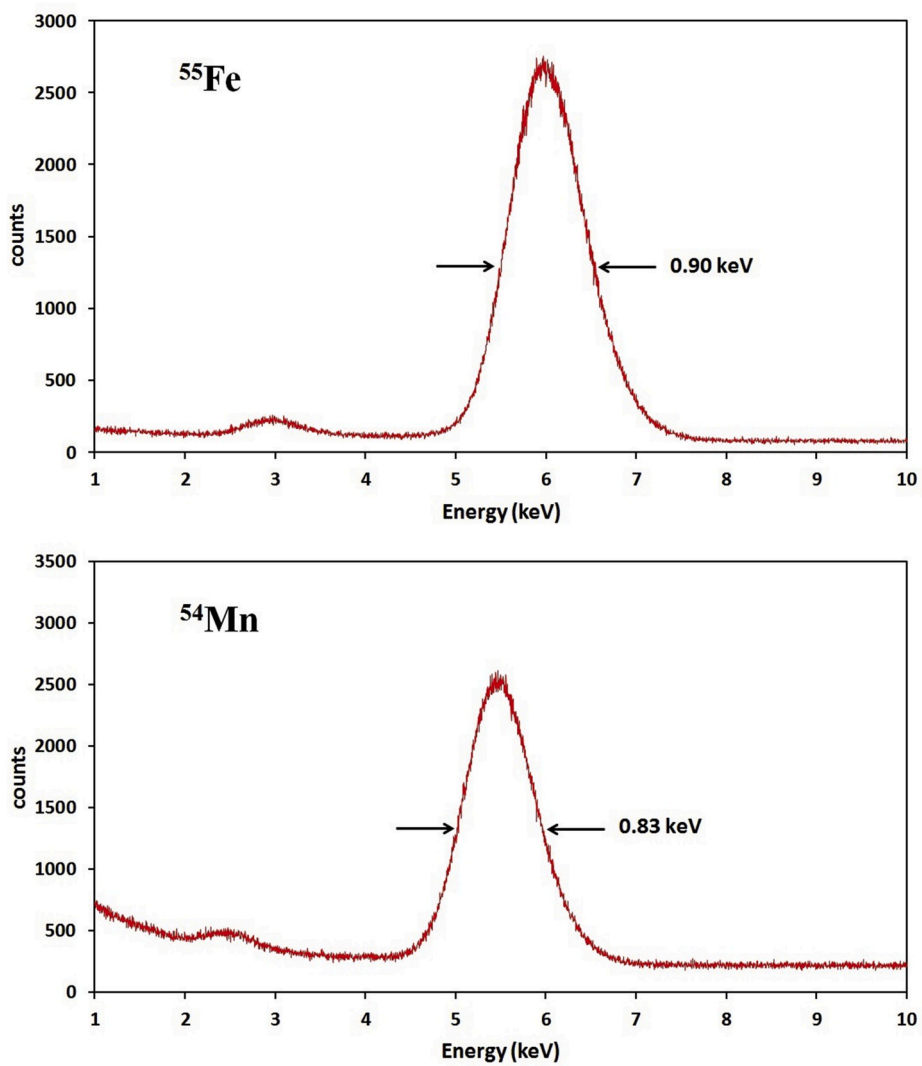


Fig. 7. X-ray spectra of ⁵⁵Fe (top) and ⁵⁴Mn (bottom) measured with the proportional counter.

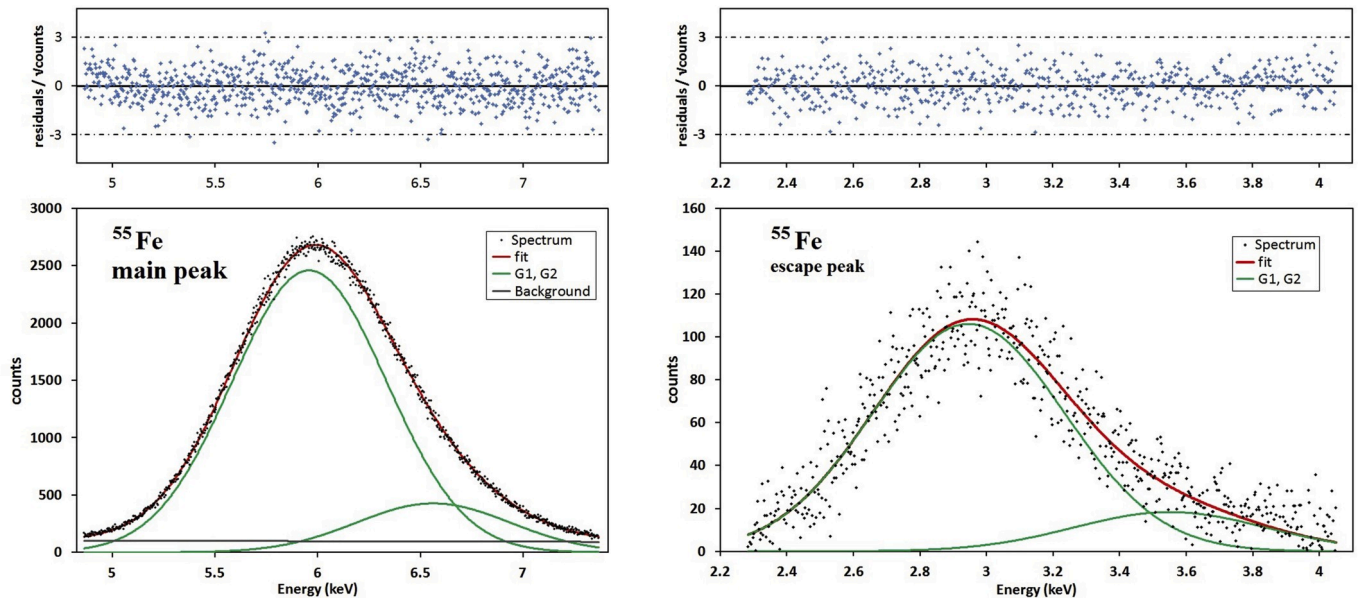


Fig. 8. Fit of the mean peak (left) and the escape peak (right) in an ^{55}Fe spectrum measured with the proportional counter to a linear combination of Gaussians plus a linear background. The linear background function is subtracted from all curves in the escape peak plot.

The ^{54}Mn source had an activity of 13 kBq. The spectrum was measured for 20 h (Fig. 7, bottom). The resolution for its main peak, centered at 5.48 keV, is close to 0.83 keV. It should be noticed that, due to the scattering of the γ emission of this radionuclide, the shape of the escape peak is not clearly seen.

The resolutions obtained here are similar to those reported for similar systems mentioned in section 1 (Plagnard, 1996; Denecke et al., 1998)

4. Measurement of the activity concentration of a ^{55}Fe solution and comparison with other primary techniques

In order to test the performance of the proportional counter as a primary technique, the activity concentration of a certified solution was measured. A carrier-free ^{55}Fe solution was first calibrated in activity per unit mass at LMRI with an uncertainty of 0.9% ($k=1$) by liquid scintillation counting using the Triple-to-Double Coincidence Ratio technique. The activity concentration obtained by this method was 657 Bq/mg. Next, three sources with masses of approximately 25 mg to 30 mg were prepared by depositing a drop of this solution on a holder by the pycnometer technique using a scale, model MX5 from Mettler Toledo. Their emission rates were measured in the proportional counter applying the necessary corrections for solid angle and attenuation in the helium and the detector window. Since the parent solution was carrier free, the average mass thickness of the sources was estimated to be in the order of 1 ng/cm², which makes the self-absorption correction factor negligible. Conversion from emission rates to activity concentration relies on emission probabilities that were taken from the Decay data evaluation project (Bé et al., 2006).

4.1. Measurements with X-ray counter

4.1.1. Spectrum analysis

Peak areas were computed by means of the software DATAPLOT (Dataplot, 2019), through a non-linear fit to a combination of two Gaussians curves (corresponding to the emissions at 5.9 keV and 6.5 keV, not resolved in the spectra) plus a linear background. The energy separation between both Gaussians was kept fixed in the optimization process. A common value for the standard deviation (σ) was also imposed. The analytical model used in the fits was:

Table 2

Measured data, correction factors and results of the activity concentration of the ^{55}Fe solution measured for the three samples.

Source number	#1	#2	#3
sample mass (mg)	27.956 (28)	25.672 (26)	30.163 (30)
count rate (s ⁻¹)			
main peak	22.37 (13)	20.63 (12)	24.32 (14)
escape peak	0.71 (12)	0.68 (11)	0.77 (13)
TOTAL	23.08 (18)	21.31 (17)	25.09 (19)
Transmission in window	0.9882 (8)		
Transmission in He	0.9999 (1)		
solid angle	0.004528(29)		
emission probability	0.2842 (48)		
Activity (kBq)	18.16 (36)	16.76 (33)	19.74 (39)
Activ. Conc. (Bq/mg)	649 (13)	653 (13)	654 (13)

$$y(x) = G_1 + G_2 + Bg$$

where

$$G_1(x) = A_1 \cdot \exp\left(-\frac{(x - m_1)^2}{2\sigma^2}\right)$$

$$G_2(x) = A_2 \cdot \exp\left(-\frac{(x - (m_1 - 0.6 \text{ keV}))^2}{2\sigma^2}\right)$$

$$Bg(x) = a + bx$$

Where A_1 and A_2 are the amplitudes of each Gaussian, m_1 is the center of the first one and x represents the energy in the spectrum.

The fit was carried out for the main peak and for the escape peak separately. Fig. 8 depicts the outcome of the fit for one of the sources. (It should be noted that, in the fit of the escape peak, since the background is so high compared with the amplitude of the Gaussians, the obtained background function ($a + bx$) has been subtracted from all of the plots for the sake of visualization).

As it can be seen, the fitting function chosen reproduces the spectral shape correctly, and the residuals do not follow any tendency or pattern.

4.1.2. Results and uncertainties

Table 2 presents the measured data, the correction factors and the results obtained with the three sources. The mean value of the three

Table 3a

Uncertainty components in the determination of the activity concentration through the measurement of the emission rate in the proportional counter.

Standard uncertainties/10 ⁻²				
Quantity Q	Relative uncert. of Q	Relative uncert. of emission rate.	Type	Comment
Counting statistics	0.77	0.77	B	From fitting. Includes background
Weighing	0.1	0.1	B	
Dead/live time	0.01	0.01	B	
Decay data	1.7	1.7	B	From emission probabilities taken from literature
Transmission in window	7.1	0.084	B	From window thickness (stopping powers of α -particles and peak location in the α -spectrum) and attenuation coefficients for 6 keV X-rays
Solid angle	0.64	0.64	B	From dimensions of the source chamber (section 2.3) and assuming an uncertainty of 0.5 mm in the source diameter
COMBINED		2.0		

results was 652 (13) Bq/mg.

The evaluation of the uncertainty was carried out in accordance with international recommendations (JCGM, 2008). A detailed uncertainty budget is presented in Table 3a. The main components considered are:

- i) Counting statistics and spectral fitting. They were obtained from the estimation of the uncertainty in the fitting parameters from which the peak areas are calculated, namely the amplitude and the standard deviation of the Gaussians. Since the background was included as a function in the optimization, its contribution to the total uncertainty is also considered.
- ii) Uncertainties in the sample mass were estimated to be 0.1%.
- iii) Uncertainties in the nuclear decay data (emission probabilities) used in the conversion from emission rate to activity were taken directly from the tables in the literature (Bé et al., 2006).
- iv) The uncertainty in the determination of the transmission through the detector window arises mainly from the uncertainty in the determination of the window thickness. It has two major contributions: the uncertainty in the determination of the energy loss of α -particles and the uncertainties in the stopping powers used by SRIM. The first component is estimated to be less than 1 keV over an energy loss of 550 keV on average, so its contribution to the total uncertainty is negligible. The uncertainty in the stopping powers was conservatively estimated to be 5%. Since the dependence of the energy loss on the window thickness is essentially linear over the interval considered, the uncertainty in the thickness can be assumed to be 5% as well. The influence of a 5% uncertainty in the window thickness on the uncertainty in the transmission factor is, according to the exponential law for attenuation, of 0.059%. Similar figures are obtained if the uncertainty in the attenuation coefficients is considered. Therefore, the combined uncertainty of all factors is 0.084%.
- v) An additional contribution from the transmission of X-rays in the helium chamber can be estimated considering the uncertainty in the size of the chamber and in the gas density (due to possible pressure and temperature fluctuations). However, since the attenuation is as low as 0.01% for 6 keV X-rays, its contribution to the total uncertainty is completely negligible.

Table 3b

Uncertainty components in the determination of the activity concentration by TDCR.

Quantity Q	Relative uncert. of activity	Type	Comment
TDCR determination	0.34	B	Effect of TDCR uncertainty
Counting Decay data	0.015	B	
	0.30	B	From emission probabilities taken from literature
kB determination	0.1	B	To account for variation depending on the kB selected
Decay model	0.7	B	Monte Carlo model based on tabulated probability data
Gravimetry Scintillator composition	0.1	B	
	0.2	B	To account for differences when using several scintillating cocktails
COMBINED	0.9		

- vi) Uncertainty in the solid angle calculation. For homogeneous circular sources, as the ones measured in this work, the uncertainty in the solid angle can be calculated directly from the uncertainties in the dimensional measurements (section 2.3) and in the diameter of the source. In the conditions of the measurements presented here, this uncertainty component is 0.64%.

By combining all contributions, the total uncertainty in the determination of the activity concentration is 2% ($k=1$).

4.2. Measurements with liquid scintillation counting

4.2.1. Description of the measurements

The concept of the Triple-to-Double Coincidence method is well known and it is described in detail in (Broda et al., 2007). Its practical implementation at CIEMAT has also been described in another paper (García-Toraño et al., 2018). A prototype counter using analog electronics and a MAC3 unit from LNHB was used for all measurements. Small amounts of the ⁵⁵Fe solution (about 30 mg) were added to four vials containing 15 mL of Optiphase Hisafe 3 scintillating cocktail each. Typical counting efficiencies were about 58%.

Efficiency calculations were carried out by a combination of Monte Carlo decay simulation using PENNUC code (García-Toraño et al., 2017) and efficiency calculations carried out with a computer program, NUR (García-Toraño, 2015), which processes output data from PENNUC and takes into account all elements of the cascade file.

4.2.2. Results and uncertainties

The activity concentration value was obtained as the mean of four independent measurements, and resulted to be 657 (6) Bq/mg. Uncertainty components are presented in Table 3b. Three components are related to the efficiency calculation procedure: a) nuclear decay data, here represented by fractional electron capture probabilities; b) atomic rearrangement data which follows the procedure described in PENNUC; and c) efficiency calculation using NUR. Altogether they represent the major contribution to the uncertainty budget.

4.3. Comparison

The difference between the values obtained with both techniques (652 (13) Bq/mg for X-ray counter and 657 (6) Bq/mg for TDCR) is below 1%, which is far below the stated uncertainties. Therefore, it can be concluded that the results are in good agreement.

Nevertheless, it must be pointed out that some uncertainty components (nuclear data) are correlated, so a direct comparison of activity concentration values using the combined uncertainties is not obvious:

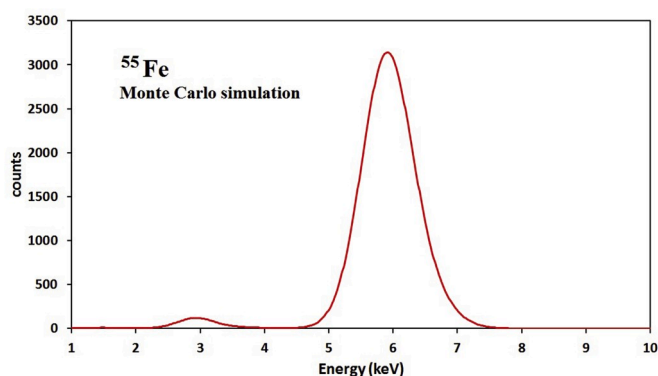


Fig. 9. ^{55}Fe X-ray spectrum calculated by Monte Carlo simulation after convolution with the gaussian response of the proportional counter.

Table 4

Comparison of the ratios of the main peak area to the total area of the ^{55}Fe spectrum measured experimentally and calculated by Monte Carlo simulations.

	Main-to-total ratio
Source 1	0.969 (9)
Source 2	0.968 (8)
Source 3	0.969 (9)
Mean	0.9688
Monte Carlo	0.9683 (12)

whereas the calculation of their effect is straightforward for the X-ray counter, it is very difficult to evaluate in TDCR, given that all nuclear data for this method are strongly correlated (i.e., changing a given data makes it necessary to rearrange the complete set). However, it must be highlighted that disregarding the effect of correlation would not affect the conclusion, given that, even if we fully neglected the uncertainty contribution from nuclear decay data, the discrepancy between both results would still be lower than the combination of uncertainties from both techniques.

5. Comparison of spectral measurements with Monte Carlo simulations

The model used for the design of the counter and the optimization of its dimensions was also employed for the simulation of the spectrum of an ^{55}Fe sample with the PENNUC code. A total of 10^9 events were simulated, and the emission was constrained to a 20° cone, which corresponds to a solid angle of 3.02%, a few times higher than the solid angle in the experimental set-up. Fig. 9 shows the spectrum obtained from the simulation convoluted with the Gaussian response of the counter.

The ratio of the main peak area to the total area of the spectrum was calculated for this simulation and compared to the results obtained in the fit of the experimental spectra measured for the three sources. The results of this comparison are shown in Table 4.

The experimental values obtained for this ratio show a small dispersion, and they are all in excellent agreement with the value calculated from Monte Carlo simulations. This implies, firstly, that the fit carried out for the escape peak is adequate for the computation of its area, and secondly, that, for lower energy X-ray emitters whose escape peak is too close to the low-energy background for its area to be determined experimentally with sufficient accuracy, it will be possible to determine its emission rate by measuring the mean peak and applying the correction factor for the X-ray escape.

6. Conclusions

A new instrument has been designed and built for the absolute determination of X-ray emission rates. It is based on a proportional counter that operates under the principle of low-solid-angle counting. The counter has been tested for spectral resolution using sources of low-energy X-ray emission as ^{55}Fe and ^{54}Mn . Its performance as an absolute instrument was evaluated by measuring the emission rates of several sources of ^{55}Fe , deriving their activities and comparing with the values obtained by scintillation counting. An excellent agreement has been found.

Declaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

CRediT authorship contribution statement

V.H. Elvira: Conceptualization, Methodology, Software, Formal analysis, Investigation, Writing - original draft, Writing - review & editing, Visualization, Supervision. **V. Peyrés:** Conceptualization, Methodology, Validation. **M. Roteta:** Conceptualization, Methodology, Writing - review & editing. **A. Fernández-Sotillo:** Resources, Investigation, Writing - original draft. **E. García-Torano:** Conceptualization, Methodology, Software, Writing - original draft, Writing - review & editing, Supervision.

Acknowledgements

This work was possible thanks to the close collaboration of our colleagues Marcos Mejuto Mendieta y Nuria G. Navarro Ortega, from LMRI in CIEMAT.

We gratefully acknowledge the work of Aelio A. Arce Criado and Rafael Muñoz Bueno, from the Centro Español de Metrología (CEM), who carried out the dimensional measurements of the source chamber, and Daniel Plaza López, from CIEMAT, who performed some additional measurements.

We also express our gratitude to all CIEMAT colleagues who helped in the construction of the counter: Manuel Daniel Leal, José Ignacio Martínez García and all the workers of CIEMAT's main workshop, and Fernando de Aragón Molla and the all workers of the workshop in Laboratorio Nacional de Fusión. G. Lacerenza first worked in the design of this instrument and assembled a preliminary model.

V. H. Elvira especially wishes to thank Dr. Marie-Christine Lépy and all colleagues from LNHB in CEA-Saclay (France) for their welcome and the opportunity to work in their facilities for three months. A. Fernández-Sotillo acknowledges the Spanish Ministry for Economy and Competitiveness and the European Regional Development Fund (ERDF) from the EU for a predoctoral grant under contract ENE2015 70417-P (E-LIG-E).

References

- Bambynek, W.B., 1967. *Precise Solid-Angle Counting*. IAEA, Standardization of Radionuclides, Vienna, pp. 373–383.
- Bé, M.-M., Chisté, V., Dulieu, C., Browne, E., Baglin, C., Chechev, V., Kuzmenko, N., Helmer, R., Kondev, F., MacMahon, D., Lee, K.B., 2006. *Table of Radionuclides*. Monographie BIPM-5 3 (BIPM, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres. France, 2006).
- Broda, R., Cassette, P., Karsten, K., 2007. Radionuclide metrology using liquid scintillation counting. *Metrologia* 44, S36–S52.
- Dataplot, 2019. accessed in March 2019. <https://www.itl.nist.gov/div898/software/dataplot/homepage.htm>.
- Denecke, B., Bambynek, W., Grosse, G., Wätjen, U., 1990a. A set of X-ray fluorescence reference sources for the intrinsic efficiency calibration of Si(Li) detectors down to 1 keV. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 49, 152–156.
- Denecke, B., Grosse, G., Szabo, T., 1998. Gain stabilisation of gas-flow proportional counters. *Appl. Radiat. Isot.* 49, 1117–1121.

- Denecke, B., Grosse, G., Wätjen, U., Bambynek, W., 1990b. Efficiency calibration of Si(Li) detectors with X-ray reference sources at energies between 1 and 5 keV. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 286, 474–479.
- Domergue, C., Riffaud, J., Lépy, M.-C., Destouches, C., Thiollay, N., Philibert, H., Vigneau, O., Gravier, L., Girard, J.M., Bonora, J., 2018. Improvement of the activity measurement method for solid dosimeters emitting X-rays. *Appl. Radiat. Isot.* 134, 182–189.
- García Toraño, E., Durán Ramiro, T., Burgos, C., Begoña Ahedo, M., 2008. Defined solid-angle counter with variable geometry. *Appl. Radiat. Isot.* 66, 881–885.
- García-Toraño, E., 2015. NUR, Efficiency Calculation for Arbitrary Nuclides in Liquid Scintillation Counting (Unpublished).
- García-Toraño, E., Peyres, V., Bé, M.-M., Dulieu, C., Lépy, M.-C., Salvat, F., 2017. Simulation of decay processes and radiation transport times in radioactivity measurements. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 396, 46–49.
- García-Toraño, E., Peyrés, V., Roteta, M., Mejuto, M., Sánchez-Cabezudo, A., Romero, E., 2018. Standardisation and half-life of ^{89}Zr . *Appl. Radiat. Isot.* 134, 421–425.
- IIFP, 2017. Roadmap document on atomic Fundamental Parameters for X-ray methodologies. accessed February 2019. https://www.exsa.hu/news/wp-content/uploads/IIFP_Roadmap_V2.pdf.
- Jaffey, A.H., 1954. Solid angle subtended by a circular aperture at point and spread sources: formulas and some tables. *Rev. Sci. Instrum.* 25, 349–354.
- JCGM, 2008. Evaluation of measurement data – guide to the expression of uncertainty in measurement. *JCGM 100*, 2008. www.bipm.org.
- Lépy, M.-C., Brondeau, L., Ménesguen, Y., Pierre, S., Riffaud, J., 2018. Consistency of photon emission intensities for efficiency calibration of gamma-ray spectrometers in the energy range from 20 keV to 80 keV. *Appl. Radiat. Isot.* 134, 131–136.
- MetroMMC project, 2020. Measurement of fundamental nuclear decay data using metallic magnetic calorimeters (accessed in January 2020). <http://empir.npl.co.uk/metrommc/>.
- Nair, R.R., Wu, H.A., Jayaram, P.N., Grigorieva, I.V., Geim, A.K., 2012. Unimpeded permeation of water through helium-leak-tight graphene-based membranes. *Science* 335, 442–444.
- Plagnard, J., Hamon, C., Lépy, M.-C., 2008. Study of scattering effects in low-energy gamma-ray spectrometry. *Appl. Radiat. Isot.* 66, 769–773.
- Plagnard, J., 1996. Modernisation d'un compteur proportionnel à angle solide défini pour la mesure d'émetteurs X de basses énergies. Note Technique LPRI/96/010.
- Rodrigues, M., Loidl, M., Pies, C., Fleischmann, A., Enss, C., 2014. Development of large bismuth absorbers for magnetic calorimeters applied to hard X-ray spectrometry. *J. Low Temp. Phys.* 176, 610–616.
- Rodrigues, M., Mariam, R., Loidl, M., 2017. A metallic magnetic calorimeter dedicated to the spectrometry of L X-rays emitted by actinides. *Eur. Phys. J. Web of Conferences* 146, 100–112.
- Salvat, F., 2015. PENELOPE-2014: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport. OECD/NEA Data Bank. NEA/NSC/DOC(2015)3. Issy-les-Moulineaux, France. Available from: <http://www.nea.fr/lists/penelope.html>.
- SRIM, 2019. The stopping and range of ions in matter (accessed February 2019). <http://www.srim.org/>.
- Solé, V.A., Denecke, B., Mouchel, D., Bambynek, W., 1994. Measurement of $P_{K\alpha\beta}$ in the decay of ^{65}Zn and the K-shell fluorescence yield of copper. *Appl. Radiat. Isot.* 45, 941–944.
- Yang, D., et al., 2009. Chemical analysis of graphene oxide films after heat and chemical treatments by X-ray photoelectron and Micro-Raman spectroscopy. *Carbon* 47, 145–152.
- Ziegler, J.F., et al., 1977. Stopping Powers and Ranges in All Elements. Pergamon Press Inc, New York.

ANEXO 2

Puesta en marcha del contador proporcional del LNHB-CEA

El Laboratoire National Henri Becquerel, situado en el CEA de Paris-Saclay, es el laboratorio nacional de metrología de radiaciones ionizantes de Francia [110]. Dispone de un contador proporcional de ángulo sólido definido para la medida de rayos X de baja energía desarrollado en los años noventa [51], basado en un diseño anterior [111] y con algunas modificaciones posteriores [112], que ha tenido escasa aplicación desde entonces. Durante mi estancia en dicho laboratorio, tuve la oportunidad de ponerlo de nuevo en marcha y realizar algunas medidas con él para poder comparar sus prestaciones con el contador desarrollado en este trabajo y sacar algunas conclusiones interesantes.

El contador del LNHB (Fig. 5.1) se basa esencialmente en el mismo principio de funcionamiento. Consiste en una cámara cilíndrica de 17,2 *cm* de diámetro lleno de una mezcla de Ar/CH_4 (9:1) a 1000 *hPa*. La muestra se coloca en una cámara adyacente, situada por encima de la cámara de recuento, llena de helio a misma presión. El sistema está equipado con dos cámaras de helio, una encima de la otra, porque fue concebido para poderse emplear para la medida en coincidencia con otra cámara, aunque actualmente solamente se emplea una de ellas. La carga se recoge en un hilo de acero al que se aplica una tensión de 1600 *V*.

La muestra se coloca sobre una bandeja extraíble que entra y sale de la cámara de helio. Este sistema hace más sencillo el cambio de muestra, pero hace que el posicionamiento de la muestra sea menos reproducible, ya que no hay un sistema que presione la fuente contra el plano que determina la distancia a la ventana.

El ángulo sólido de medida está definido por un colimador de wolframio en la cámara de la muestra, y es del mismo orden que el del contador que se presenta en este trabajo: en torno al 0,386 %.

La ventana del detector consiste en una lámina de berilio de 25 μm de espesor adherida al diafragma mediante una resina epoxy. Este sistema hace que el reemplazamiento de la ventana sea algo más complicado, aunque no excesivamente, puesto que la resina se puede disolver con relativa facilidad para despegar la ventana.

La principal diferencia mecánica con respecto al contador del LMRI es que existe una conexión entre las dos cámaras mediante un tubo exterior, que per-

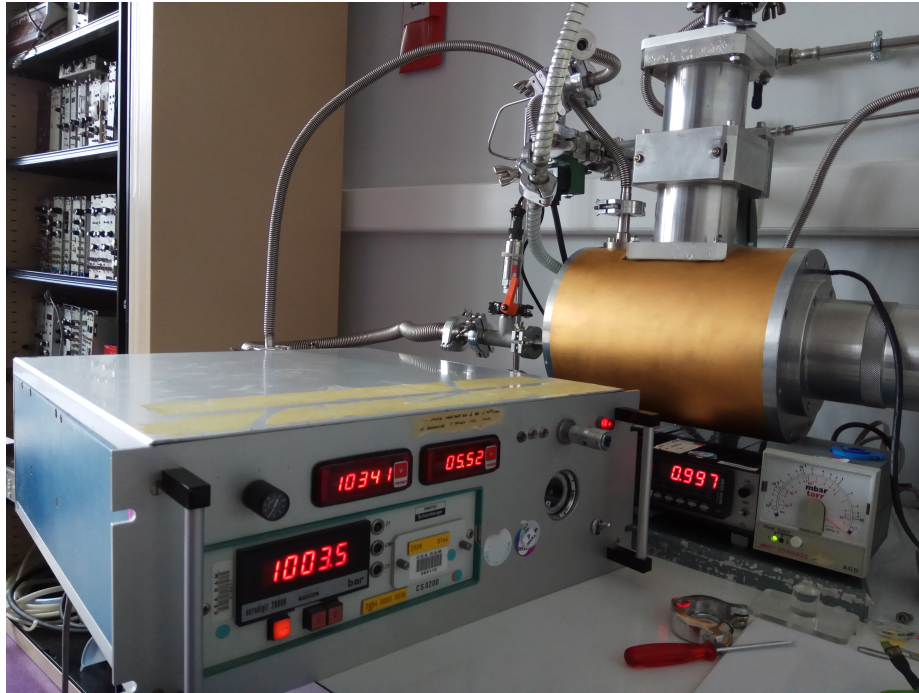


Figura 5.1: Fotografía del contador proporcional del LNHB.

manece cerrada durante el llenado y la medida, pero que se abre durante la etapa de bombeo, de manera que el vacío se crea en ambas cámaras simultáneamente, sin peligro de que se rompa la ventana en esa etapa, aunque sí se puede romper durante la etapa de llenado.

La operación está parcialmente automatizada y controlada por LabView, pero no la etapa de llenado, que se realiza mediante la apertura simultánea de dos válvulas manuales por parte del usuario. La etapa de bombeo es sencilla de automatizar, ya que basta con abrir la electroválvula “todo o nada” que conecta ambas cámaras y bombear libremente. En cambio, automatizar el proceso de llenado simultáneo de ambas cámaras con sus respectivos gases garantizando que la presión sea muy similar en ambas durante todo el proceso requeriría un sistema más sofisticado. El contador no está equipado para medir en flujo continuo de argón-metano, al menos en el diseño actual.

Medidas espectrales

Una vez que el contador estuvo puesto a punto y los parámetros de los componentes electrónicos optimizados, se empleó para la medida de una fuente encapsulada de ^{55}Fe de unos 40 kBq . El espectro obtenido en una de las medidas se representa en la figura Fig. 5.2.

La anchura del pico principal a mitad de la curva es de $0,96\text{ keV}$, lo que supone un 16% de su energía. Esta resolución es similar, aunque ligeramente peor, a la del contador del LMRI. La forma del pico principal es la esperada,

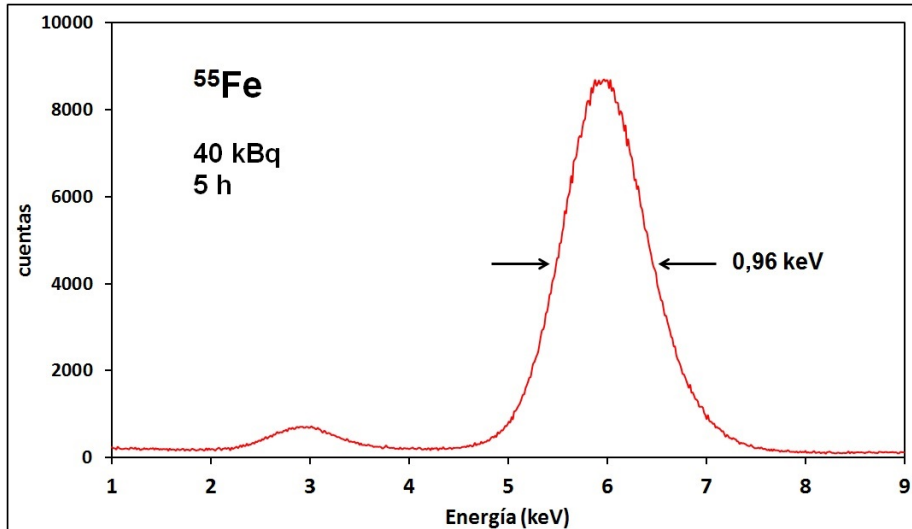


Figura 5.2: Espectro de una fuente de ^{55}Fe de 40 kBq medido durante 5 h con el contador proporcional del LNHB.

y el pico de escape se distingue perfectamente del fondo y presenta igualmente una forma adecuada.

El fondo del espectro es ligeramente más bajo que en el contador del LMRI: aproximadamente 0,35 cps por cada keV en el espectro frente a 0,5 keV. Esto puede deberse a que la radiación ambiental es menor, en parte porque se encuentra a menor altitud sobre el nivel del mar y en parte por los materiales que conforman el terreno y los elementos constructivos. En cualquier caso, se puede observar que la diferencia es poco significativa.

Pruebas de estabilidad

Se realizaron también pruebas para comprobar la estabilidad de las medidas con el tiempo. En la figura 5.3 se muestra la evolución de la posición, la anchura y la tasa de recuento del pico principal del espectro de ^{55}Fe con el tiempo de medida. En la figura se incluye también la variación de la temperatura durante el tiempo.

Como se puede observar, tanto la posición y la anchura del pico como la tasa de recuento presentan cierta variabilidad, que parece coincidir con una variación en la temperatura ambiental, siempre difícil de controlar.

La variación de la posición y de la anchura no afectan notablemente a las medidas, salvo provocando un pequeño ensanchamiento de los picos. Sin embargo, la variación en la tasa de recuento con el tiempo sí afecta a la precisión de las medidas.

Posteriormente, se le acopló al contador un sistema externo de regulación de flujo y control de presión para poder realizar también medidas en flujo continuo de argón-metano. La figura 5.4 muestra la evolución de la tasa de recuento para

un espectro de ^{55}Fe medido con flujo continuo de gas. Se puede observar que la tasa de recuento sí es estable en esas condiciones, después de cierto tiempo de estabilización (nótese que el primer punto de la figura 5.4 es notablemente superior al resto).

Preparación de una fuente excitación y medidas de fluorescencia

Se preparó también una fuente anular de ^{65}Zn para poder medir un espectro de fluorescencia. Se disponía de dos disoluciones de radionucleidos con actividad suficiente, una de ellas de ^{54}Mn y otra de ^{65}Zn . Se realizaron simulaciones de Monte Carlo mediante el código PENNUC (ver modelo en la Fig. 5.5) para comprobar con cuál de los dos radionucleidos se obtendría mayor tasa de emisión de fluorescencia. La conclusión es que, a igual tasa de emisión de la fuente de excitación, es ligeramente más favorable emplear radiación de $5,48\text{ keV}$ (^{54}Mn) que de $8,15\text{ keV}$ (^{65}Zn). Lo que ocurre es que, como la probabilidad de emisión del ^{65}Zn es mayor que la del ^{54}Mn , a igual actividad de la fuente se obtiene mayor tasa de recuento en el espectro de fluorescencia empleando ^{65}Zn . Para la geometría empleada se esperaban $6,6\text{ cps}$ por cada MBq de la fuente de excitación, por las $4,8\text{ cps}$ si se empleara ^{54}Mn .

Así pues, partiendo de la correspondiente disolución, se preparó una fuente anular de ^{65}Zn por deposición de 16 gotas de $10\mu\text{L}$ sobre un material absorbente (Fig. 5.6 superior izquierda). Una vez evaporado el disolvente, se plastificó la fuente y se abrió un agujero central en el plástico para permitir el paso de los rayos X de fluorescencia (Fig. 5.6 inferior izquierda).

Se colocaron la fuente de excitación de ^{65}Zn y una lámina de titanio enfrentadas sobre un soporte (Fig. 5.6 derecha) y se midió el espectro de fluorescencia del titanio (Fig. 5.7). En esta ocasión, la radiación γ del ^{65}Zn hace que el fondo del espectro sea considerablemente más elevado que en el caso del ^{55}Fe . Esto, unido al hecho que los rayos X de fluorescencia del titanio tienen menor energía, y que la tasa de recuento es menor, conducen a que la forma del espectro se encuentre bastante deteriorada.

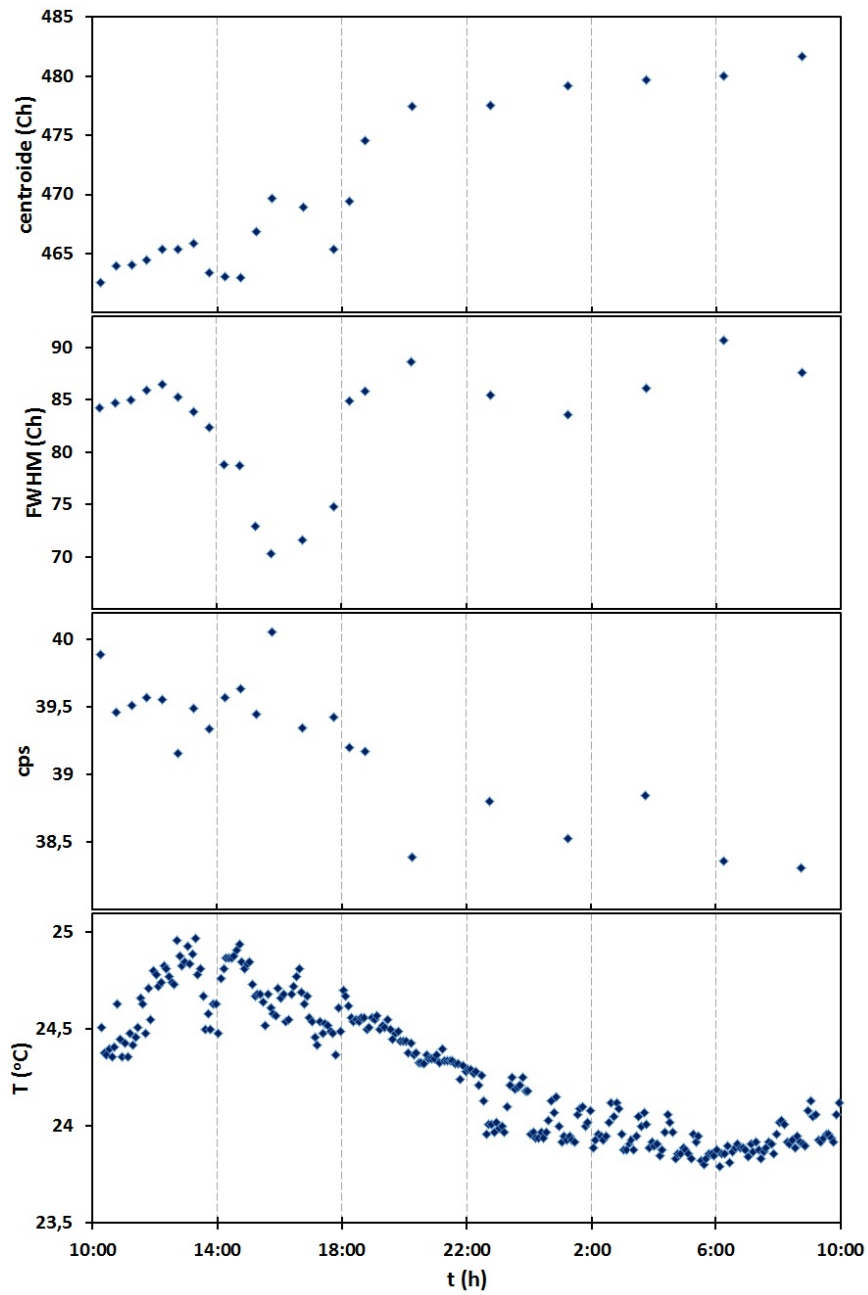


Figura 5.3: Evolución de la posición, anchura y tasa de recuento del pico del espectro de ^{55}Fe medido con el contador proporcional del LNHB.

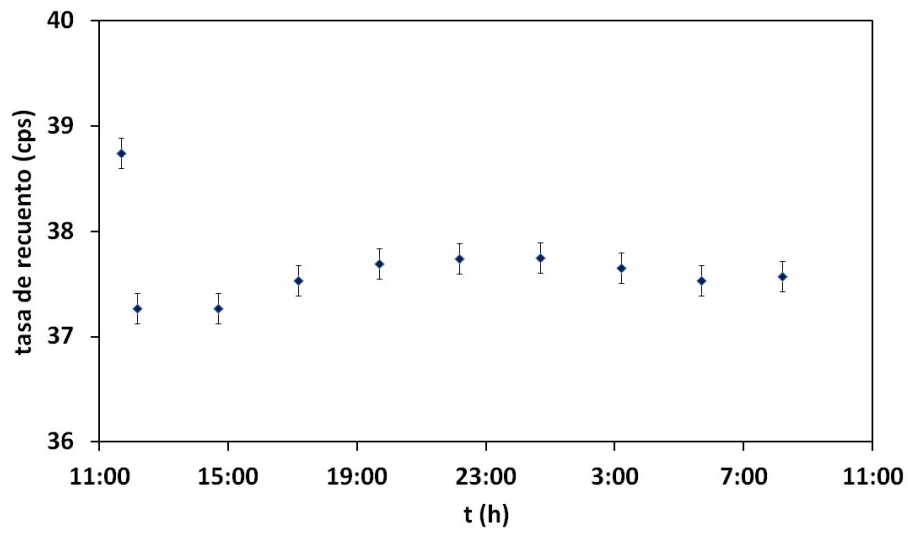


Figura 5.4: Evolución de la tasa de recuento del pico del espectro de ^{55}Fe medido con el contador proporcional del LNHB operado en flujo continuo de argón-metano.

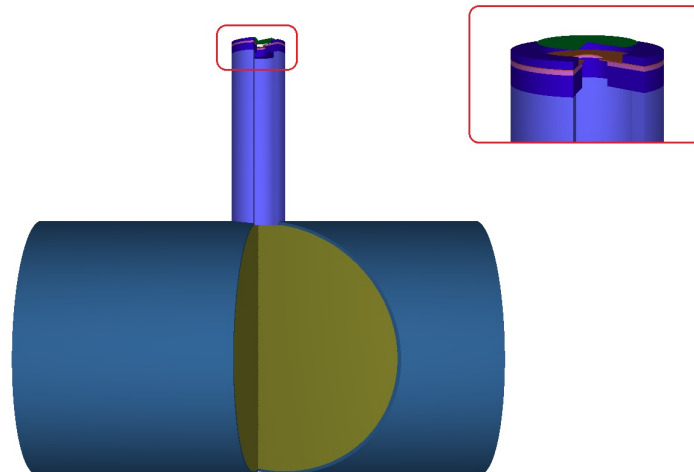


Figura 5.5: Modelo geométrico para la simulación de Monte Carlo de la fuente de fluorescencia.

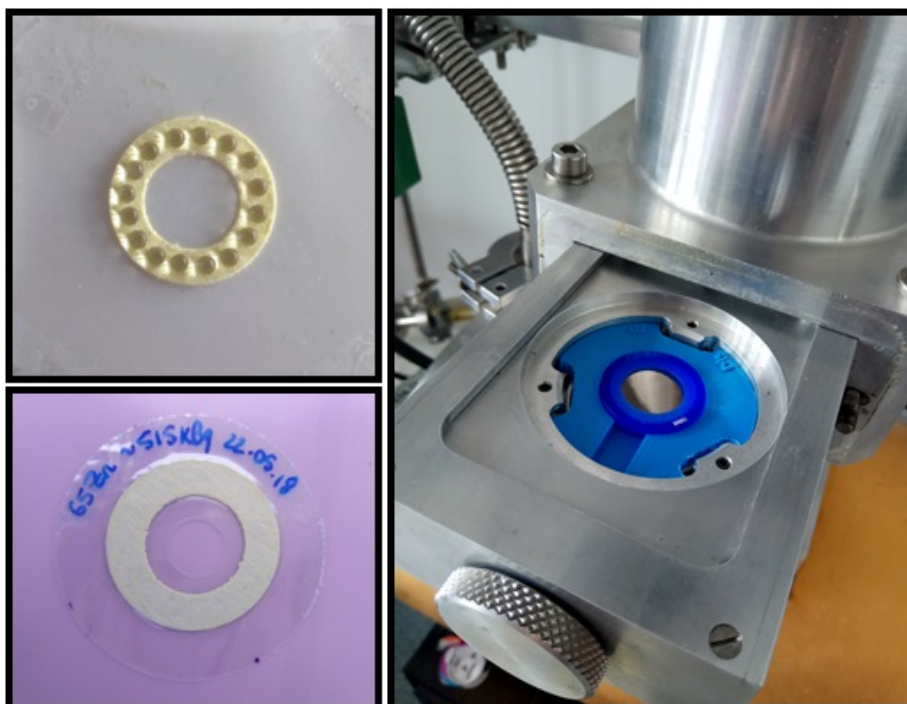


Figura 5.6: Preparación de la fuente de excitación de ^{65}Zn y colocación junto con el blanco de fluorescencia para la medida del espectro.

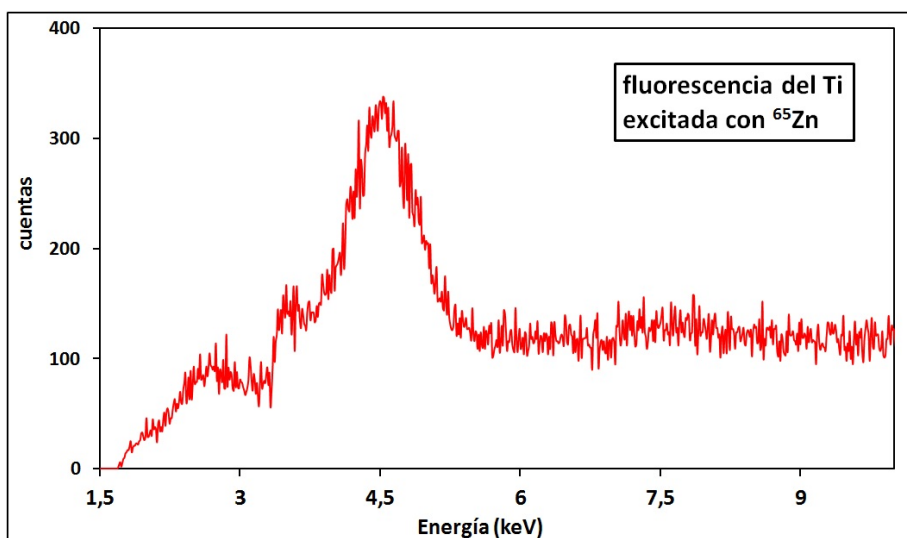


Figura 5.7: Espectro de fluorescencia del titanio excitado con una fuente de ^{65}Zn de 515 kBq medido durante 2 h en el contador proporcional del LNHB.

