

UNIVERSIDAD DE BUENOS AIRES

Facultad de Ciencias Exactas y Naturales

Departamento de Física



**Diseño, construcción e implementación de
dos sistemas digitales de coincidencias en
configuraciones $4\pi\beta-4\pi\gamma$ / $4\pi\gamma-\beta$**

Tesis de licenciatura en Ciencias Físicas

FELIPE EMILIANO PEREZ

Directores: Dr. Darío Rodrigues y Lic. Christian Belpardo

Buenos Aires, 2025

Tema: Diseño, construcción e implementación de dos sistemas digitales de coincidencias en configuraciones $4\pi\beta-4\pi\gamma$ / $4\pi\gamma-\beta$.

Área: Física Nuclear.

Estudiante: Felipe Emiliano Perez.

LU: 251/17.

Lugar de trabajo: Grupo de Metrología Científica, Laboratorio Metrología de Radioisótopos, Centro Atómico Ezeiza, CNEA.
Laboratorio Argentino de Mediciones de ultra Bajo umbral y sus Aplicaciones, Departamento de Física, Universidad de Buenos Aires.

Director: Dr. Dario Rodrigues.

Codirector: Lic. Christian Belpardo.

Inicio: Marzo 2024.

Finalización: Abril 2025.

Fecha de defensa: Mayo 2025.

AUTOR

JURADO 1

DIRECTOR

JURADO 2

CO-DIRECTOR

JURADO 3

Resumen

La estandarización precisa de la concentración de actividad de soluciones radiactivas permite asegurar la trazabilidad y calidad de las mediciones de radionucleidos en campos como la Medicina Nuclear, en tratamientos de radioterapia y diagnóstico, así como en aplicaciones industriales y ambientales. Para ello, los métodos absolutos de medición, como los basados en coincidencias, permiten determinar la actividad de una fuente radiactiva sin depender de patrones secundarios, teniendo por lo tanto la capacidad de generarlos. En este trabajo se diseñaron, construyeron y caracterizaron dos sistemas digitales de coincidencias, un sistema $4\pi\beta-4\pi\gamma$ con detector de centelleo plástico y un sistema $4\pi\gamma-\beta$ con detector de barrera de superficie de silicio, ambos acoplados a un detector NaI(Tl) tipo pozo para la detección gamma. Las mediciones realizadas de los radionucleidos ^{133}Ba , ^{152}Eu , ^{134}Cs y ^{60}Co , no presentan diferencias significativas con los valores de referencia. Se integró un sistema de adquisición digital que permite un procesamiento versátil de los datos, y se desarrolló un programa específico para la visualización y análisis integral de los espectros, incluyendo la aplicación del método $4\pi\gamma$ a partir de simulaciones Monte Carlo. Este enfoque permitió obtener resultados en concordancia con los valores de referencia para los radionucleidos medidos, aunque se identificó la necesidad de ajustar las geometrías y materiales simulados para mejorar la compatibilidad global.

Abstract

Accurate standardization of the activity concentration of radioactive solutions ensures the traceability and quality of radionuclide measurements in fields such as Nuclear Medicine, in radiotherapy treatments and diagnostics, as well as in industrial and environmental applications. For this purpose, absolute measurement methods, such as those based on coincidences, allow for the determination of the activity of a radioactive source without relying on secondary standards, thus having the capacity to generate them. In this work, two digital coincidence systems were designed, built, and characterized: a $4\pi\beta$ – $4\pi\gamma$ system with a plastic scintillation detector, and a $4\pi\gamma$ – β system with a silicon surface barrier detector, both coupled to a well-type NaI(Tl) detector for gamma detection. Measurements of the radionuclides ^{133}Ba , ^{152}Eu , ^{134}Cs , and ^{60}Co showed compatibility with the reference values. A digital acquisition system was integrated, allowing versatile data processing, and a specific program was developed for the visualization and comprehensive analysis of the spectra, including the application of the $4\pi\gamma$ method based on Monte Carlo simulations. This approach made it possible to obtain results consistent with the reference values for the measured radionuclides, although the need to adjust simulated geometries and materials was identified in order to improve overall compatibility.

Agradecimientos

Quiero agradecer en primer lugar a Darío y a Christian, no solo por dirigir este trabajo, sino también por la excelente predisposición y por estar siempre ahí para sugerir ideas y responder cualquier tipo de consultas. A mi familia —mi mamá, mi papá y mi hermano— que estuvieron para bancarme y apoyarme en los momentos de mayor frustración. A los amigos que me dio la facultad, que hoy son una parte muy importante de mi vida. A los chicos de Futsal de Exactas, que desde que empecé la carrera fueron mi cable a tierra para no enloquecer entre tantas horas de cursada. Y a mis amigos de la vida, que siguen estando ahí, aunque pasen los años.

A mis compañeros del Laboratorio Metrología de Radioisótopos, a todos ellos, que entre charlas, risas y debates del día a día, fueron una gran compañía durante este último año. A Mario, por enseñarme todo lo que sé sobre simulaciones computacionales, y por ayudarme (quizás sin saberlo) en gran parte del trabajo. A Emiliano Rossi, por aportarme ideas para el diseño del soporte del detector y por la gran compañía. A Ludmi, por la preparación de las fuentes radiactivas que usé en las mediciones y por mantenerme siempre al tanto de los chismes del laboratorio. A Seba, por estar siempre dispuesto a darme una mano con cuestiones de electrónica. A Diego y a Nico, por hacer un poco más divertidas mis horas en el laboratorio.

Índice general

1. Introducción	11
1.1. Metrología de Radioisótopos	11
1.2. Métodos Primarios	12
1.3. Método de Coincidencias	13
1.3.1. Correcciones al modelo simplificado	14
1.4. Método $4\pi\gamma$	16
2. Diseño Experimental	19
2.1. Sistema de Coincidencias Digital $4\pi\beta$ - $4\pi\gamma$ (PS)	19
2.1.1. Detector β - Centellador Plástico	20
2.1.2. Detector γ - NaI(Tl) Tipo Pozo	23
2.2. Sistema de Coincidencias $4\pi\gamma$ - β (Si)	27
2.2.1. Detector β - Silicio	28
2.3. Sistema de Adquisición y Procesamiento de Señales	30
2.3.1. Cadena de espectrometría tradicional	30
2.3.2. Sistema de adquisición digital	33
3. Desarrollo de Software y Análisis de Datos	35
3.1. Módulo Spectra	36
3.2. Módulo DCC2	37
3.3. Módulo $4\pi\gamma$	41
4. Mediciones y Resultados Experimentales	43
4.1. Estandarización de ^{133}Ba	43
4.1.1. $4\pi\beta$ - $4\pi\gamma$ (PS)	44
4.1.2. $4\pi\gamma$ - β (Si)	49
4.2. Estandarización de ^{60}Co	52
4.3. Estandarización de ^{134}Cs	55
4.4. Estandarización de ^{152}Eu	59

5. Simulación de eficiencia (Método $4\pi\gamma$)	65
5.1. Modelado de la geometría experimental	66
5.2. Cálculo de la eficiencia del sistema	67
5.3. Validación de los resultados simulados	69
6. Conclusiones	71
A. Preparación de fuentes	77
B. Incertidumbres	79
B.1. Incertidumbre en la estadística de conteo	79
B.2. Incertidumbre en las variables temporales dependientes del TAR	79
B.3. Incertidumbre en la extrapolación	79
B.4. Incertidumbre debida a correcciones por decaimiento (u_{Dec})	80
B.5. Incertidumbre en la masa de la fuente u_m	81
B.6. Incertidumbre total combinada	82
B.7. Incertidumbre del promedio pesado	82
C. Software DCC2	85
D. Esquemas de decaimiento	87
D.1. ^{133}Ba	87
D.2. ^{60}Co	88
D.3. ^{134}Cs	89
D.4. ^{152}Eu	90

1 Introducción

1.1 Metrología de Radioisótopos

La metrología en el ámbito de las radiaciones ionizantes es esencial para el desarrollo de diversas aplicaciones científicas, médicas e industriales. La determinación de la actividad de una fuente radiactiva permite asegurar la calidad y confiabilidad de los procesos que involucran la radiación, desde el diagnóstico y tratamiento en medicina hasta la monitorización de procesos industriales y estudios ambientales. La trazabilidad de estas mediciones depende en gran medida de la existencia de patrones primarios, obtenidos mediante métodos absolutos, que no dependen de calibraciones indirectas o patrones secundarios, garantizando así una base sólida y universal para la comparación de resultados en cualquier laboratorio.

Los métodos absolutos se basan en técnicas que permiten medir directamente la tasa de desintegración de un radionucleido, sin recurrir a patrones intermedios. Estos permiten producir y calibrar patrones radiactivos con un alto grado de precisión. Entre estos métodos, los sistemas de coincidencias se destacan por su capacidad para relacionar la detección de dos o más radiaciones emitidas en cascada, lo que resulta en una reducción significativa en la incertidumbre de la medición. En la industria, la medicina y la investigación científica se requiere una verificación constante de las actividades de las fuentes radiactivas para garantizar tanto la seguridad de los operadores como la calidad de los procedimientos que dependen de ellas. Se puede tomar como ejemplo procesos tales como la calibración de equipos de diagnóstico por imagen, en terapias de radiación y en estudios de trazabilidad ambiental, donde una medición errónea puede tener consecuencias significativas.

A nivel nacional, el Laboratorio de Metrología de Radioisótopos (LMR) de la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA) es responsable de la producción y calibración de patrones radiactivos. La participación regular del laboratorio en comparaciones internacionales, coordinadas por organismos como el *Bureau International des Poids et Mesures* (BIPM) a través del Sistema Internacional de Referencia (SIR), subraya la importancia de contar con métodos de medición que sean reconocidos y validados a nivel mundial. En este sentido, el desarrollo de un sistema de coincidencias que permita la determinación

absoluta de la actividad de una fuente radiactiva no solo representa un avance tecnológico, sino también un aporte a la comunidad metrológica internacional.

El objetivo de este trabajo es construir dos sistemas de coincidencias $\beta - \gamma$ que permitan determinar la actividad de soluciones radiactivas en forma absoluta, es decir, sin la necesidad de patrones. Los sistemas de coincidencias que se proponen en esta tesis se basan en la medición simultánea de radiaciones beta y gamma. Este método aprovecha la característica de ciertas desintegraciones radiactivas, permitiendo registrar de manera conjunta los eventos asociados y, de esta forma, obtener el valor de actividad. La configuración experimental adoptada incluye detectores semiconductores y de centelleo, con un sistema de adquisición de datos con procesamiento digital que permite aplicar distintos métodos a partir de una misma medición. En comparación con los sistemas analógicos tradicionales, el enfoque digital implementado en este trabajo ofrece ventajas notables en cuanto a la versatilidad para el análisis de datos.

1.2 Métodos Primarios

La determinación absoluta de la actividad de una fuente radiactiva es un aspecto fundamental en la metrología de radionucleidos, ya que garantiza la trazabilidad y exactitud en las mediciones, sin depender de estándares previamente calibrados. Existen distintos métodos primarios, cada uno basado en principios físicos que permiten una medición directa de la actividad sin necesidad de referencias externas. Los más utilizados incluyen el sistema de coincidencias, el sistema $4\pi\gamma$, el método TDCR (*Triple-to-Double Coincidence Ratio*) y las coincidencias $\beta - \gamma$, $\alpha - \gamma$, $X - \gamma$, etc. Cada uno de estos métodos presenta características particulares que los hacen adecuados para diferentes tipos de radionucleidos y condiciones experimentales.

El sistema de coincidencias $\beta - \gamma$ es uno de los métodos más empleados en la estandarización de radionucleidos emisores de radiación beta y gamma, este se basa en la detección simultánea de ambas radiaciones [1]. Por otro lado, el método $4\pi\gamma$ se basa en la detección integral de la radiación gamma emitida por una fuente radiactiva en una geometría envolvente, proporcionando una estimación directa de la actividad mediante la determinación precisa de la eficiencia del sistema.

Otro método ampliamente utilizado es el TDCR, que se basa en la relación de coincidencias entre tres detectores de centelleo líquido [2]. Este método es especialmente útil para radionucleidos emisores beta puros, permitiendo una medición absoluta de la actividad sin la necesidad de fuentes de referencia. Finalmente, el método de coincidencias $X - \gamma$ se utiliza en radionucleidos que decaen por captura electrónica, donde la emisión de rayos X internos puede ser utilizada en combinación con la detección de fotones gamma.

En el Laboratorio de Metrología de Radioisótopos (LMR) de la CNEA, se cuenta con varios sistemas de medición primaria de actividad, incluyendo el sistema de coincidencias

β - γ , X- γ , el sistema $4\pi\gamma$ y TDCR [3,4]. Estos sistemas han sido validados a través de comparaciones internacionales organizadas por el BIPM y han permitido la estandarización de numerosos radionucleidos en el país.

1.3 Método de Coincidencias

El método de coincidencias se basa en la detección simultánea de dos radiaciones de distinta naturaleza provenientes del mismo proceso de desintegración nuclear. En general, este método se aplica a nucleidos que decaen mediante la emisión de pares de radiaciones como β - γ , α - γ o captura electrónica- γ [5]. Se considera que dos sucesos son simultáneos si ocurren dentro de un intervalo de tiempo determinado, denominado *tiempo de resolución*, el cual puede fijarse electrónicamente.

Para ilustrar este método, consideremos un esquema de decaimiento en el cual un radionucleido emite una partícula β seguida de la emisión de un fotón γ producto de la desexcitación del núcleo hijo. En este caso, la medición se realiza en tres canales independientes:

1. Partículas β emitidas por el núcleo padre (canal β).
2. Fotones γ emitidos por el núcleo hijo al desexcitarse (canal γ).
3. Eventos con detección simultánea de β y γ (canal de coincidencias).

Un ejemplo de sistema de coincidencias tradicional es el conformado por un contador proporcional para la detección de partículas cargadas (electrones o alfas), uno o más detectores de centelleo o semiconductores para la detección de fotones, y la electrónica de adquisición de datos para cada uno de los tres canales. En sistemas modernos, las coincidencias pueden establecerse por software, permitiendo un análisis más flexible de los eventos detectados.

En un esquema ideal, la cantidad de eventos N_β detectados en el canal β está dada por:

$$N_\beta = \varepsilon_\beta N_0$$

donde ε_β es la eficiencia de detección del canal β y N_0 es el número total de desintegraciones de la fuente radiactiva. Se puede pensar en la eficiencia ε_β como la probabilidad de que una emisión beta sea detectada.

De manera análoga, la cantidad de eventos detectados en el canal γ es:

$$N_\gamma = \varepsilon_\gamma N_0$$

donde ε_γ representa la eficiencia del detector de emisiones γ .

Asumiendo que las eficiencias de detección son independientes, la cantidad de coincidencias detectadas entre los dos canales, N_c , será:

$$N_c = \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma N_0$$

Despejando N_0 , obtenemos la expresión para determinar la actividad de la fuente radiactiva:

$$N_0 = \frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}$$

Finalmente, la actividad A de la fuente, definida como el número de desintegraciones por unidad de tiempo, se expresa como:

$$A = \frac{N_0}{\Delta t}$$

1.3.1 Correcciones al modelo simplificado

En cualquier sistema práctico de medición por coincidencias, al menos uno de los detectores, generalmente el detector β , no es exclusivamente sensible a un único tipo de radiación. Por lo tanto, las expresiones básicas para las tasas de conteo deben modificarse para incluir la sensibilidad del detector β a radiaciones provenientes de transiciones electromagnéticas, específicamente fotones (gamma, X) y electrones de conversión [6].

Consideremos entonces un nucleido con emisión β - γ , con n ramas β , cada una seguida de las posibles emisiones γ . Describimos la respuesta del sistema a los electrones de conversión y a todos los fotones mediante las eficiencias ε_{ce} y $\varepsilon_{\beta\gamma}$, respectivamente. Las tasas de conteo en los canales beta y gamma (ρ_β y ρ_γ), así como la tasa de coincidencias ($\rho_{\beta\gamma}$), pueden expresarse como:

$$\begin{aligned} \rho_\beta &= A \sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \right] \\ \rho_\gamma &= A \sum_{r=1}^n a_r \frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} \\ \rho_{\beta\gamma} &= A \sum_{r=1}^n a_r \left[\frac{\varepsilon_{\beta r} \varepsilon_{\beta\gamma r}}{1 + \alpha_r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \varepsilon_{cr} \right] \end{aligned} \quad (1.1)$$

donde a_r es el factor de peso de la rama β y α_r es el coeficiente total de conversión interna asociado con esa rama β . La eficiencia ε_{cr} representa la probabilidad de registrar una coincidencia cuando la partícula β asociada no es detectada, mientras que $\varepsilon_{\beta\gamma}$ es la eficiencia del detector β ante la radiación γ [5].

En muchos casos, los parámetros presentes en la Ec. (1.1) no se conocen con precisión, lo que impide obtener directamente un valor aceptable de A desde el punto de vista metrológico.

No obstante, es posible derivar una solución para A considerando que todas las ramas de decaimiento β están influenciadas por las mismas variables físicas que determinan las pérdidas en el conteo. En este sentido, las distintas eficiencias β pueden estar funcionalmente relacionadas de la siguiente manera:

$$\varepsilon_{\beta r} = 1 - g_r(1 - \varepsilon_{\beta s}) \quad (1.2)$$

donde $\varepsilon_{\beta s}$ es la eficiencia β correspondiente a cualquier rama de decaimiento β . Sustituyendo la Ec. (1.2) en (1.1), se obtiene la denominada función de eficiencias:

$$\frac{\rho_{\beta}\rho_{\gamma}}{\rho_{\beta\gamma}} = A \left[1 + (1 - K) \left(\frac{1 - \rho_{\beta\gamma}/\rho_{\gamma}}{\rho_{\beta\gamma}/\rho_{\gamma}} \right) \right] \quad (1.3)$$

donde

$$K = \frac{\sum_{r=1}^n a_r \{1 - [(\alpha\varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma})/(1 + \alpha)]\}_r g_r}{\sum_{r=1}^n a_r \{\varepsilon_{\gamma}/(1 + \alpha) - \varepsilon_c\}_r g_r} \sum_{r=1}^n \frac{a_r \varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r}$$

De la Ec. (1.3) se observa que si K es independiente de la relación entre $\rho_{\beta\gamma}$ y ρ_{γ} , entonces, si K es constante, la relación entre $\frac{\rho_{\beta}\rho_{\gamma}}{\rho_{\beta\gamma}}$ y $\frac{1 - \rho_{\beta\gamma}/\rho_{\gamma}}{\rho_{\beta\gamma}/\rho_{\gamma}}$ es lineal. En consecuencia, A puede determinarse como la ordenada al origen de dicha relación. Este procedimiento se conoce como el *método de extrapolación*.

La validez de esta aproximación puede verificarse a partir de las ecuaciones del modelo ideal, donde la relación entre $\rho_{\beta\gamma}$ y ρ_{γ} tiende a ε_{β} cuando esta última se acerca a la unidad. Por lo tanto, al medir $\frac{\rho_{\beta}\rho_{\gamma}}{\rho_{\beta\gamma}}$, conocido como *actividad aparente*, y $\frac{\rho_{\beta\gamma}}{\rho_{\gamma}}$ en distintas condiciones de ε_{β} , es posible reproducir experimentalmente la Ec. (1.3).

La variación de ε_{β} puede lograrse mediante distintos métodos. Una opción es la adición de folias ultradelgadas de VYNS sobre la fuente de manera que limite o disminuya la energía de los electrones. Otra alternativa consiste en discriminar electrónicamente las señales de menor energía utilizando un discriminador de umbral o, en su defecto, excluir las señales del canal más bajo, estableciendo un límite inferior digital en el histograma de energías.

1.4 Método $4\pi\gamma$

Además del método de coincidencias, existe otro método primario basado en un sistema $4\pi\gamma$ [7–10]. Este sistema permite la detección integral de la radiación gamma emitida por una fuente radiactiva, optimizando la eficiencia de captura de los fotones en una configuración envolvente. Su implementación tiene como objetivo la determinación absoluta de la actividad de una muestra sin la necesidad de patrones de referencia.

El principio del método $4\pi\gamma$ consiste en utilizar un detector que rodea completamente la fuente radiactiva, de modo que se maximiza la probabilidad de detección de todos los fotones emitidos en el proceso de desintegración. Bajo estas condiciones, y conociendo el esquema de desintegración del radionucleido, es posible calcular la eficiencia total del sistema de detección mediante simulaciones Monte Carlo. A partir de la tasa de conteo medida y la eficiencia calculada, se puede determinar la actividad de la muestra mediante una relación directa entre ambas magnitudes. Un ejemplo típico de detector utilizado en esta configuración es un cristal de NaI(Tl) de tipo pozo, donde la fuente se introduce dentro de una cavidad en el detector, permitiendo una cobertura casi total (cercana a 4π) y, por lo tanto, una alta eficiencia de detección.

La eficiencia de conteo total corresponde a la probabilidad de que al menos una de las radiaciones emitidas durante la desintegración de un radionucleido sea detectada por el sistema. Esta eficiencia se puede calcular fácilmente considerando el caso complementario: la probabilidad de que ninguna de las radiaciones emitidas (partículas o fotones) sea detectada.

El radionucleido puede decaer emitiendo una partícula cargada (α , β^- , β^+) o rayos X (en el caso de captura electrónica), lo cual deja al núcleo hijo en un estado excitado (o, en algunos casos, directamente en el estado fundamental). La probabilidad de que el decaimiento conduzca a un cierto nivel excitado inicial del núcleo hijo se denota como P_p . Desde allí, el núcleo se desexcita hacia el estado fundamental mediante una o más transiciones electromagnéticas, formando lo que se conoce como una *cascada*.

Un sistema de detección que rodea completamente la fuente en una geometría 4π no es sensible a las correlaciones angulares entre las radiaciones emitidas. En este contexto, la probabilidad de detección específica del nucleido, ε_{tot} (que no debe confundirse con la eficiencia total para un solo fotón), se obtiene como la suma sobre todas las posibles vías de desexcitación (o *caminos*, *pathways*) de la probabilidad de que ese camino ocurra, multiplicada por la probabilidad de que al menos una de las radiaciones emitidas en dicho camino sea detectada [11]:

$$\varepsilon_{\text{tot}} = \sum_{\text{pathways}} \left[P_p \prod_{\text{cascade}} \frac{P_{ij}}{\sum_k P_{ik}} \right] \left[1 - (1 - \varepsilon_p) \prod_{\text{cascade}} (1 - \varepsilon_{ij}) \right]$$

donde P_p representa la probabilidad de que el radionucleido decaiga poblando el nivel

excitado más alto de una determinada vía de desexcitación. Un *camino* o *pathway* se define como una secuencia completa de transiciones desde ese nivel excitado hasta el estado fundamental. La fracción $\frac{P_{ij}}{\sum_k P_{ik}}$ es la probabilidad normalizada de que ocurra una transición del nivel i al nivel j , considerando todas las transiciones posibles desde i . El primer corchete en la ecuación representa la probabilidad de ocurrencia de un camino específico.

El segundo corchete representa la probabilidad de detección asociada a dicho camino, calculada como el complemento de la probabilidad de que ninguna de las radiaciones sea detectada: ni la inicialmente emitida (cuya probabilidad de detección es ε_p), ni ninguna de las correspondientes a las transiciones de la cascada (con probabilidades de detección ε_{ij} para cada transición $i \rightarrow j$). Aquí, ε_p incluye la detección de partículas cargadas, radiación de frenado y X primarios, mientras que ε_{ij} contempla la detección de fotones γ , electrones de conversión y rayos X asociados a las transiciones electromagnéticas.

Del espectro de energías gamma completo, se selecciona una energía de corte por debajo de la cual las señales no se cuentan (E_{th}), evitando así el ruido electrónico y eliminando la radiación de baja energía cuya eficiencia de detección es difícil de calcular. La radiación de bajas energías también se discrimina físicamente mediante una ventana del detector (por ejemplo, la carcasa de aluminio del cristal de centelleo). La eficiencia de conteo se calcula teniendo en cuenta los procesos de desintegración y la interacción de la radiación con la materia, ya sea analíticamente o por simulaciones Monte Carlo [12].

2 Diseño Experimental

2.1 Sistema de Coincidencias Digital $4\pi\beta$ - $4\pi\gamma$ (PS)

El sistema de coincidencias digital $4\pi\beta$ - $4\pi\gamma$ está conformado por dos detectores principales: un detector de partículas β basado en centelleo plástico y un detector de rayos γ de NaI(Tl) tipo pozo [13, 14]. Ambos detectores están integrados en una configuración 4π que permite la medición simultánea de partículas β y rayos γ emitidos por la fuente radiactiva. La Fig. 2.1 muestra un esquema de la configuración experimental.

El detector de partículas β consiste en dos cilindros de centellador plástico de 25 mm de diámetro y 8 mm de altura. La fuente radiactiva se prepara depositando una alícuota de la solución entre dos láminas de Mylar de $23\ \mu\text{m}$ de espesor, las cuales se colocan entre los dos cilindros centelladores. Este ensamblaje se monta sobre el photocátodo de un tubo fotomultiplicador (PMT) Hamamatsu R4125, que convierte la luz de centelleo en señales eléctricas. Para maximizar la eficiencia de detección y reducir las pérdidas de luz, el conjunto se encapsula en un cilindro de plástico pintado internamente con pintura reflectante de óxido de titanio.

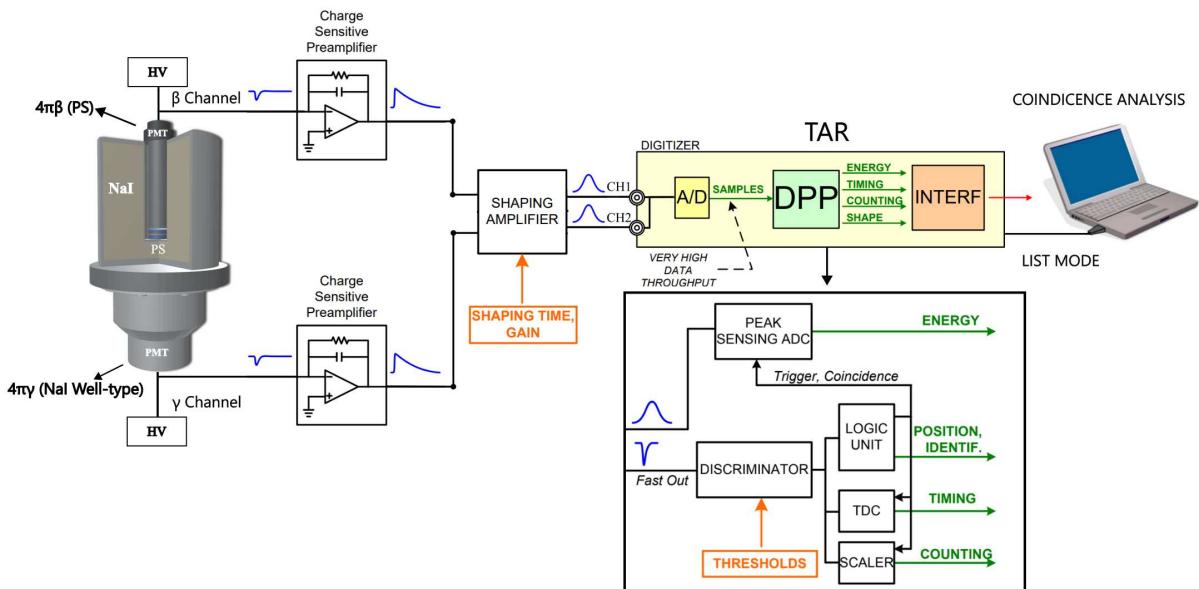


Figura 2.1: Esquema experimental del sistema de coincidencias $4\pi\beta$ - $4\pi\gamma$ (PS).

El detector de rayos γ es un cristal de NaI(Tl) de tipo pozo de 17.5×17.5 cm con

orificio coaxial de 31.5 mm de diámetro y 102.5 mm de altura (Fig. 2.2). El detector β , junto con la fuente radiactiva, se coloca dentro del pozo del detector de NaI(Tl), lo que permite una geometría 4π para la detección de rayos γ . Esta configuración asegura una alta eficiencia de detección tanto para partículas β como para rayos γ , lo que permite disminuir la incertidumbre en las mediciones.

Todo el sistema se encuentra dentro de un blindaje de plomo de 20 cm de espesor, diseñado para reducir el fondo causado por la radiación ambiental y minimizar la exposición del PMT a la luz externa, evitando así la generación de fondo adicional.



Figura 2.2: Configuración experimental del sistema de coincidencias $4\pi\beta$ - $4\pi\gamma$ (PS). (a) Electrónica utilizada para el procesamiento de señales. (b) Detector de NaI(Tl) de tipo pozo con blindaje de plomo de 20 cm de espesor. En el pozo central se halla el detector de emisiones β .

2.1.1 Detector β - Centellador Plástico

El detector de partículas β en este sistema está conformado por dos elementos principales, el centellador plástico y el tubo fotomultiplicador (PMT). Este detector se basa en el principio de centelleo, donde la energía depositada por las partículas β en el material centelleante se convierte en fotones en el rango del ultravioleta, los cuales son posteriormente transformados en señales eléctricas medibles mediante el PMT.

El centellador es un plástico orgánico compuesto por una matriz de poliestireno en la que se disuelven sustancias centelleantes orgánicas. Este tipo de centelleador se produce mediante la polimerización de estireno monómero, en el cual se incorporan moléculas fluorescentes que actúan como centros de emisión de luz [15]. El resultado es un material sólido y transparente, fácil de moldear en formas específicas, como los discos de 25 mm de diámetro y 8 mm de altura utilizados en este sistema. La Fig. 2.3 muestra un esquema del centellador plástico y su disposición en el sistema.

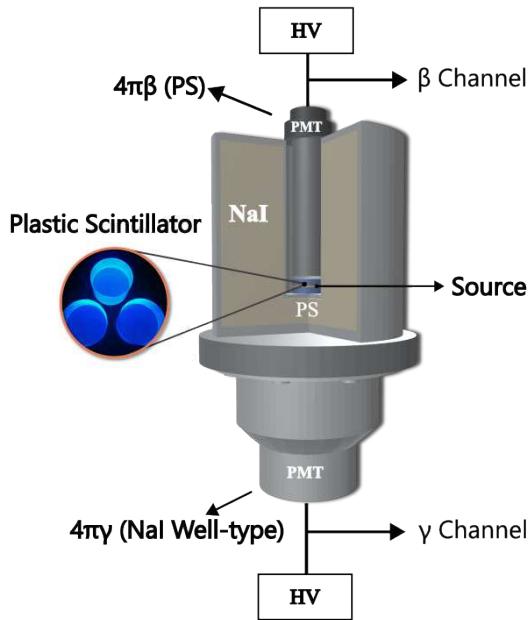


Figura 2.3: Configuración experimental del sistema de coincidencias $4\pi\beta$ - $4\pi\gamma$ (PS). La fuente radiactiva es encerrada dentro de dos discos de centellador plástico para la detección de emisiones β y todo a la vez se introduce en el interior de un detector de NaI(Tl) de tipo pozo para la detección de emisiones γ .

La idea fundamental detrás de la gran mayoría de los detectores de radiación, incluido este, es transformar la energía depositada por las partículas emitidas en un decaimiento radiactivo, en este caso electrones (β), en pulsos eléctricos medibles que puedan ser posteriormente digitalizados y procesados. Cuando una partícula β interactúa con el centellador, deposita energía en el material, excitando las moléculas del plástico. Estas moléculas, al desexcitarse, emiten fotones en el rango ultravioleta (UV) como resultado del proceso de centelleo. Sin embargo, solo una pequeña fracción de la energía cinética perdida por una partícula cargada en el centellador se convierte en fotones de fluorescencia, el resto se disipa de manera no radiativa, principalmente en forma de vibraciones de la red cristalina o calor [16]. La fracción de energía que se convierte en luz, conocida como eficiencia de centelleo, depende tanto del tipo de partícula como de su energía.

En centelladores orgánicos, la respuesta a electrones es lineal para energías superiores a aproximadamente 125 keV. Esto significa que la cantidad de luz emitida es directamente proporcional a la energía depositada por los electrones. Sin embargo, la respuesta a partículas pesadas, como protones o partículas alfa, es siempre menor para energías equivalentes y no lineal hasta energías iniciales mucho más altas. Por ejemplo, en la Fig. 2.4 se muestra la respuesta de centelleo de un centellador plástico típico. Para energías de unos pocos cientos de keV, la respuesta a protones es aproximadamente 10 veces menor que la de electrones de energía equivalente. A energías más altas, esta discrepancia disminuye, pero la respuesta a protones siempre permanece por debajo de la respuesta a electrones [16].

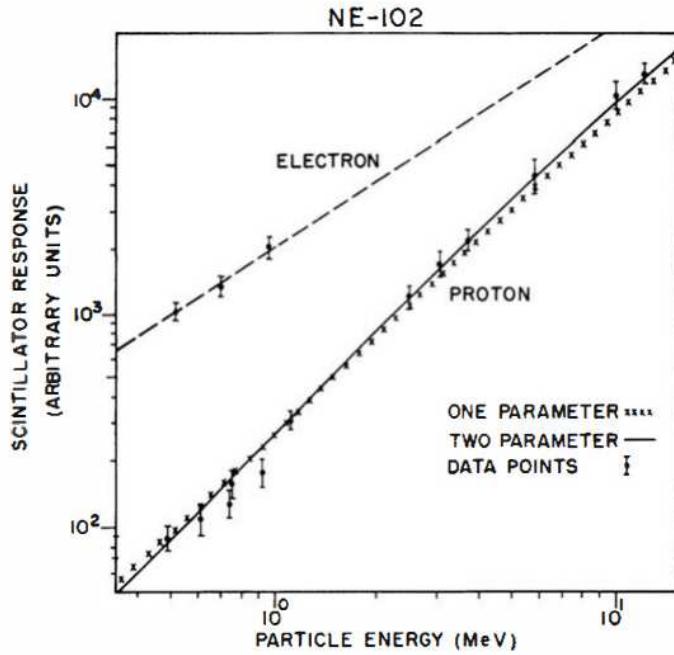


Figura 2.4: Rendimiento de luz de centelleo (*scintillation light yield*) en un centelleador plástico NE102A cuando es excitado por electrones y protones. La respuesta a electrones es lineal para energías superiores a 125 keV, mientras que la respuesta a protones es no lineal y significativamente menor para energías equivalentes [17].

La luz emitida por el centelleador es captada por el photocátodo del PMT Hamamatsu R4125. El photocátodo está compuesto por un material de bialcali verde extendido (*Green-Extended Bialkali*), que ofrece una mayor sensibilidad en la región verde del espectro en comparación con los photocátodos bialcali estándar. Este se encuentra montado sobre una ventana de vidrio de borosilicato y posee un diámetro activo de 18,6 mm (3/4’’), con una longitud total del tubo de 88 mm. Su rango de respuestapectral se extiende desde los 300 nm hasta los 650 nm, con una eficiencia cuántica máxima típica del 27 %. La sensibilidad catódica típica es de $115 \mu\text{A/lm}$ para luz visible y $11,0 \mu\text{A/lm}$ en la región azul.

El photocátodo convierte los fotones incidentes en electrones mediante el efecto fotoeléctrico. Estos electrones son acelerados hacia una serie de dinodos dentro del PMT, donde se produce una multiplicación en cascada debido al impacto de los electrones en cada dinodo. Este proceso, conocido como efecto de avalancha, amplifica la señal inicial en varios órdenes de magnitud, generando un pulso de corriente a la salida del PMT [16].

Para que ocurra el proceso de multiplicación de electrones, es necesario aplicar una alta diferencia de potencial entre los dinodos del PMT. Cada dinodo está a un voltaje más alto que el anterior, típicamente con una diferencia de potencial de entre 100 y 200 V. Esto crea un campo eléctrico que acelera los electrones liberados en el photocátodo hacia el primer dinodo. Cuando los electrones impactan en el dinodo, liberan electrones secundarios debido a la emisión secundaria. Estos electrones secundarios son acelerados hacia el

siguiente dinodo, donde el proceso se repite, generando una avalancha de electrones que amplifica la señal inicial. La Fig. 2.5 muestra un esquema del proceso de multiplicación de electrones en un PMT.

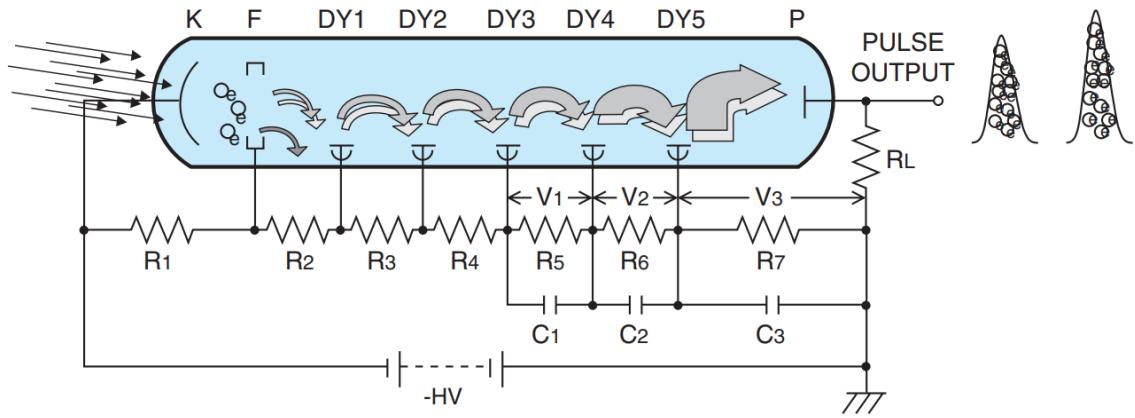


Figura 2.5: Esquema del tubo fotomultiplicador (PMT) utilizado en el sistema de coincidencias en configuración con ánodo a tierra. El divisor resistivo distribuye la tensión entre los dinodos para crear un campo eléctrico que permite la multiplicación en cascada de electrones, generando una señal amplificada en el ánodo.

El pulso de corriente generado en el PMT es proporcional a la energía depositada por la partícula β en el centellador plástico. Por lo tanto, la amplitud del pulso de salida del PMT proporciona una medida indirecta de la energía de la partícula β .

Los centelladores plásticos, como el NE102A, pueden experimentar degradación en su rendimiento cuando están expuestos a altos niveles de radiación. Este fenómeno puede manifestarse como una reducción en la emisión de luz debido a la destrucción de las moléculas fluorescentes o como una disminución en la transmisión de luz debido a la formación de centros de absorción óptica en el material. Sin embargo, en condiciones de uso típicas, como las de este sistema, la degradación es mínima y no afecta significativamente las mediciones.

2.1.2 Detector γ - NaI(Tl) Tipo Pozo

El detector γ utilizado en este sistema es un cristal de ioduro de sodio dopado con talio NaI(Tl) de tipo pozo, acoplado a un PMT. Este tipo de detector es uno de los más populares entre los detectores de centelleo sólido debido a su alta eficiencia intrínseca y su capacidad para detectar emisiones γ en un amplio rango de energías [16]. La Fig. 2.6 muestra un esquema del cristal de NaI(Tl) y su acoplamiento con el PMT.

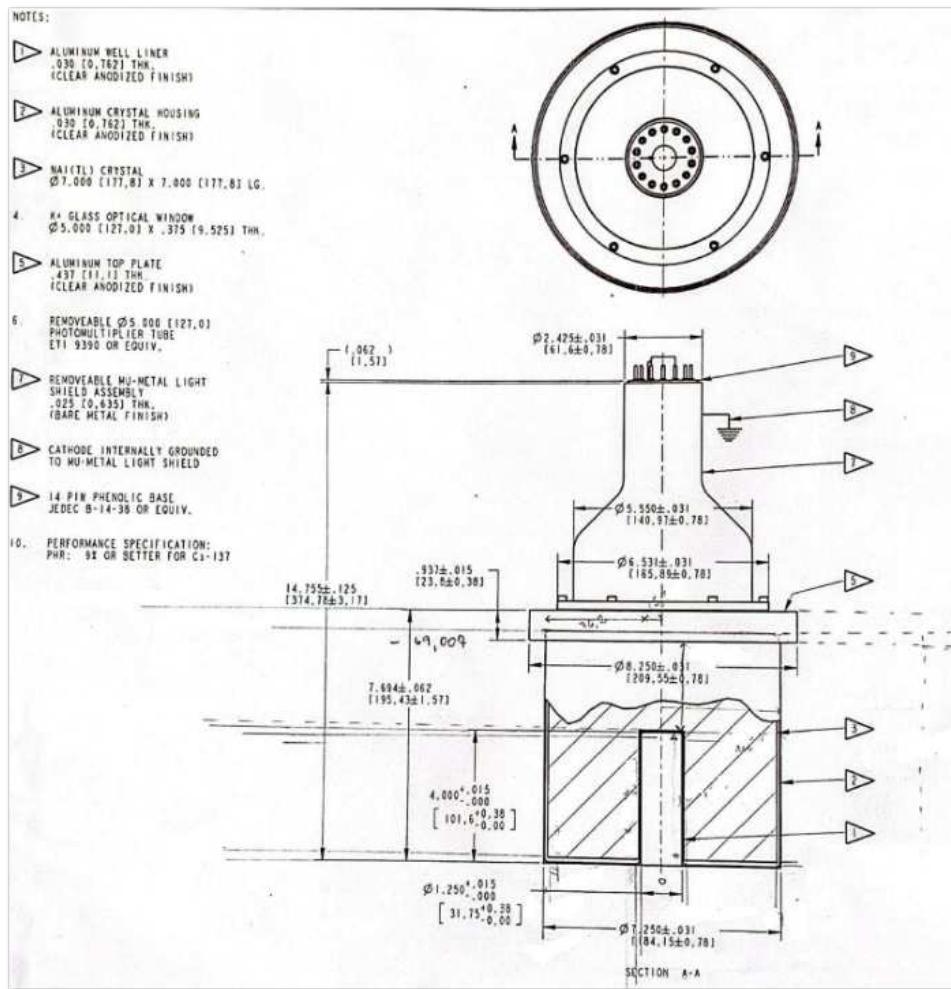


Figura 2.6: Esquema del detector NaI(Tl) tipo pozo utilizado en el sistema de coincidencias.

El cristal de NaI(Tl) está compuesto por una red cristalina de NaI con impurezas de talio (Tl) que actúan como centros de activación. La estructura de niveles electrónicos del NaI se ve modificada por la presencia del talio, creando niveles de energía intermedios entre la banda de valencia y la banda de conducción, conocida como banda prohibida. Cuando un fotón γ interactúa con el cristal, deposita energía en el material, generando pares electrón-hueco al excitar electrones desde la banda de valencia hacia la banda de conducción. Estos pares migran hacia los sitios donde se localizan las impurezas de talio, donde se produce la desexcitación a través de los niveles intermedios, emitiendo fotones en el rango visible. La Fig. 2.7 muestra el proceso de luminiscencia de un centellador inorgánico dopado con impurezas.

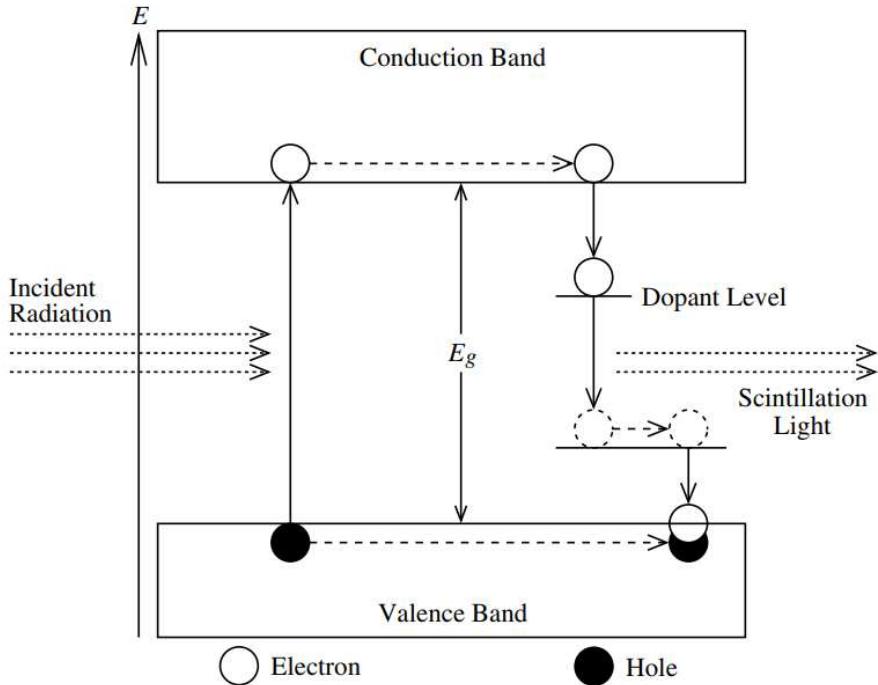


Figura 2.7: Principio de luminiscencia en un centelleador inorgánico dopado con impurezas como el NaI(Tl).

El rendimiento de luz de centelleo del NaI(Tl) es de aproximadamente 38000 fotones por MeV de energía depositada, lo que lo convierte en uno de los materiales de centelleo más brillantes disponibles [16].

Cuando un fotón γ penetra en el cristal de NaI(Tl), puede interactuar a través de tres mecanismos principales, efecto fotoeléctrico, dispersión Compton y creación de pares. En el efecto fotoeléctrico, el fotón γ transfiere toda su energía a un electrón de la red cristalina, que es expulsado de su órbita. En la dispersión Compton, el fotón γ transfiere solo una parte de su energía a un electrón, y el fotón dispersado puede escapar del cristal o interactuar nuevamente. Finalmente, en la creación de pares, que ocurre para fotones con energías superiores a 1022 keV, el fotón γ se convierte en un par electrón-positrón. El positrón se aniquila posteriormente, produciendo dos fotones de 511 keV cada uno. La Figura 2.8 ilustra estos procesos de interacción.

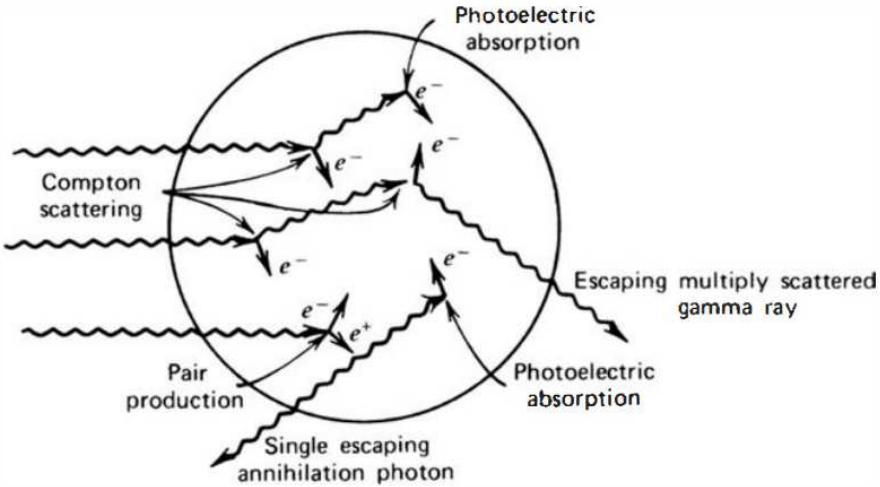


Figura 2.8: Procesos de interacción entre la radiación incidente y el material centellador.

Estos procesos generan picos en el espectro gamma que no reflejan directamente la energía del fotón incidente, como se muestra en la Fig. 2.9. Para energías por debajo del umbral de producción de pares ($h\nu < 1022$ keV), el continuo observado surge principalmente de eventos Compton donde los fotones dispersados escapan del detector, mientras que el pico de energía total incluye contribuciones tanto de absorción fotoeléctrica directa como de múltiples dispersiones Compton que finalizan en fotoeléctrico. Para energías superiores ($h\nu > 1022$ keV), aparecen los picos de escape simple ($h\nu - 511$ keV) y doble ($h\nu - 1022$ keV) cuando uno o ambos fotones de aniquilación producidos en la creación de pares abandonan el detector sin interactuar. Estos efectos son particularmente evidentes en detectores de tamaño intermedio como el NaI(Tl) de tipo pozo, donde la geometría afecta significativamente la probabilidad de escape de los fotones secundarios.

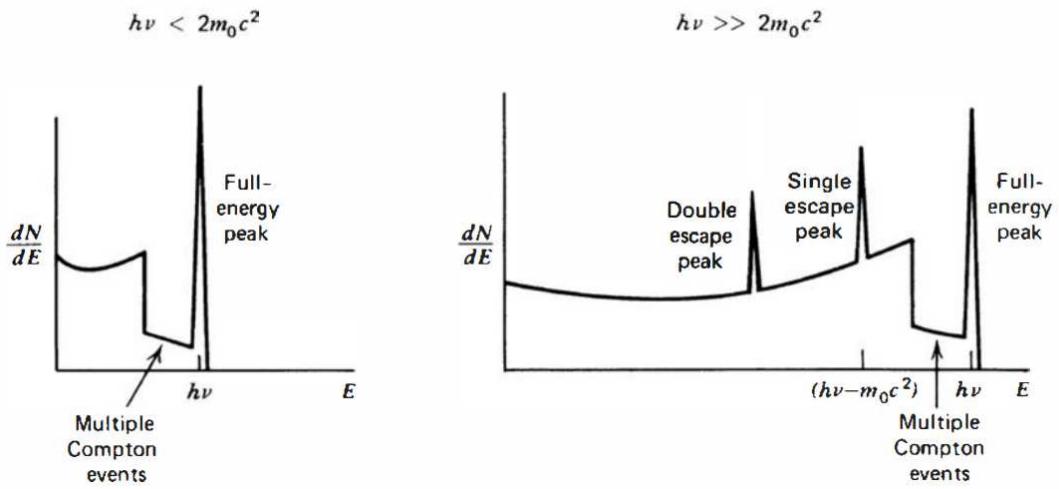


Figura 2.9: Procesos de interacción entre la radiación incidente y el material centellador.

Por otro lado, el rendimiento de luz de centelleo y el tiempo de decaimiento del NaI(Tl)

dependen de la temperatura de operación. A medida que la temperatura aumenta, el rendimiento de luz disminuye, lo que resulta en una resolución energética más pobre cuando el detector se opera a temperaturas elevadas. Estas variaciones en el rendimiento de luz se deben a los diferentes mecanismos de transporte de carga hacia los sitios de activación, que tienen dependencias de temperatura distintas. Para minimizar las variaciones en la amplitud del pulso debido a cambios de temperatura, se utilizan tiempos de conformación largos en la electrónica de procesamiento de señales, lo que permite integrar la mayor parte de la luz emitida. Además, durante las mediciones con este sistema, el recinto de operación se mantuvo a una temperatura ambiente por debajo de los 20 °C.

2.2 Sistema de Coincidencias $4\pi\gamma - \beta$ (Si)

Utilizando la configuración del detector NaI(Tl) de tipo pozo mencionado anteriormente, diseñamos otro sistema de coincidencias, en este caso $4\pi\gamma - \beta$, compuesto por un detector de barrera de superficie de silicio ORTEC modelo *B-Series* con 50 mm^2 de área activa. Este detector se introduce en el pozo del cristal de NaI(Tl) para detectar las emisiones β de la fuente radiactiva en una configuración 2π . El esquema de la configuración experimental del sistema completo de coincidencias $4\pi\gamma - \beta$ se presenta en la Fig. 2.10

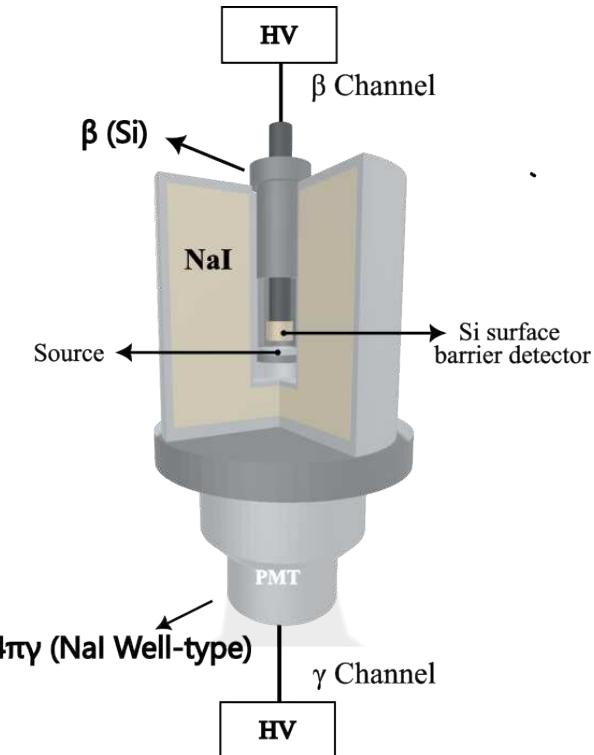


Figura 2.10: Diagrama del sistema $4\pi\gamma - \beta$ mostrando la disposición del detector de silicio dentro del pozo del NaI(Tl). La fuente se posiciona en un soporte impreso en 3D entre ambos detectores.

Para posicionar la fuente dentro del pozo se diseñó un soporte específico mediante impresión 3D que permite el acoplamiento preciso entre el detector de silicio y la fuente radiactiva, con la posibilidad además de regular la altura de posicionamiento del detector (Fig. 2.11). Esto garantiza la repetibilidad de las mediciones.

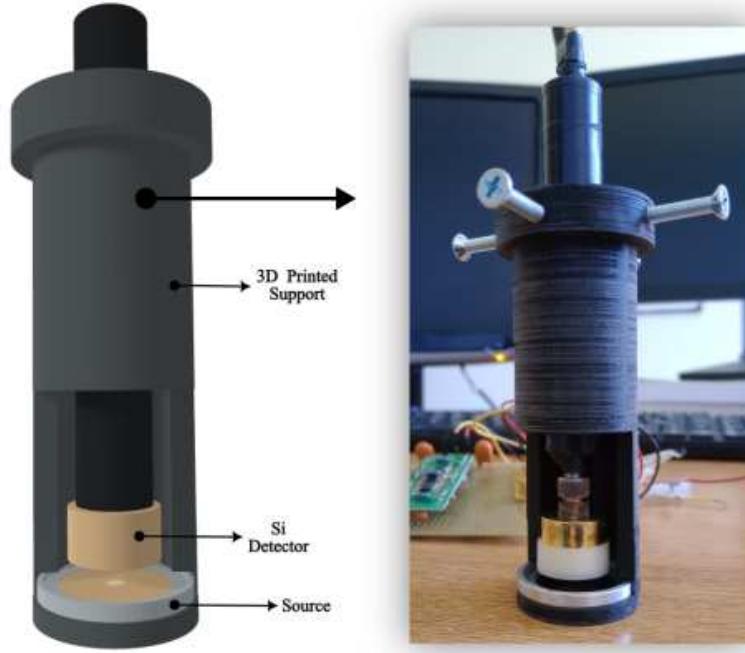


Figura 2.11: Dispositivo experimental utilizado para el sistema de coincidencias $4\pi\gamma - \beta$ (Si). El detector de silicio es ubicado en una configuración 2π respecto a la fuente radiactiva.

2.2.1 Detector β - Silicio

El detector de silicio empleado corresponde a la serie B de ORTEC, diseñado específicamente para espectroscopía de partículas cargadas. Estos detectores utilizan tecnología de barrera superficial con contactos de oro (lado frontal) y aluminio (lado posterior) sobre silicio tipo N, operando en modo de depleción parcial. Estos modelos de detector poseen un espesor activo que varía entre 100-500 μm (suficiente para detener electrones de hasta 1 MeV). La ventana frontal equivalente a 800 Å de silicio, minimiza las pérdidas de energía de las partículas β y el rango de temperatura de operación varía entre +25°C a -30°C. Los detectores de radiación basados en semiconductores consisten en una estructura de unión $p-n$, análoga a un diodo semiconductor convencional, pero optimizada para la detección de partículas ionizantes.

La región n se forma mediante el dopaje del semiconductor con impurezas donadoras, como fósforo, que introducen electrones adicionales en la red cristalina. Por el contrario, la región p se crea mediante dopaje con impurezas aceptoras, como indio, generando huecos en la estructura de bandas. En la interfaz entre estas regiones, conocida como unión $p-n$, se establece una zona de depleción (*depletion layer*) donde los portadores de

carga mayoritarios se recombinan, dejando un espacio desprovisto de portadores libres (Fig. 2.12).

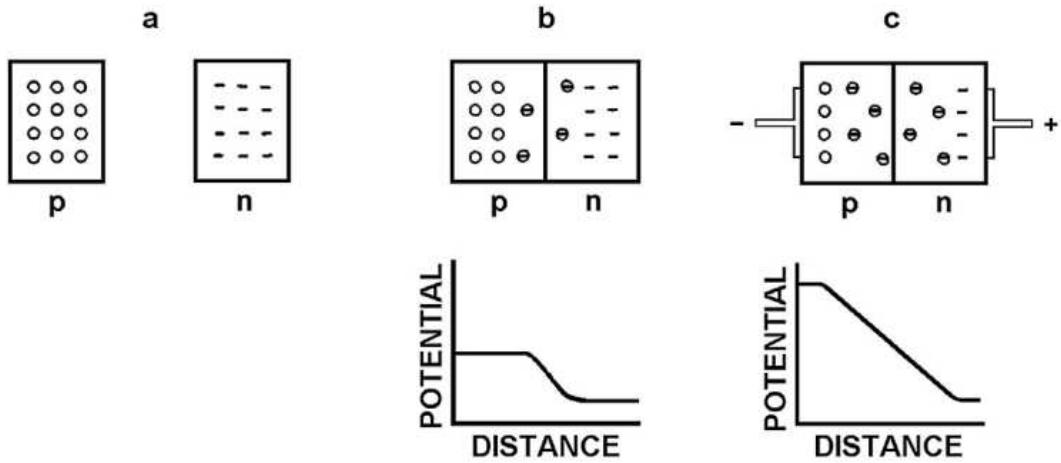


Figura 2.12: Formación y propiedades de una juntura tipo p-n en un semiconductor.

Al aplicar una polarización inversa al dispositivo, conectando el terminal negativo al material *p* y el positivo al material *n*, se incrementa tanto el ancho de la zona de agotamiento como la magnitud del campo eléctrico interno. Esta configuración produce un medio con alta resistividad eléctrica, ideal para la detección de radiación. Cuando una partícula ingresa en la zona de deplección, interacciona con el material semiconductor transfiriendo energía suficiente para excitar electrones desde la banda de valencia hasta la banda de conducción. Este proceso genera pares electrón-hueco, donde los electrones se mueven hacia el ánodo y los huecos migran hacia el cátodo bajo la influencia del campo eléctrico aplicado.

En particular, los detectores de barrera de superficie están formados por una oblea de silicio tipo p-n caracterizada por una capa de deplección relativamente delgada [18]. Se fabrica a partir de silicio tipo n, cuya superficie ha sido grabada antes de recubrirla con una fina capa de oro, mientras que la otra superficie se recubre con una fina capa de aluminio (40 mg/cm^2) para proporcionar contacto eléctrico.

Dependiendo de la tensión aplicada, el detector puede estar parcialmente depletado (con una capa de entrada inactiva), totalmente depletado (sin capa inactiva) o sobre-depletado (cuando el potencial aplicado es mayor al requerido para la deplección total). Su eficiencia y resolución están limitadas por el diámetro de la superficie sensible (área activa) y el rango de energía está determinado por el espesor de la capa de deplección. El tiempo de resolución es de aproximadamente 10^{-8} s . La resolución energética del sistema está dominada por el ruido electrónico (15-20 keV FWHM a temperatura ambiente) y los efectos estadísticos en la generación de pares electrón-hueco.

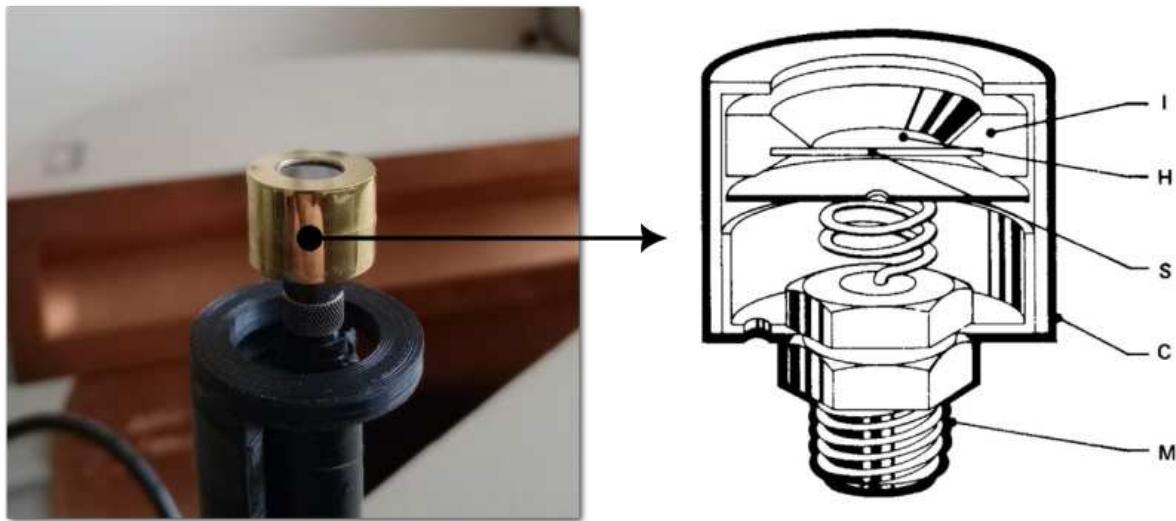


Figura 2.13: Detector de barrera de superficie de silicio ORTEC B-Series utilizado en el sistema. (S) Capa detectora, (H) capa superficial de oro, (M) conector Micro-dot.

2.3 Sistema de Adquisición y Procesamiento de Señales

Una vez depositada la energía de la partícula incidente en el detector, es necesario procesar el pulso eléctrico generado para obtener información acerca del tiempo de arribo de la partícula y la energía que tenía al momento de interactuar con el detector. En los sistemas de coincidencias que se utilizan en este trabajo se realiza un procesamiento digital de la señal, para luego poder aplicar diferentes métodos para la determinación de la actividad de la fuente radiactiva. Este acercamiento provee algunas ventajas por sobre los sistemas de procesamiento analógicos tradicionales que se suelen utilizar en las cadenas de espectrometría nuclear. A continuación se describen los diferentes elementos que componen la conformación y el procesado del pulso eléctrico generado en el detector.

2.3.1 Cadena de espectrometría tradicional

La cadena analógica tradicional para la lectura de señales de detectores de radiación nuclear (Fig. 2.14) se basa en tres dispositivos fundamentales: el Preamplificador Sensible a Carga (*Charge Sensitive Preamplifier*), el Amplificador de Forma (*Shaping Amplifier*) y el ADC de Detección de Pico (*Peak Sensing ADC*) [16, 19].

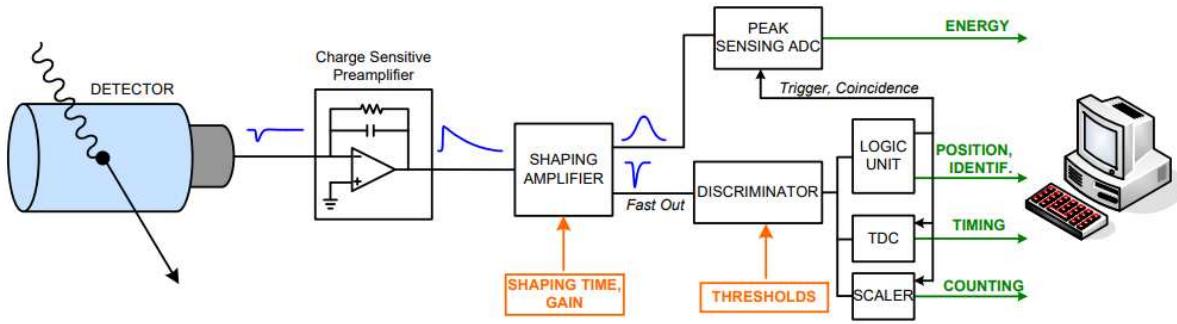


Figura 2.14: Procesamiento electrónico de la señal.

El Preamplificador Sensible a Carga (Fig. 2.15) integra la señal proveniente del detector, convirtiendo la carga recolectada en un pulso de tensión. Este circuito utiliza un capacitor de integración en paralelo con una resistencia de descarga, produciendo pulsos con dos características principales: un tiempo de subida rápido y una cola exponencial larga con tiempo de decaimiento τ , generalmente entre 50-100 μs . La información de carga, que es proporcional a la energía liberada por la partícula en el detector, queda representada por la altura del pulso. La relación carga-amplitud está determinada por el valor del capacitor según la expresión $V_{\text{OUT}} = Q/C$, mientras que el tiempo de decaimiento de la señal de salida viene dado por la constante $\tau = RC$, donde R es la resistencia de descarga y C la capacitancia de integración.

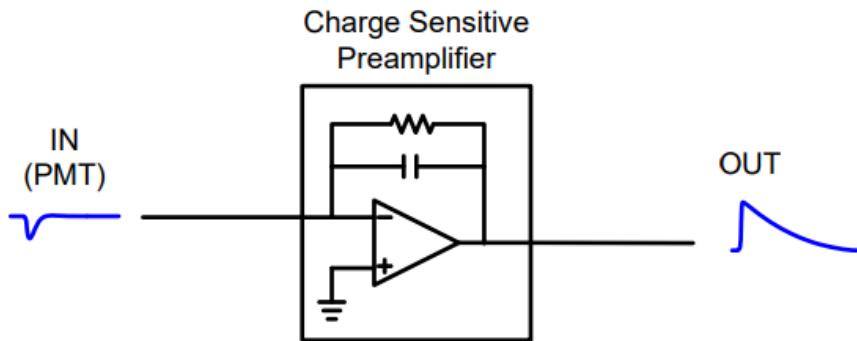


Figura 2.15: Esquema del preamplificador sensible a carga. A la salida se obtiene un pulso con tiempo de decaimiento de 50 μs .

Para garantizar una conversión carga-amplitud precisa y minimizar el ruido, τ debe ser mucho mayor que la duración de la señal del detector. Sin embargo, esta característica puede provocar apilamiento (*pile-up*) entre pulsos consecutivos cuando las detecciones de partículas están muy cercanas en tiempo (Fig. 2.16). Además, si el tiempo de subida de la señal es demasiado rápido, el ADC utilizado para la detección de picos podría no registrarla con la precisión requerida.

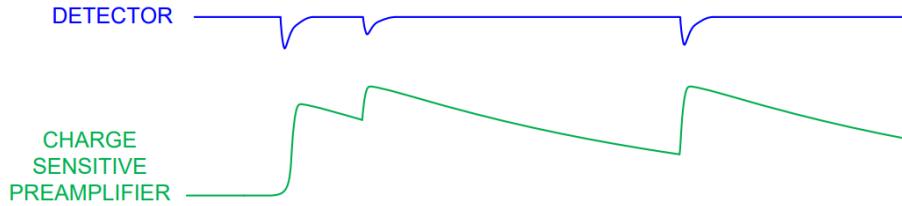


Figura 2.16: Apilamiento de las señales de salida del preamplificador para pulsos cercanos en el tiempo.

Para resolver estos problemas, la señal preamplificada se procesa en un Amplificador de Forma (*Shaping Amplifier*), que transforma la cola exponencial en un pulso cuasi-Gaussiano cuya amplitud sigue siendo proporcional a la energía depositada por la partícula. Esta señal conformada se envía al ADC de Detección de Pico, que digitaliza las alturas de los pulsos y las almacena en un histograma para reconstruir el espectro de energías.

Paralelamente, para preservar la información temporal, el flanco rápido de la señal (tiempo de subida) se procesa en un Amplificador Rápido (*Fast Amplifier* o *Timing Amplifier*), cuya salida suele derivarse a un discriminador (CFD), un TDC (*Time-to-Digital Converter*) y/o un escalímetro para adquirir datos de tiempo y conteo. En la Fig. 2.17 se muestran las formas de onda típicas de esta cadena analógica.

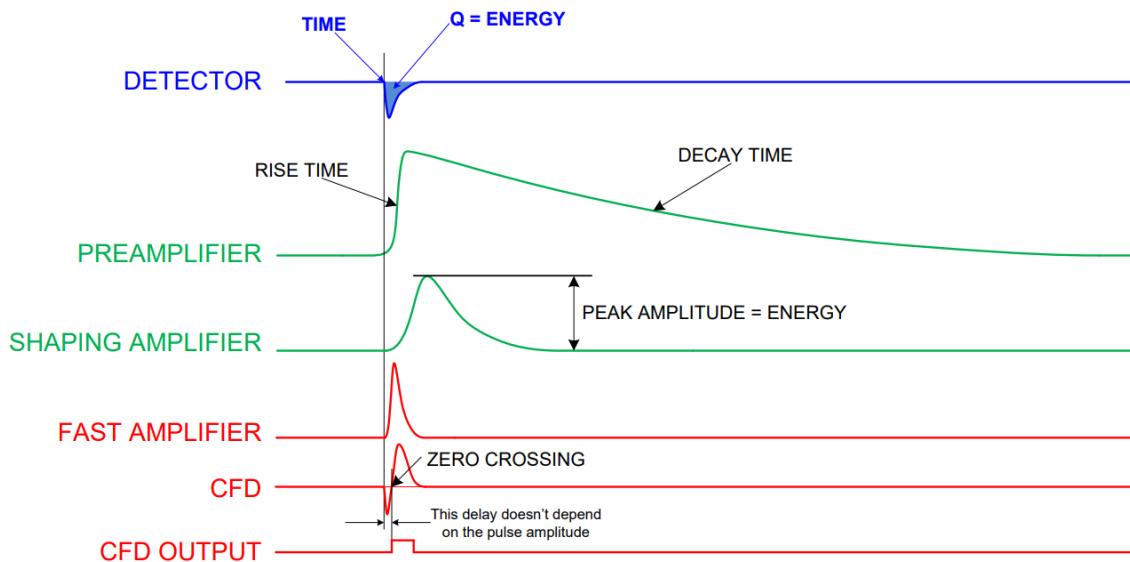


Figura 2.17: Forma de la señal a la salida de cada etapa de conformación del pulso en una cadena de procesamiento analógica.

Módulos adicionales pueden implementar lógicas de coincidencia (para determinar trayectorias y posiciones de partículas), generar *triggers* o analizar características del pulso (como tiempo por encima de umbral o cruce por cero) para identificación de partículas. En la práctica, el Amplificador Rápido suele integrarse dentro del módulo del Amplificador de Forma, proporcionando una salida independiente dedicada a temporización (*fast/timing output*).

2.3.2 Sistema de adquisición digital

En contraste con la cadena analógica tradicional, el sistema digital utilizado en este trabajo reemplaza múltiples módulos electrónicos (Amplificador de Forma, ADC de Detección de Pico, discriminadores, TDC, etc.) por un único digitalizador de alta velocidad denominado TAR (*Time and Amplitude Recorder*). Este módulo NIM (*Nuclear Instrumentation Module*) captura simultáneamente la amplitud y el tiempo de llegada de los pulsos, generando archivos binarios que contienen información sobre el arribo temporal del pulso (*timestamp*) con resolución de 10 ns y la altura del pulso digitalizada (16 bits por canal). La Fig. 2.18 muestra un esquema simplificado de esta cadena de procesamiento digital.

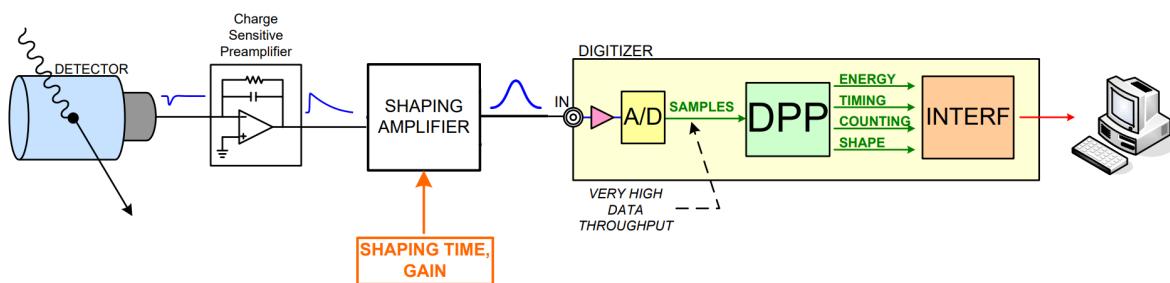


Figura 2.18: Procesamiento electrónico de la señal en una cadena de espectrometría digital.

El sistema *uls2002 TAR* implementa un ADC de 16 bits por canal, que compara iterativamente la señal con niveles de referencia hasta alcanzar la resolución máxima (2^{16} niveles). Los datos se almacenan temporalmente en un buffer SDRAM de 256 MB, mientras que un dispositivo basado en arquitectura programable FPGA controla los parámetros de adquisición. La interfaz USB 2.0 permite la transferencia de datos a la PC con los archivos binarios de salida del TAR. Luego, estos archivos se convierten en dos archivos ASCII con formato de dos columnas por canal a través del software *datafile_read* provisto por el fabricante. La primera columna registra el tiempo de arribo en unidades de 10 ns y la segunda, el valor digitalizado correspondiente al canal del ADC.

La ventaja de este enfoque digital radica en la posibilidad de realizar múltiples análisis posteriores (coincidencias, espectrometría, correlaciones temporales, extrapolación) sobre los mismos datos brutos, eliminando las limitaciones impuestas por configuraciones de hardware fijas. La arquitectura simplificada reduce componentes discretos (CFD, TDC, escalares) al emular sus funciones mediante software. La resolución temporal de 10 ns garantiza precisión en la determinación de tiempos de llegada.

La comunicación con el equipo se da a través de una interfaz gráfica de usuario *uls2002host* escrita en lenguaje C#, provista por el fabricante ULS-Korea. Este programa permite comenzar y detener las mediciones y visualizar los espectros de cada canal a partir de los datos almacenados en el buffer. En la Fig. 2.19 se muestra la interfaz gráfica de usuario utilizada para adquirir y visualizar los datos.

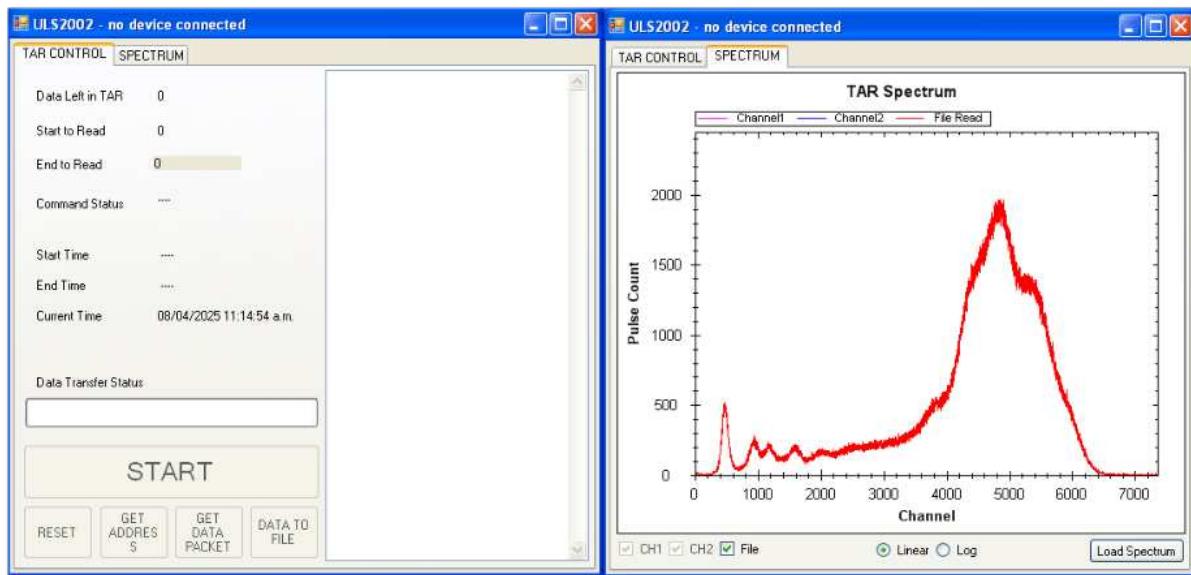


Figura 2.19: Interfaz gráfica de usuario del dispositivo de adquisición TAR.

3 Desarrollo de Software y Análisis de Datos

Para este trabajo, desarrollamos un programa en Python para llevar a cabo el análisis de los datos adquiridos con el sistema de coincidencias digital. Este programa representa una nueva versión del software DCC (*Digital Coincidence Counting*), originalmente desarrollado en MATLAB® y utilizado actualmente en el LMR para el análisis de datos en los sistemas de coincidencias [20]. El nuevo software, denominado DCC2, conserva la funcionalidad esencial del programa original, pero introduce mejoras significativas en términos de eficiencia computacional, flexibilidad y facilidad de uso.

El programa DCC2 toma como entrada los archivos de salida generados por el dispositivo de adquisición TAR, los cuales contienen la información de los canales β y γ . Estos archivos tienen una estructura de dos columnas, la primera columna registra el tiempo de llegada de cada pulso, en unidades de decenas de nanosegundos, y la segunda columna indica el canal correspondiente. A partir de estos datos, el programa realiza un análisis completo que incluye la selección de ventanas de energía gamma, el barrido en eficiencias en el canal β , la corrección por el retraso temporal de pulsos entre canales, las correcciones por tiempo muerto, la identificación de coincidencias genuinas y la aplicación del método de extrapolación.

El código fue reescrito y optimizado en Python para mejorar la eficiencia en los cálculos, especialmente en lo que respecta al manejo de grandes volúmenes de datos y la aplicación de correcciones. Además, desarrollamos una interfaz gráfica de usuario (GUI) que permite a los usuarios modificar los parámetros de análisis de manera intuitiva, visualizar los espectros adquiridos y seleccionar las ventanas de energía para el canal γ . Esta interfaz facilita el proceso de ajuste y validación de los datos antes de realizar el análisis final.

Se incluyó además en el programa y en la interfaz gráfica la posibilidad de realizar análisis de conteo por el método $4\pi\gamma$, incluyendo la visualización del espectro y la corrección por conteo de fondo.

En las siguientes secciones se describen en detalle las características y funcionalidades específicas del software DCC2, así como otras herramientas desarrolladas para la

aplicación del método $4\pi\gamma$ sobre los datos obtenidos.

3.1 Módulo Spectra

La primera sección de la interfaz gráfica, denominada “*Spectra*” permite visualizar los datos adquiridos por el sistema TAR y establecer los parámetros iniciales para el procesamiento posterior (Fig. 3.1). Al cargar los archivos de salida del digitalizador, el programa muestra los espectros correspondientes a los canales beta (β) y gamma (γ). Al mismo tiempo, se almacenan en variables globales todos los archivos con los datos de ambos canales y el fondo de medición. Esto permite, a diferencia de la versión anterior del programa, poder ajustar los parámetros del análisis, sin la necesidad de tener que cargar los archivos cada vez que se modifiquen. Al mismo tiempo, al cargar los archivos, el programa calcula el tiempo de retraso entre ambos canales (*delay*), haciendo un histograma de retardos y quedándose con el valor más probable de la distribución.



Figura 3.1: Interfaz de la ventana “Spectra” mostrando los espectros β (izquierda) y γ (derecha) con los controles interactivos para la selección del rango de eficiencia y la ventana de energía gamma.

Esta visualización facilita una inspección cualitativa inicial de los datos, permitiendo identificar posibles anomalías, ruido o regiones de interés dentro de los espectros. La interfaz está diseñada para que el usuario pueda interactuar directamente con las gráficas, ajustando los rangos de energía que definirán el análisis posterior.

En el caso del espectro beta, la herramienta permite delimitar la región válida para el barrido de eficiencias. Esto se realiza mediante dos parámetros, el umbral inferior *Beta Range Start*, que establece el límite mínimo a partir del cual los pulsos serán considerados

en el cálculo, y el umbral superior *Beta Range End*, que determina el límite superior en el barrido de eficiencias. Estos valores definen la ventana en la que se evaluará la variación de eficiencia durante el proceso de extrapolación.

Por otro lado, para el espectro gamma, la interfaz ofrece controles interactivos que permiten seleccionar la ventana de energías gamma que se utilizará en los cálculos de coincidencias. El usuario puede ajustar tanto el límite inferior (*Lower Gate*) como el límite superior (*Upper Gate*) mediante *sliders* o pudiendo ingresar el valor del canal correspondiente, lo que proporciona flexibilidad para adaptar el análisis a diferentes condiciones experimentales. Esta selección determina qué pulsos gamma se emparejarán con los beta para discriminar entre coincidencias.

3.2 Módulo DCC2

La pestaña DCC2 (Fig. 3.2) es el módulo central para el análisis mediante el método de extrapolación, donde se establecen todos los parámetros necesarios para el procesamiento final de los datos.

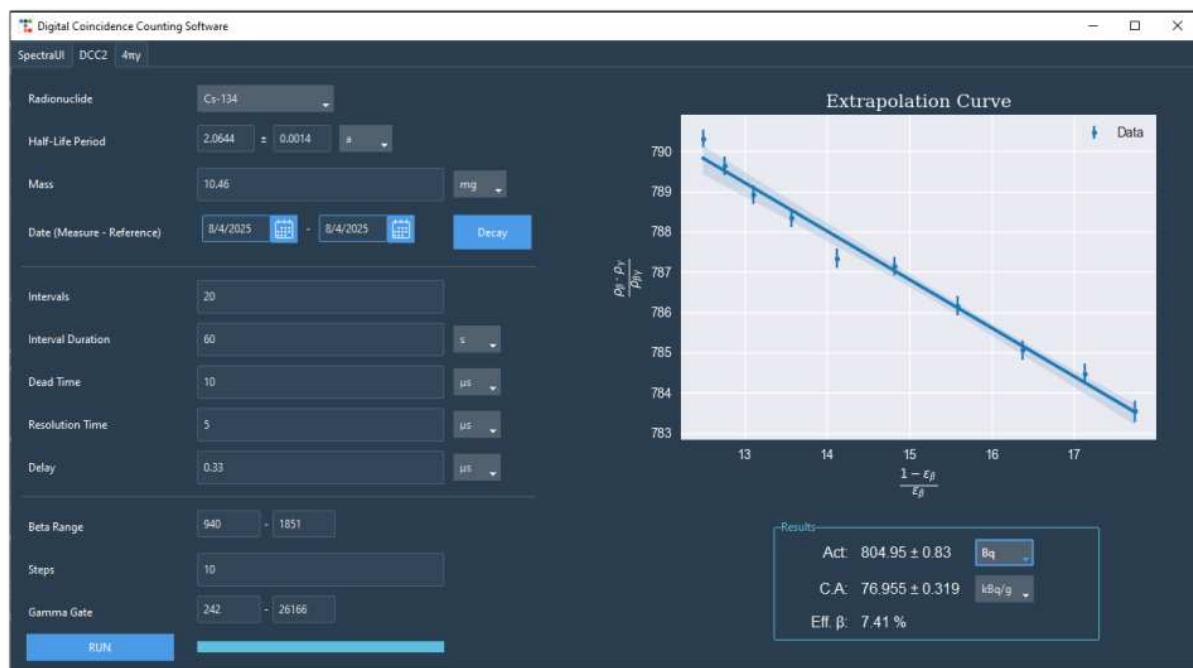


Figura 3.2: Interfaz de la pestaña DCC2 mostrando los parámetros descritos. Los valores numéricos corresponden a un caso de ejemplo con ^{134}Cs .

Este calcula no solo la actividad absoluta mediante el método de coincidencias, sino también la concentración de actividad basada en la masa ingresada, aplicando simultáneamente todas las correcciones configuradas (tiempo muerto, retardos temporales y decaimiento cuando corresponde). En el Apéndice C se describe el procedimiento de uso de la pestaña DCC2.

Los resultados se presentan en la interfaz, incluyendo gráficos de extrapolación y los valores finales de actividad con sus respectivas incertidumbres. En la Fig. 3.3 se muestra el diagrama de flujo del programa DCC2.

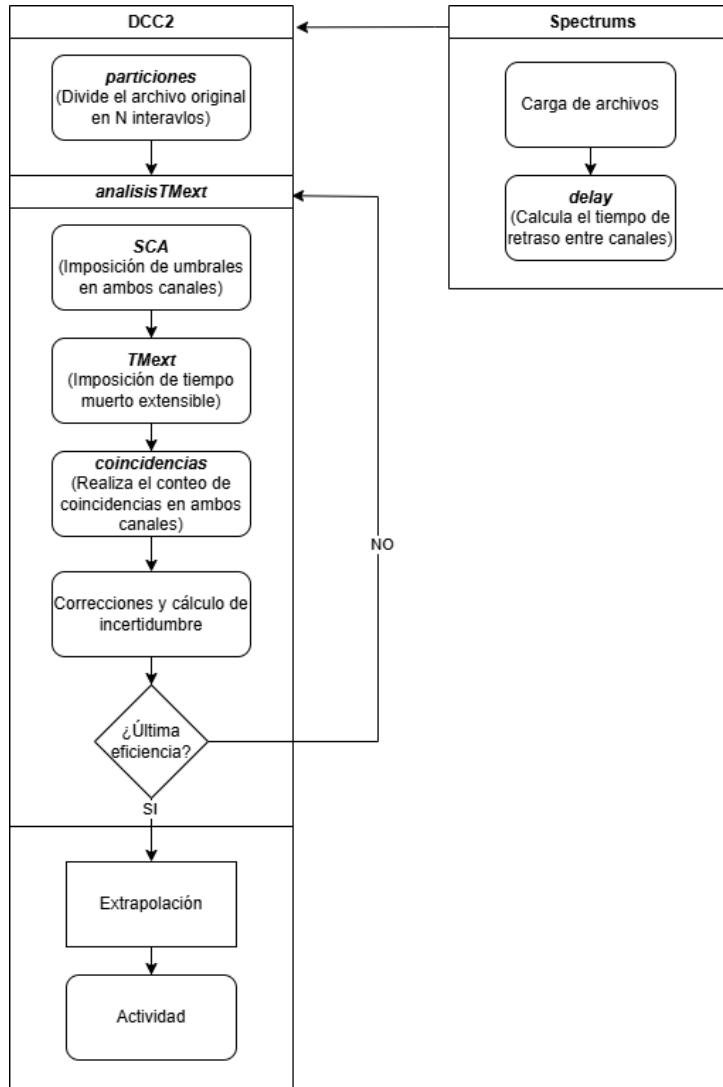


Figura 3.3: Diagrama de flujo del programa DCC2.

El análisis se inicia con la lectura de los archivos (*.txt*) de fondo y de medición en cada canal. Al cargar los datos se ejecuta automáticamente la subrutina `delay` que calcula el tiempo de retraso entre ambos canales a partir del histograma de retrasos. Luego, la subrutina `particiones` realiza la partición de los archivos de cada canal en N intervalos de tiempo T , ambos predefinidos en los campos *Intervals* y *Duration Time* de la interfaz gráfica. Esta rutina procesa línea por línea los datos de tiempo de arribo de pulsos, deteniéndose cuando el tiempo acumulado supera la duración del intervalo especificado en la configuración. Durante este proceso, se almacenan tanto los tiempos de llegada como las amplitudes de todos los pulsos que cumplen con los criterios iniciales de validación.

La rutina `SCA` (*Single Channel Analyzer*) ejecuta un filtrado en dos dimensiones. Para el canal γ , aplica un filtro que solo permite el paso de pulsos cuyas amplitudes se

encuentren dentro de la ventana energía gamma definida en la pestaña **SpectraUI**. Paralelamente, para el canal β , implementa un umbral inferior que se ajusta automáticamente según el paso actual del barrido de eficiencias.

En sistemas reales, no todos los pulsos generados por los detectores pueden ser procesados debido a limitaciones temporales del sistema de adquisición. A este intervalo en el que el sistema no puede registrar nuevos eventos se lo denomina *tiempo muerto*, y su correcta consideración es esencial para obtener tasas de conteo precisas. El sistema incorpora la posibilidad de corrección por tiempo muerto a través de las subrutinas **TMext** (extensible) y **TMnoext** (no extensible). La diferencia esencial entre ambos modelos radica en el comportamiento frente a pulsos sucesivos: mientras el modelo extensible (*paralyzable*) reinicia el período de tiempo muerto con cualquier pulso -incluyendo aquellos que son descartados-, el modelo no extensible (*nonparalyzable*) solo considera los pulsos que efectivamente superan el intervalo de tiempo muerto establecido (Fig. 3.4) [16]. Esta distinción es significativa en regímenes de alta tasa de conteo.

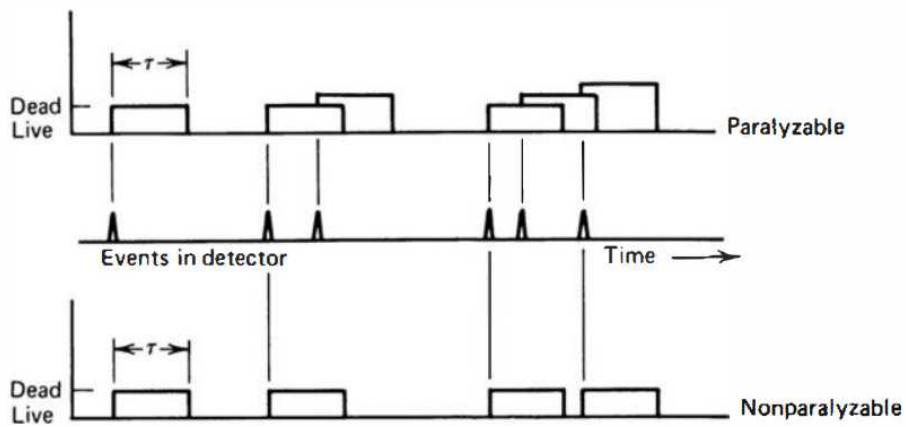


Figura 3.4: Esquema de los distintos tipos de tiempo muerto. En la parte superior se muestra el procesado de pulsos cuando el tiempo muerto es extensible, y en la parte inferior cuando es no-extensible.

El conteo de coincidencias se realiza mediante la subrutina **coincidencias**, que analiza si cada pulso del canal γ se encuentra dentro de un intervalo temporal centrado en algún pulso del canal β . Esta ventana considera tanto el tiempo de resolución como el delay entre canales a fin de evitar la disminución en el conteo de coincidencias genuinas por causa del retraso temporal entre las señales β y γ [21, 22].

El análisis principal se implementa mediante un proceso iterativo que ejecuta para cada umbral de energía β la rutina **analisisTMext**. Esta rutina realiza las operaciones mencionadas anteriormente, primero aplica los filtros SCA para ambos canales, luego procesa los pulsos válidos a través del algoritmo de tiempo muerto extensible, y finalmente calcula los conteos individuales (N_β , N_γ) y en coincidencia (N_c) para cada subintervalo temporal definido. Como resultado de este procesamiento, obtiene las tasas de conteo corregidas ρ_β , ρ_γ y $\rho_{\beta\gamma}$, promediando sobre todos los intervalos. Este ciclo se repite sis-

temáticamente hasta alcanzar el último umbral de energía β configurado, completando así el barrido en eficiencias.

La etapa final del algoritmo aplica las correcciones de Müller para tiempo muerto extensible, que consideran los efectos no lineales en las tasas de conteo medidas [23]. Estas ecuaciones fundamentales son:

$$\rho_\beta = R_\beta \cdot e^{-R_\beta \tau_m}$$

$$\rho_\gamma = R_\gamma \cdot e^{-R_\gamma \tau_m}$$

$$\begin{aligned} \rho_c = & \frac{\rho_\beta R_\gamma}{R_c} \cdot e^{(R_c - R_\gamma) \tau_m} \left(1 - e^{-R_c(t_r - \delta)}\right) \\ & + \frac{\rho_\gamma R_\beta}{R_c} \cdot e^{-R_\beta \tau_m} \left(1 - e^{-R_c(t_r + \delta)}\right) \\ & + R_c \cdot e^{(R_c - R_\beta - R_\gamma) \tau_m} \end{aligned}$$

donde $\rho_{\beta,\gamma,c}$ representan las tasas de conteo medidas, $R_{\beta,\gamma,c}$ corresponden a las tasas de conteo reales, τ_m es el tiempo muerto del sistema, t_r el tiempo de resolución y δ el retraso temporal (*delay*) entre señales β y γ . Estas ecuaciones son trascendentes, por lo tanto el programa implementa un método numérico iterativo para su resolución.

Al finalizar, la subrutina *análisis* calcula las incertidumbres σ_y y σ_x de las expresiones $\frac{\rho_\beta \rho_\gamma}{\rho_{\beta\gamma}}$ y $\frac{1 - \rho_{\beta\gamma}/\rho_\gamma}{\rho_{\beta\gamma}/\rho_\gamma}$ respectivamente, las cuales representan las ordenadas y las abscisas del gráfico de extrapolación.

Al finalizar el ciclo del barrido de eficiencias, el programa utiliza las incertidumbres σ_y para aplicar el método de cuadrados mínimos con el peso

$$W_i = \frac{1}{\sigma_{y,i}^2},$$

donde el índice i indica cada condición de eficiencia. Este ajuste ponderado permite obtener una recta del tipo $y = mx + b$, donde la ordenada al origen b representa la actividad de la fuente en el momento de la medición (Ec. 1.3).

Sin embargo, este enfoque solo considera las incertidumbres en y , ignorando posibles errores en x . Para contemplar los errores en x , se implementa el criterio de Deming, que contempla errores en ambas variables mediante la introducción de una incertidumbre efectiva (σ_{eff}):

$$\sigma_{\text{eff}} = \sqrt{\sigma_y^2 + (m \sigma_x)^2},$$

donde m es la pendiente de la recta ajustada, y σ_x es la incertidumbre asociada a cada

valor de x . Este valor de σ_{eff} se utiliza como nueva ponderación en el ajuste por mínimos cuadrados, permitiendo una estimación más precisa de los parámetros cuando ambos ejes poseen errores significativos.

En la implementación realizada en el código, este método se aplica de manera iterativa. Se comienza con un ajuste inicial utilizando únicamente σ_y , obteniendo así un valor preliminar de la pendiente m . Luego, se calculan las nuevas incertidumbres efectivas σ_{eff} para cada punto, y se repite el ajuste utilizando estas nuevas incertidumbres como pesos. Este procedimiento se repite un número fijo de veces (por ejemplo, cinco iteraciones), actualizando m en cada paso. El proceso converge rápidamente, refinando la estimación de los parámetros del ajuste y, en particular, de la ordenada al origen. El valor final de b obtenido tras este proceso representa la actividad extrapolada, y su incertidumbre se estima a partir de la matriz de covarianza del último ajuste.

3.3 Módulo $4\pi\gamma$

El módulo $4\pi\gamma$ (Fig. 3.5) permite aplicar el método $4\pi\gamma$ para determinar la actividad de la fuente a partir del espectro gamma adquirido con el dispositivo TAR. En la interfaz gráfica se pueden visualizar los espectros de fuente y fondo, con controles interactivos para seleccionar los umbrales de energía, incluyendo E_{th} para la extrapolación a energía cero (Ec. 3.3) y el umbral superior para discriminar pulsos de saturación. Un selector de radionucleidos permite cargar automáticamente los tiempos de vida media desde una base de datos interna. Para el cálculo de concentración de actividad, la interfaz incluye un campo que permite ingresar la masa de la fuente radiactiva. Luego, dos entradas de fecha, medición y referencia, habilitan el cálculo de decaimiento radiactivo entre ambos puntos temporales, función que se ejecuta mediante el botón **Decay** una vez completado el análisis principal. Por último, se ingresan los parámetros de tiempo muerto de medición y la eficiencia total del sistema simulada por métodos Monte Carlo mediante el software PENELOPE [24]. El cálculo de eficiencias se describe en la Sec. 5.

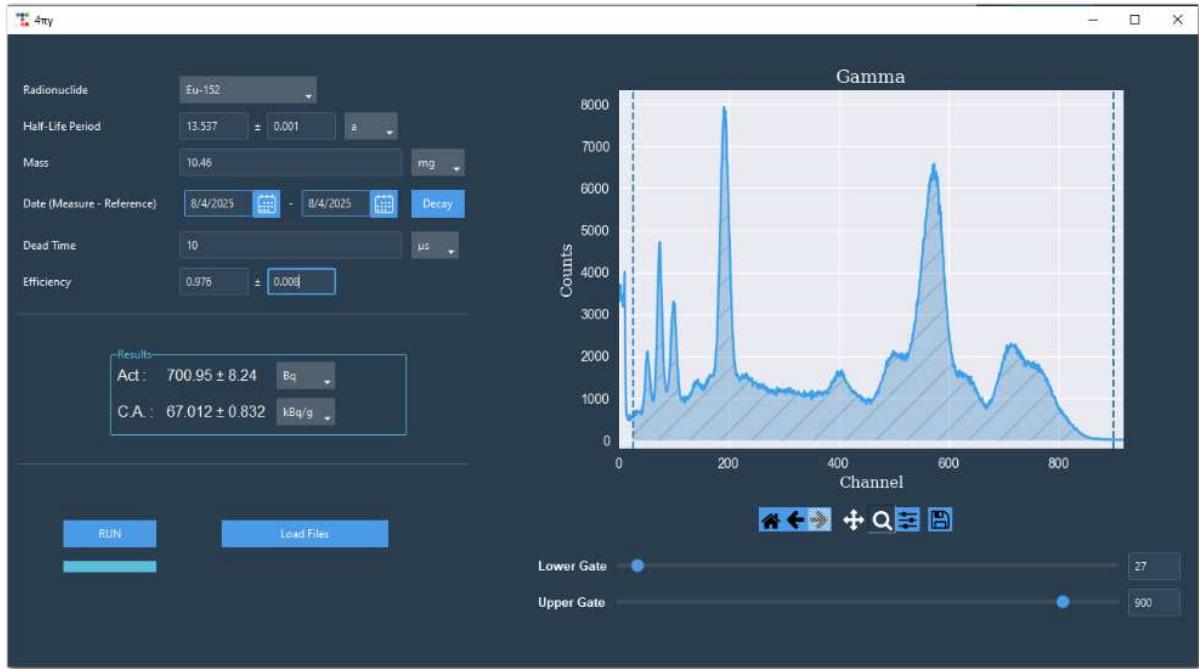


Figura 3.5: Interfaz gráfica de usuario del programa $4\pi\gamma$.

El programa realiza el cálculo de actividad y de concentración de actividad (C_A) implementando la ecuación:

$$C_A = \frac{1}{m} C_{dec} C_{ext} \frac{(R - B)}{\epsilon_{tot}}$$

donde m es la masa de la alícuota de solución radiactiva depositada, R la tasa de conteo corregida por efectos de tiempo muerto extensible mediante el formalismo de Müller, B la tasa de fondo medida en condiciones idénticas, C_{dec} el factor de decaimiento entre fechas de referencia y medición, C_{ext} la corrección por extrapolación a energía cero y ϵ_{tot} la eficiencia total calculada considerando todas las ramas de decaimiento [23].

La corrección por pérdidas subumbral (C_{ext}) se calcula mediante:

$$C_{ext} = 1 + \frac{S_0^{E_{th}}}{S_{E>E_{th}}}$$

donde $S_0^{E_{th}}$ representa el conteo integrado bajo el umbral de detección (estimado asumiendo forma espectral plana en la región de Compton), y $S_{E>E_{th}}$ el conteo experimental sobre el umbral seleccionado. Una vez terminado, se muestran los resultados de actividad y concentración de actividad en kBq y kBq/g respectivamente.

4 Mediciones y Resultados Experimentales

4.1 Estandarización de ^{133}Ba

Para validar los sistemas de coincidencias utilizados en este trabajo, se comenzó con la medición de fuentes radiactivas de ^{133}Ba previamente estandarizadas mediante métodos primarios como, $4\pi\gamma$, método pico-suma y coincidencias X- γ . Estas fuentes, etiquetadas como F23-22, F24-22 y F25-22, fueron preparadas a partir de una solución de concentración de actividad conocida y representan un punto de referencia confiable para la validación del sistema.

El ^{133}Ba es un radionuclido que decae exclusivamente mediante captura electrónica (EC) a estados excitados del ^{133}Cs , seguido de la emisión de rayos gamma y electrones de conversión interna. Su esquema de decaimiento es complejo (Fig. 4.1), con múltiples transiciones gamma en el rango de 50 keV a 400 keV, lo que lo convierte en una fuente de referencia importante para la calibración en bajas energías en sistemas de espectrometría gamma [25].

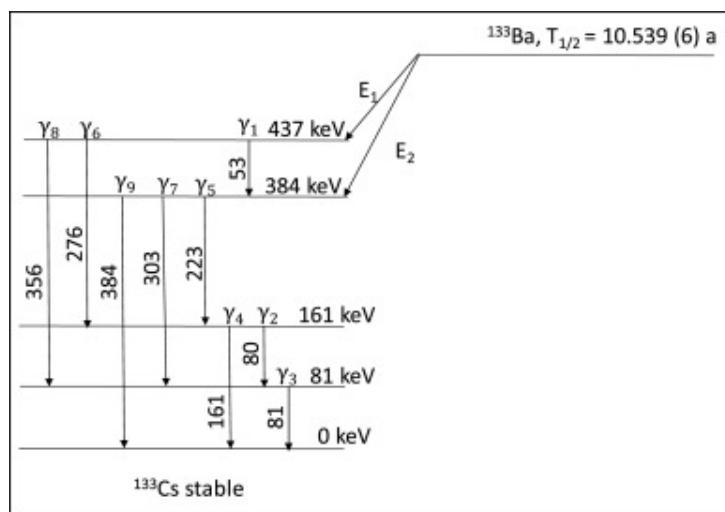


Figura 4.1: Esquema de decaimiento del ^{133}Ba .

Sin embargo, su estandarización mediante técnicas de coincidencia $4\pi\beta - \gamma$ presenta

desafíos debido a la baja eficiencia de detección de rayos X y electrones Auger en el canal beta, así como a la alta conversión interna de las transiciones gamma de baja energía [26, 27].

Para las mediciones, se utilizaron los dos sistemas de coincidencias digitales $\beta - \gamma$, descritos en la Sec. 2. El primer sistema usa un detector de centelleo plástico en configuración 4π para el canal β , mientras que el segundo sistema utiliza un detector de barrera de superficie de silicio en configuración 2π . Ambos sistemas comparten el mismo detector gamma de NaI(Tl) tipo pozo. El espectro de energías gamma del ^{133}Ba , obtenido con el detector de NaI(Tl), se muestra en la Fig. 4.2.

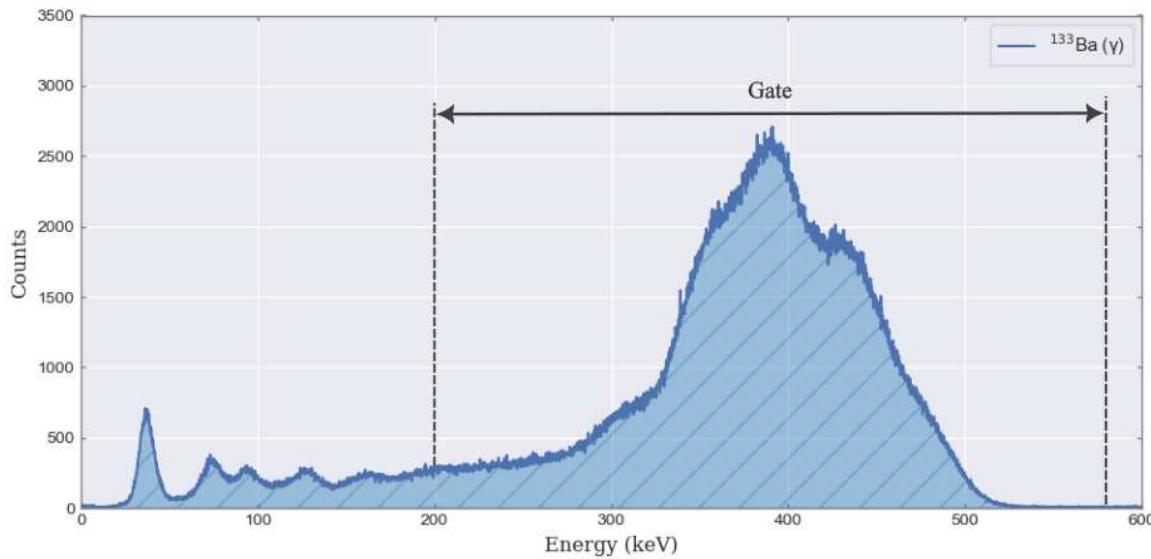


Figura 4.2: Espectro del canal γ de ^{133}Ba obtenido con un detector de NaI(Tl) tipo pozo.

4.1.1 $4\pi\beta - 4\pi\gamma$ (PS)

Utilizando el sistema de coincidencias basado en centelleo plástico para el canal beta, se aplicó el método de extrapolación. El espectro obtenido en el canal β se muestra en la Fig. 4.3.

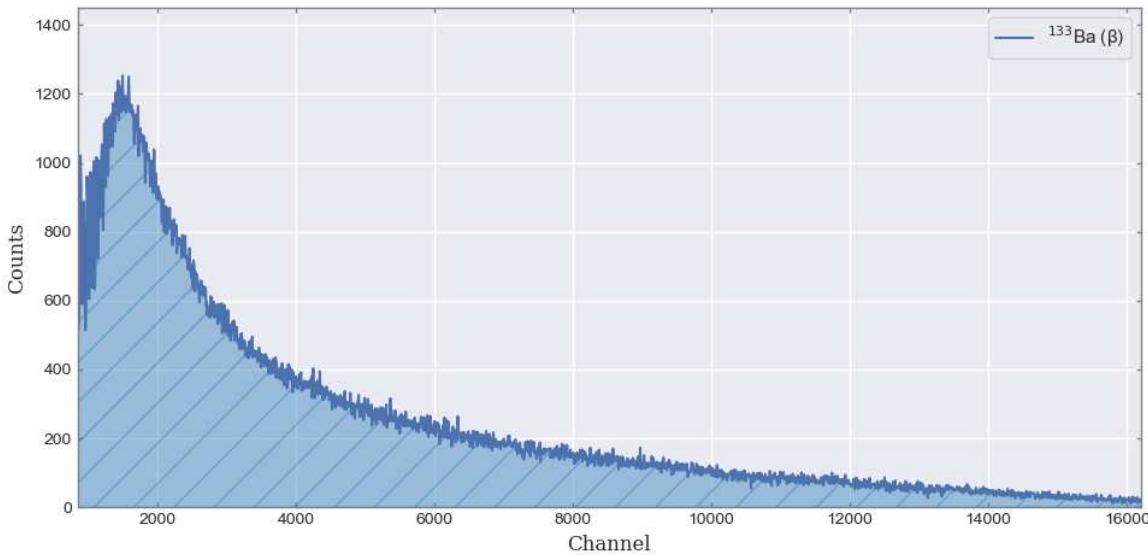


Figura 4.3: Espectro del canal β de ^{133}Ba obtenido con un detector de centelleo plástico en configuración 4π .

En este sistema, la detección de pulsos en el canal β es más rápida que en el canal γ , lo que requiere la introducción de un retardo en el canal β para corregir desajustes temporales entre los pulsos y obtener coincidencias genuinas. Para determinar este retardo, se generó un histograma de retrasos $\beta - \gamma$ (Fig. 4.4), que muestra la diferencia de tiempo entre el primer evento β y el evento γ subsiguiente. El análisis de este espectro de retrasos revela que el valor más probable para el desfase temporal entre señales (*delay*) es de 400 ns, el cual fue implementado en el software de adquisición para sincronizar adecuadamente ambos canales.

Este histograma de retrasos $\beta - \gamma$ no solo permite determinar el retardo necesario, sino que también es útil para establecer el tiempo de resolución del sistema (ancho de ventana de coincidencia). El tiempo de resolución óptimo debe ser lo suficientemente amplio para incluir la base de la distribución de retrasos, pero no excesivamente grande para minimizar la tasa de coincidencias accidentales. En este caso, se seleccionó un tiempo de resolución de 1 μs , valor que corresponde aproximadamente al ancho en la base del pico observado en el espectro de retrasos. Esta elección optimiza el balance entre la detección de coincidencias genuinas y el conteo de coincidencias accidentales.

No obstante, establecer una ventana de coincidencia de 1 μs impone ciertas restricciones en cuanto a la actividad máxima de la fuente a medir. En casos con alta tasa de desintegración, aproximadamente 1 MBq, aumenta la probabilidad de que ocurran múltiples eventos $\beta - \gamma$ dentro de la misma ventana de coincidencias. Esto puede provocar que el sistema registre solo una coincidencia por ventana, lo que conlleva a la pérdida de coincidencias genuinas. Sin embargo, este valor de 1 MBq representa un límite muy superior a la actividad máxima que puede soportar el detector de NaI(Tl) de tipo pozo utilizado

en el canal γ antes de alcanzar su punto de saturación. Por lo tanto, en la práctica, la actividad de las fuentes utilizadas queda acotada por la capacidad del detector, y no por la ventana de coincidencias.

Por otro lado, el espectro de retrasos presenta una estructura con dos máximos. El primer pico, centrado en 400 ns, corresponde al retardo ajustado entre los canales β y γ . El segundo pico, más amplio y desplazado hacia tiempos mayores, podría estar originado por fenómenos como *afterpulses* en el canal γ . Los *afterpulses* son señales espurias generadas en tubos fotomultiplicadores debido a distintos procesos, como la ionización de residuos gaseosos en el interior del tubo, la emisión secundaria de electrones por impacto de iones en el photocátodo, o reflexiones electrónicas en la estructura interna del PMT. También podrían contribuir efectos electrónicos secundarios, como reflejos o rebotes en la señal. La caracterización precisa de estas contribuciones requiere estudios adicionales, tales como el análisis individual de formas de pulso o el estudio del ruido electrónico del sistema.

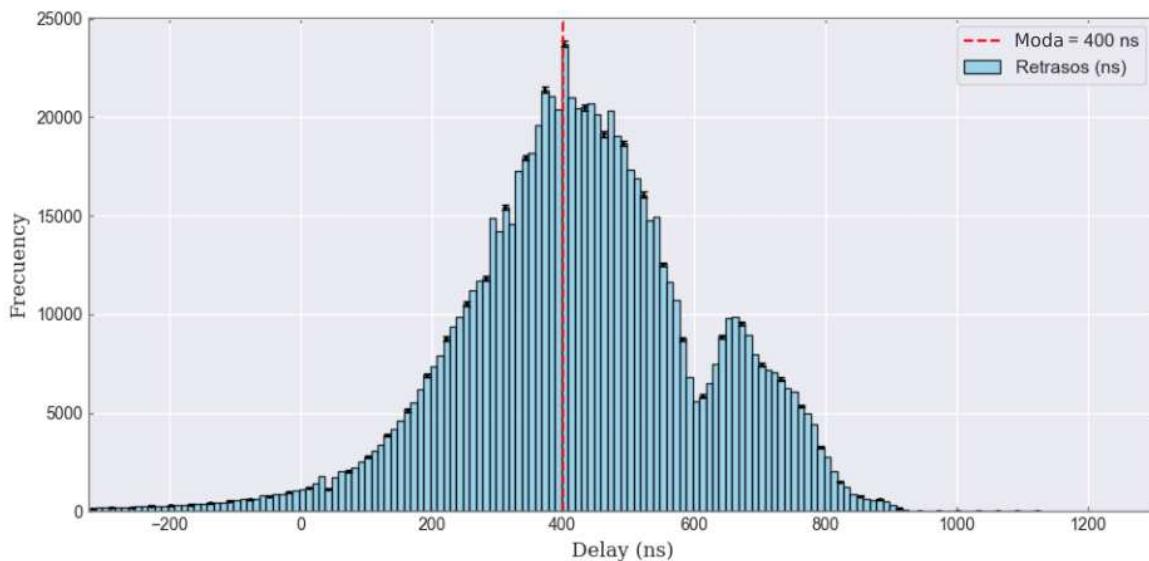


Figura 4.4: Histograma de retrasos temporales entre los canales β y γ para el ^{133}Ba con el sistema de coincidencias $4\pi\beta - 4\pi\gamma$ (PS).

La eficiencia β se varió utilizando una serie de umbrales digitales de energía, obteniendo 10 valores en un rango de eficiencia entre 16 % y 8 %. En la Fig. 4.5 se muestran las funciones de eficiencia $\beta - \gamma$ para ambas condiciones de energía gamma, junto con los ajustes lineales realizados para extrapolar los datos a $(1 - \varepsilon_\beta)/\varepsilon_\beta = 0$.

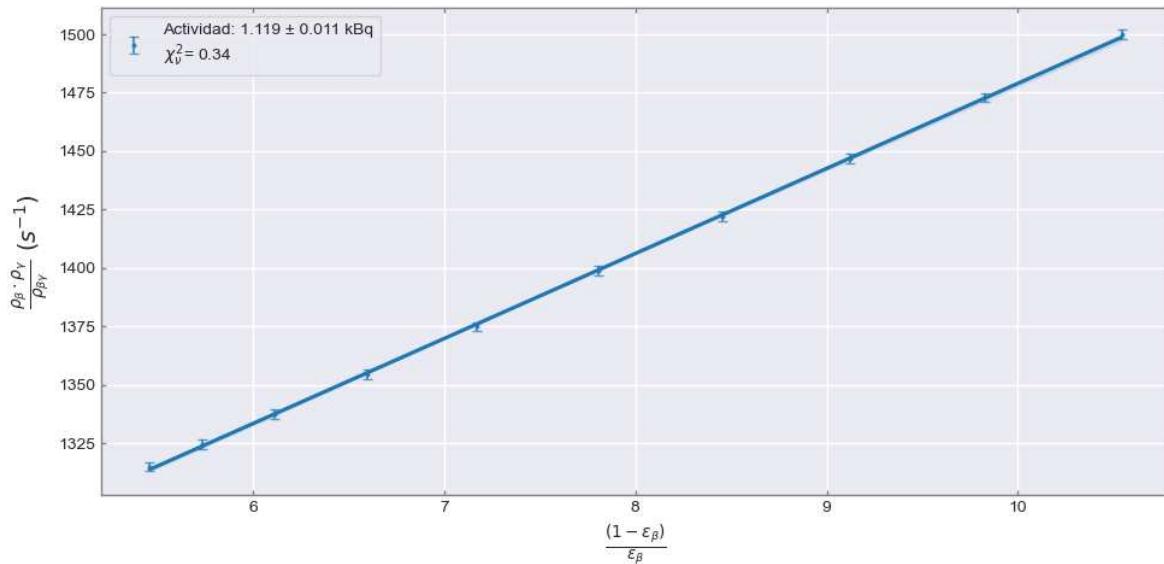


Figura 4.5: Función de eficiencia obtenida para una fuente puntual de ^{133}Ba etiquetada como F23-25 utilizando un centellador plástico como detector en el canal β . La ventana de energía gamma seleccionada para la extrapolación es de 245 keV - 600 keV.

Debido al decaimiento por captura electrónica, la detección de electrones de conversión y rayos gamma de baja energía en el canal beta puede afectar la linealidad de la curva de extrapolación. Para minimizar estos posibles efectos, se estableció un umbral de discriminación en el canal gamma por encima de 245 keV, lo que reduce la contribución de coincidencias espurias [27, 28].

El análisis de extrapolación, estableciendo una ventana gamma de 245 keV a 610 keV, fue aplicado a las tres fuentes de ^{133}Ba (F23-22, F24-22 y F25-22). El valor final de concentración de actividad de la solución se calculó como el promedio de los valores obtenidos para las tres fuentes, con una incertidumbre dada por la desviación estándar de dichos valores. Los resultados de la extrapolación se resumen en la Tabla 4.1.

Tabla 4.1

Resultados de las mediciones de ^{133}Ba (PS).

Nucleido	Fuente	Ventana γ (keV)	Actividad (kBq)	Masa (mg)	C.A. ^b (kBq/g)
^{133}Ba	F23-22	245 - 600	1.119 ± 0.010 ^a	10.460 (42)	127.21 ± 1.28
	F24-22	245 - 600	1.309 ± 0.011 ^a	12.310 (42)	126.36 ± 1.19
	F25-22	245 - 600	1.028 ± 0.009 ^a	9.350 (42)	130.65 ± 1.38

^a Incerteza estadística y extrapolación (1σ).

^b Concentración de actividad a la fecha de referencia.

La concentración de actividad de la solución que se utilizó para la preparación de las fuentes es de 127.96 ± 0.93 kBq/g a la fecha de referencia 30/06/2022. El valor obtenido a partir de las mediciones de las tres fuentes puntuales, llevado a la fecha de referencia aplicando la ley de decaimiento radiactivo (Ec. B.1), es de 127.87 ± 0.80 kBq/g, con

incertidumbre estadística de 1σ . La diferencia relativa con el valor de referencia es menor al 0.2 %.

La Tabla 4.2 presenta el análisis de las componentes de incertidumbre consideradas en la medición de cada fuente. Se tomaron en cuenta la extrapolación de eficiencia, el tiempo de resolución, la corrección por tiempo muerto y la masa depositada como los principales contribuyentes a la incertidumbre total. No existen procedimientos estandarizados para la determinación y el cálculo de estas incertidumbres, y su evaluación puede realizarse mediante distintos enfoques [29–31].

Para la incertidumbre asociada a la extrapolación de eficiencia, se consideró la contribución estadística de los conteos beta, gamma y de coincidencia, a partir del análisis de los N subintervalos en los que se dividió el conjunto de datos original (Sec. 3.2). El ajuste se realizó teniendo en cuenta los errores en ambas variables, utilizando el criterio de Deming (Apéndice B.3). Además, dentro de esta componente se incluyó la selección de la ventana gamma y el barrido de eficiencias; es decir, se consideró la variación en los valores de actividad al modificar tanto la ventana de energía gamma como los umbrales de energía beta.

Para evaluar la incertidumbre asociada al tiempo de resolución, se calcularon los valores de actividad correspondientes a distintos tiempos de resolución en el rango de $1\ \mu\text{s}$ a $10\ \mu\text{s}$. La desviación estándar de dichas actividades se adoptó como el componente de incertidumbre correspondiente a esta variable.

Dado que el tiempo muerto es un parámetro establecido manualmente en el programa DCC2, no posee incertidumbre intrínseca más allá del error sistemático asociado a la resolución temporal del equipo de adquisición ($10^{-8}\ \text{s}$). No obstante, se evaluó su efecto sobre la actividad variando el tiempo muerto en el rango de $5\ \mu\text{s}$ a $15\ \mu\text{s}$. La desviación estándar de los valores de actividad obtenidos en ese rango se consideró como la componente de incertidumbre correspondiente [32].

Tabla 4.2

Desglose de la incertidumbre relativa de la concentración de actividad para el ^{133}Ba (PS).

Componente de incertidumbre	Valor relativo (%), $k = 1$		
	F23-22	F24-22	F25-22
Extrapolación de eficiencia	0.96	0.91	1.05
Tiempo de resolución	0.25	0.23	0.26
Tiempo muerto	0.15	0.14	0.16
Masa	0.14	0.13	0.15
Incertidumbre combinada^a	1.01	0.98	1.09

^a Calculada como la raíz cuadrada de la suma en cuadratura de las componentes individuales.

4.1.2 $4\pi\gamma - \beta$ (Si)

Se repitieron las mediciones anteriores siguiendo el mismo procedimiento pero en este caso utilizando un detector de barrera de superficie de silicio en el canal β (ver Sec. 2.2). En la Fig. 4.6 se muestra el espectro obtenido en el canal beta para la fuente de ^{133}Ba "F24-22".

Se estableció el retraso temporal entre canales a partir de la distribución de la diferencia de tiempos entre pulsos del canal beta y gamma. El retardo más probable entre los pulsos β y γ fue de $1,04 \mu\text{s}$, valor que se introdujo en el canal β para corregir los desajustes. En la Fig. 4.7 se muestra el histograma de retardos temporales entre el canal β y el canal γ para la medición de ^{133}Ba . El tiempo de resolución se eligió en $2 \mu\text{s}$ a partir del ancho de la distribución ($\pm 2\sigma$).

Se puede notar que, a diferencia del histograma obtenido con el detector de centelleo plástico acoplado al PMT, en este caso no se observa la aparición de un segundo pico en la distribución de retardos. Esta diferencia sugiere que dicha estructura secundaria podría deberse a *afterpulses* generados en el propio PMT, y no a ruido electrónico introducido por alguna de las etapas de la cadena de conformación de pulsos, ya que los módulos utilizados en ambos montajes son los mismos.

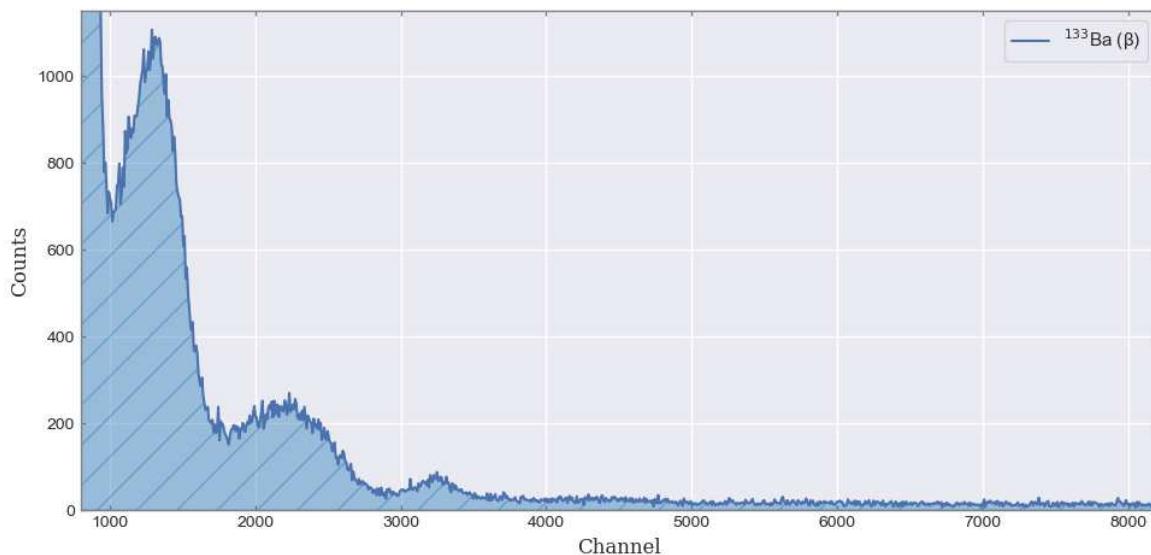


Figura 4.6: Espectro del canal β de ^{133}Ba obtenido con un detector de barrera de superficie de silicio.

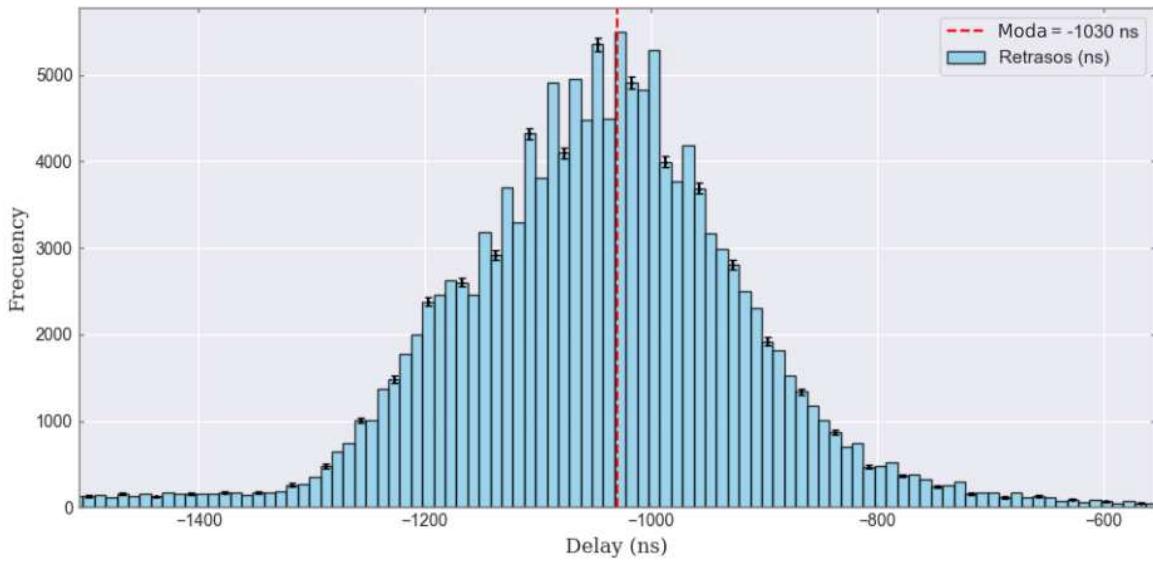


Figura 4.7: Histograma de retrasos temporales entre los canales β y γ para el ^{133}Ba utilizando un sistema de coincidencias $4\pi\beta - 4\pi\gamma$ (Si).

La eficiencia β se modificó ajustando el umbral digital de energía mediante software, obteniendo 10 valores en un rango de eficiencia entre 9.5 % y 4.2 %. En la Fig. 4.8 se muestran las funciones de eficiencia $\beta - \gamma$ para ambas condiciones de energía gamma, junto con los ajustes lineales realizados para extrapolalar los datos a $(1 - \varepsilon_\beta)/\varepsilon_\beta = 0$. Los resultados de la extrapolación se resumen en la Tabla 4.3.

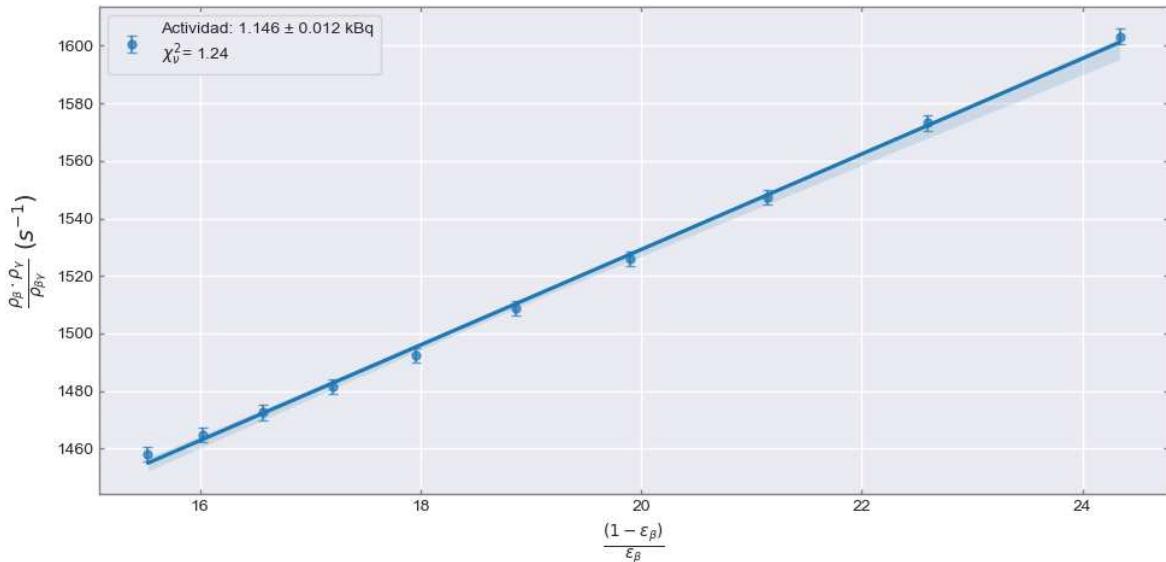


Figura 4.8: Función de eficiencia obtenida para una fuente puntual de ^{133}Ba etiquetada como F23-25 utilizando un detector de barrera de superficie de silicio en el canal β . La ventana de energía gamma seleccionada para la extrapolación es de 245 keV - 600 keV.

Tabla 4.3Resultados de las mediciones de ^{133}Ba (Si).

Nucleido	Fuente	Ventana γ (keV)	Actividad (kBq)	Masa (mg)	C.A. ^b (kBq/g)
^{133}Ba	F23-22	240 - 610	1.146 ± 0.010 ^a	10.460 (42)	127.93 ± 1.27
	F24-22	240 - 610	1.303 ± 0.012 ^a	12.310 (42)	123.63 ± 1.24
	F25-22	240 - 610	1.039 ± 0.010 ^a	9.350 (42)	129.75 ± 1.39

^a Incerteza estadística y extrapolación (1σ).^b Concentración de actividad a la fecha de referencia.

Del mismo modo, la concentración de actividad de la solución se obtiene haciendo el promedio pesado de los valores de concentración de las tres fuentes puntuales, obteniéndose un valor de 126.90 ± 0.76 kBq/g con incertidumbre estadística de 1σ . La diferencia relativa con el valor de referencia es 0.81 %.

De forma análoga al caso anterior, en la Tabla 4.4 se detallan las componentes de incertidumbre y su contribución relativa a la incertidumbre total, para cada una de las fuentes medidas. Las componentes consideradas (extrapolación, tiempo de resolución, tiempo muerto y masa depositada) fueron cuantificadas mediante los mismos procedimientos descritos previamente. Los resultados indican que la principal fuente de incertidumbre en estas mediciones proviene de la extrapolación de eficiencia.

Tabla 4.4Desglose de la incertidumbre relativa de la concentración de actividad para ^{133}Ba (Si).

Componente de incertidumbre	Valor relativo (%), $k = 1$		
	F23-22	F24-22	F25-22
Extrapolación de eficiencia	0.95	0.94	1.02
Tiempo de resolución	0.24	0.23	0.26
Tiempo Muerto	0.14	0.14	0.15
Masa	0.13	0.13	0.14
Incertidumbre combinada^a	0.99	1.00	1.07

^a Calculada como la raíz cuadrada de la suma en cuadratura de las componentes individuales.

4.2 Estandarización de ^{60}Co

El ^{60}Co es un radionucleido con un esquema de decaimiento relativamente simple (Fig. 4.9), lo que lo convierte en un candidato ideal para validar el sistema de medición de coincidencias. Decae mediante emisión β^- a estados excitados del ^{60}Ni , seguido de la emisión de dos rayos gamma característicos con energías de 1173.2 keV y 1332.5 keV.

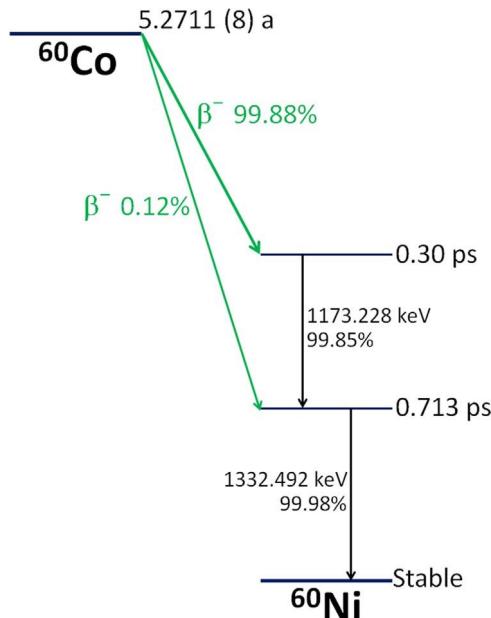


Figura 4.9: Esquema de decaimiento del ^{60}Co .

Este radionucleido tiene aplicaciones tanto en la industria como en la medicina nuclear. En el ámbito industrial, el ^{60}Co se emplea en radiografía industrial y en equipos de irradiación para esterilización de productos médicos y alimentos, donde una dosimetría precisa es importante para garantizar la seguridad y eficacia de los procesos. En medicina nuclear, su uso se da en radioterapia (especialmente en unidades de cobalto-terapia) y como trazador en estudios de diagnóstico, en donde se requiere una calibración rigurosa de las fuentes para asegurar dosis terapéuticas precisas y minimizar riesgos para los pacientes. Las mediciones se realizaron utilizando el sistema de coincidencias digital $4\pi\gamma - \beta$, con un detector de barrera de superficie de silicio para la detección de emisiones β (ver Sec. 2.2). Se utilizó una fuente de ^{60}Co preparada depositando gotas de una solución radiactiva con concentración de actividad $175.22 \pm 2.09 \text{ kBq/g}$ a la fecha de referencia 30/07/2018, lo que equivale a una actividad a la fecha de medición 17/03/2025 de $585.4 \pm 7.1 \text{ Bq}$.

El espectro de energías β para el ^{60}Co se muestra en la Fig. 4.10, mientras que el espectro de energías gamma se presenta en la Fig. 4.11. Se seleccionaron dos ventanas de energía gamma para el análisis: la primera abarca el rango de 852 keV a 2127 keV, que incluye los picos principales de 1173.2 keV y 1332.5 keV, y la segunda ventana se extiende desde 852 keV hasta 2977 keV, incorporando también el pico de suma a 2505.7 keV.

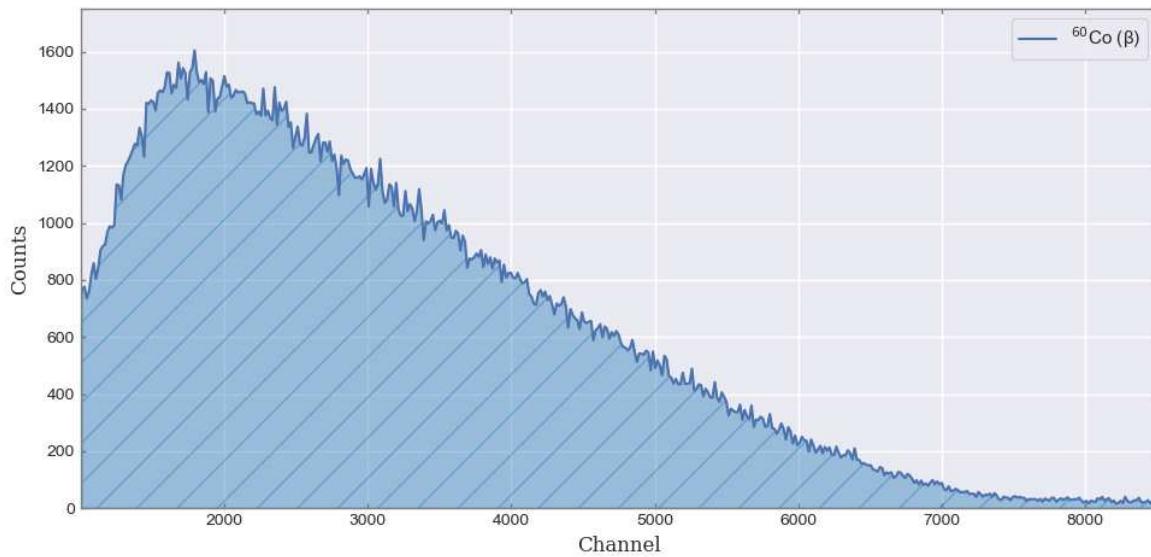


Figura 4.10: Espectro del canal β de ^{60}Co obtenido con un detector de barrera de superficie de silicio.

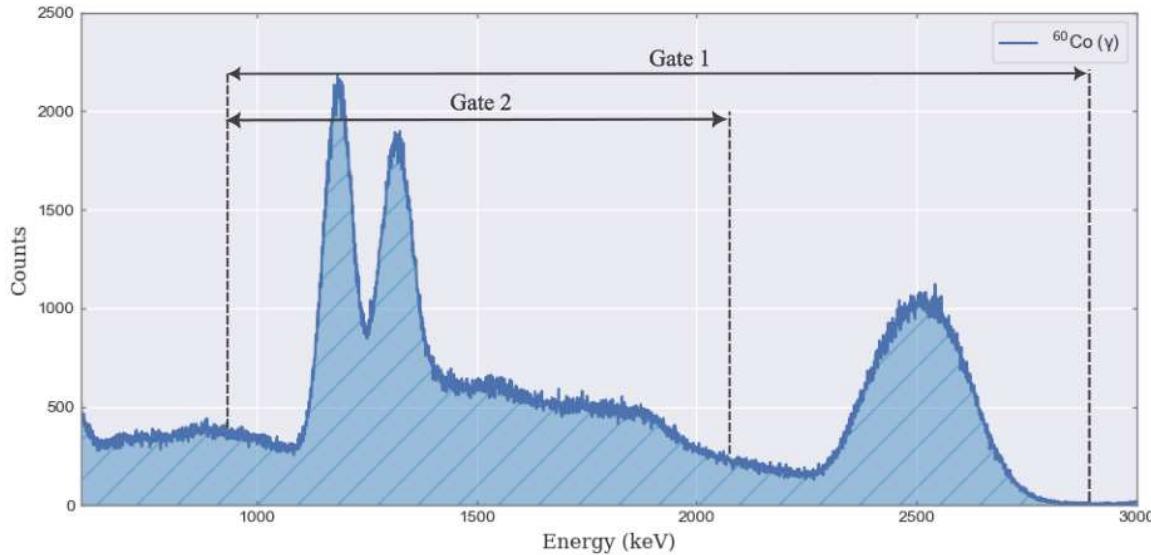


Figura 4.11: Espectro del canal γ de ^{60}Co obtenido con un detector de NaI(Tl) tipo pozo.

A partir del histograma de retardos se estableció el retraso temporal entre canales. El retraso más probable entre los pulsos β y γ fue de $-1.20 \mu\text{s}$, valor que se introdujo en el canal β mediante el software para corregir los desajustes. En la Fig. 4.12 se muestra el histograma de retardos temporales entre el canal β y el canal γ para la medición de ^{60}Co .

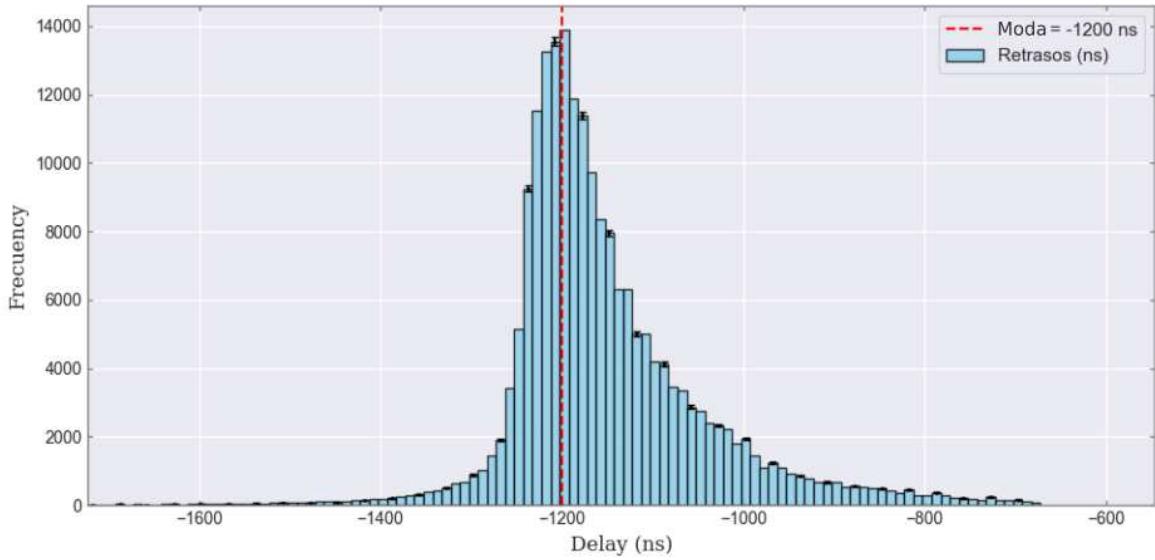


Figura 4.12: Histograma de retrasos temporales entre los canales β y γ para el ^{60}Co utilizando un sistema de coincidencias $4\pi\gamma - \beta$ (Si).

El tiempo de resolución, definido como el ancho de la ventana de coincidencia, se estableció en $1 \mu\text{s}$. Este valor asegura que se capturen coincidencias genuinas sin incluir un número excesivo de coincidencias accidentales.

Para cada ventana de energía gamma, se aplicó el método de extrapolación de eficiencia sobre los datos de $\rho_\beta \cdot \rho_\gamma / \rho_c$, donde ρ_β , ρ_γ y ρ_c representan las tasas de conteo en los canales β , γ y de coincidencia, respectivamente. La eficiencia β se varió ajustando el umbral de energía en el detector de silicio, obteniendo 10 valores en un rango de 10 % y 7 %. En la Fig. 4.13 se muestran las funciones de eficiencia $\beta - \gamma$ para ambas ventanas de energía, junto con los ajustes lineales realizados para extrapolar los datos a $(1 - \varepsilon_\beta) / \varepsilon_\beta = 0$.

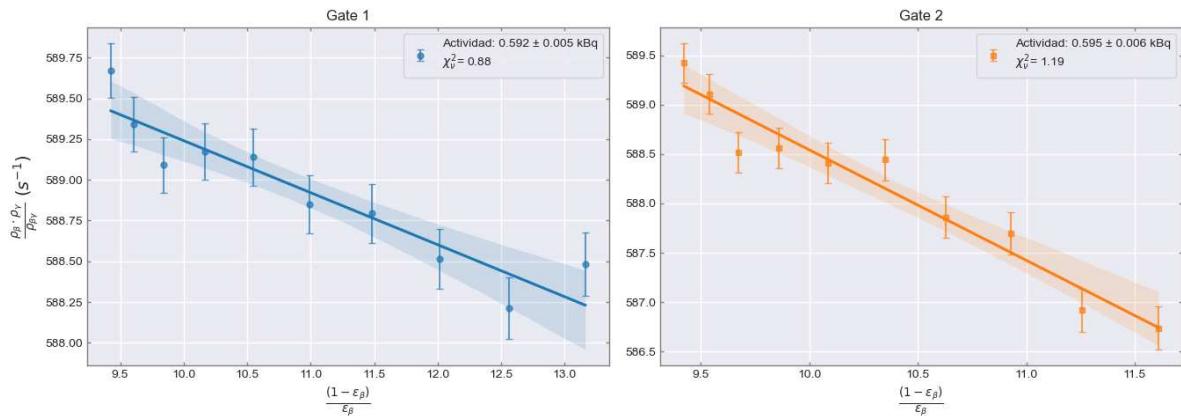


Figura 4.13: Función de eficiencia obtenida para una fuente puntual de ^{60}Co etiquetada como F70-18. Las ventanas de energía gamma seleccionadas son detalladas en la Fig. 4.11.

Se aplicó un tiempo muerto extensible de $10 \mu\text{s}$ a los pulsos β y γ en los rangos

de energía seleccionados. Las correcciones para el tiempo muerto, las coincidencias accidentales y el fondo se realizaron utilizando las fórmulas de Müller para tiempo muerto extensible [23].

Los resultados de la extrapolación para ambas ventanas gamma se resumen en la Tabla 4.5. La actividad obtenida por extrapolación para la ventana de 852-2127 keV fue de 595.3 ± 6.4 Bq, mientras que para la ventana de 852-2977 keV se obtuvo 595.9 ± 5.3 Bq. Considerando la masa de la gota depositada en la fuente puntual y haciendo el promedio pesado de los resultados de cada ventana de energía gamma, se obtiene una concentración de actividad a la fecha de referencia de 178.56 ± 1.40 kBq/g, que resulta comparable con el valor obtenido por espectrometría gamma (175.22 ± 2.09 kBq/g). La discrepancia relativa es de 1.9 %.

Tabla 4.5

Resultados de las mediciones de ^{60}Co .

Nucleido	Fuente	Ventana γ (keV)	Actividad (Bq)	Masa (mg)	C.A. ^b (kBq/g)
^{60}Co	F70-18	852 – 2977	$595.3 \pm 6.4^{\text{a}}$		
		852 – 2127	$595.9 \pm 5.3^{\text{a}}$	7.980 (42)	178.56 ± 1.40

^a Incerteza estadística y extrapolación (1σ).

^b Concentración de actividad a la fecha de referencia.

La Tabla 4.6 presenta el desglose de incertidumbres para ambas ventanas de energía analizadas, con la contribución relativa a la incertidumbre total. Las contribuciones (extrapolación, tiempo de resolución, corrección por tiempo muerto y masa) fueron evaluadas mediante los métodos previamente descritos. Los resultados indican que la principal fuente de incertidumbre en estas mediciones proviene de la extrapolación de eficiencia.

Tabla 4.6

Desglose de la incertidumbre relativa de la concentración de actividad para ^{60}Co (F70-18).

Componente de incertidumbre	Valor relativo (%), $k = 1$	
	852–2977 keV	852–2127 keV
Extrapolación de eficiencia	0.80	0.70
Tiempo de resolución	0.28	0.29
Tiempo muerto	0.04	0.02
Masa	0.10	0.10
Incertidumbre combinada	0.85	0.76

^a Calculada como la raíz cuadrada de la suma en cuadratura de las componentes individuales.

4.3 Estandarización de ^{134}Cs

El ^{134}Cs es un radionucleido que decae principalmente a través de tres ramas β a estados excitados del ^{134}Ba , seguido de la emisión de rayos gamma característicos. El esquema de decaimiento del ^{134}Cs es complejo, con energías de transición gamma en el rango de

604.7 keV a 1365.1 keV. Las ramas β tienen energías máximas que varían entre 87 keV y 658 keV, con contribuciones menores de ramas de mayor energía (hasta 1454 keV) que representan menos del 0.05 % de las desintegraciones totales. En la Fig. 4.14 se presenta el esquema de decaimiento del ^{134}Cs .

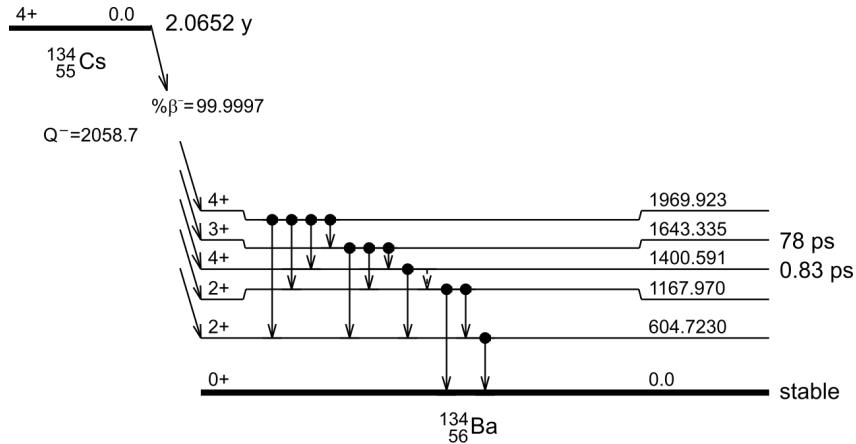


Figura 4.14: Esquema de decaimiento del ^{134}Cs .

Para la caracterización del sistema se realizaron mediciones de un patrón de fuente puntual de ^{134}Cs con etiqueta 2004-1097, fabricado por el Instituto Nacional de Metroología de Alemania (PTB), con actividad de 305.9 ± 2.2 kBq a la fecha de referencia 01/01/2004. Esto equivale a una actividad de 279.4 ± 2.0 Bq al 07/11/2024, fecha en la que se realizaron las mediciones. Para ello se utilizó el sistema de coincidencias digital $4\pi\gamma - \beta$ descrito en la Sec. 2.2, utilizando un detector de barrera de superficie de silicio en el canal β y un detector de NaI(Tl) tipo pozo en el canal γ . El espectro de energías gamma del ^{134}Cs se muestra en la Fig. 4.15.

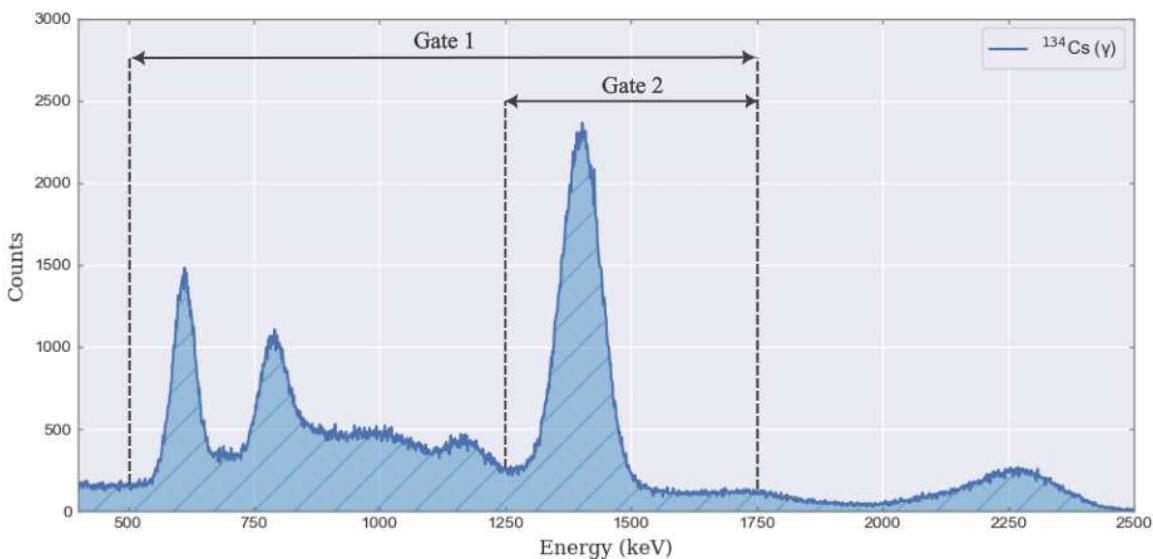


Figura 4.15: Espectro del canal γ del ^{134}Cs obtenido con un detector de NaI(Tl) de tipo pozo.

Se observan los picos principales a 604.7 keV y 795.8 keV, así como un pico de suma correspondiente a la superposición de estas dos transiciones. En la Fig. 4.16 se muestra el espectro de energías del canal β del ^{134}Cs .

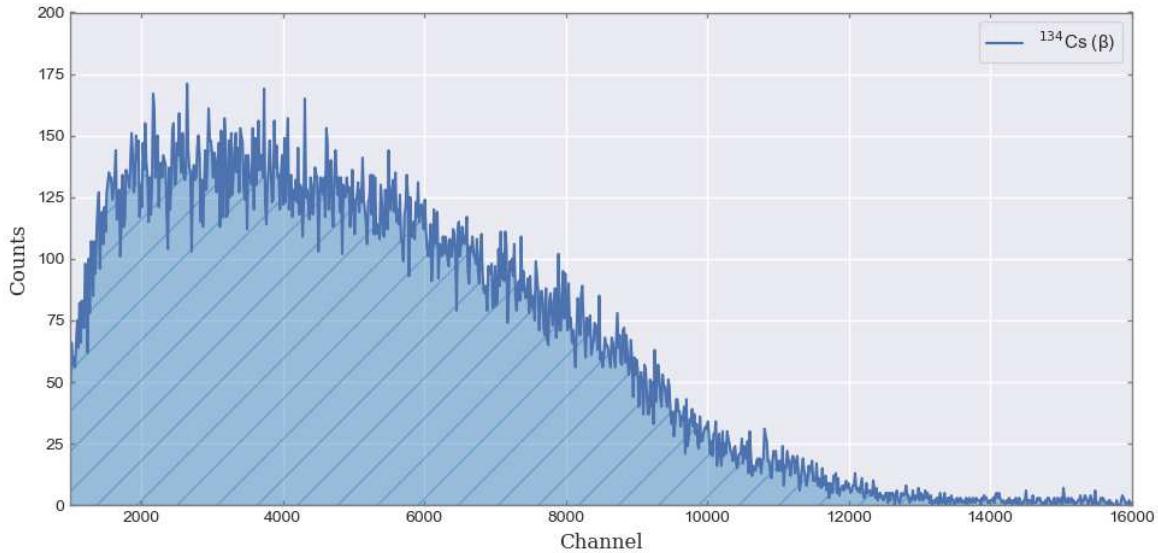


Figura 4.16: Espectro del canal β del ^{134}Cs obtenido con un detector de barrera de superficie de silicio.

Se seleccionaron dos ventanas de energía gamma para el análisis. La primera abarca el rango de 500 keV a 1800 keV, que incluye los picos principales y el pico de suma, mientras que la segunda ventana se centra en el rango de 1250 keV a 1750 keV, que incorpora principalmente el pico suma.

Para cada ventana de energía gamma, se aplicó el método de extrapolación de eficiencia sobre los datos de $\rho_\beta \cdot \rho_\gamma / \rho_c$, donde ρ_β , ρ_γ y ρ_c representan las tasas de conteo en los canales β , γ y de coincidencia, respectivamente. La eficiencia β se modificó ajustando el umbral de energía digital en el canal β , obteniendo 10 valores en un rango de 9 % y 4 %. La Fig. 4.17 muestra las funciones de eficiencia $\beta - \gamma$ para ambas ventanas de energía, junto con los ajustes lineales realizados para extrapolar los datos a $(1 - \varepsilon_\beta) / \varepsilon_\beta = 0$.

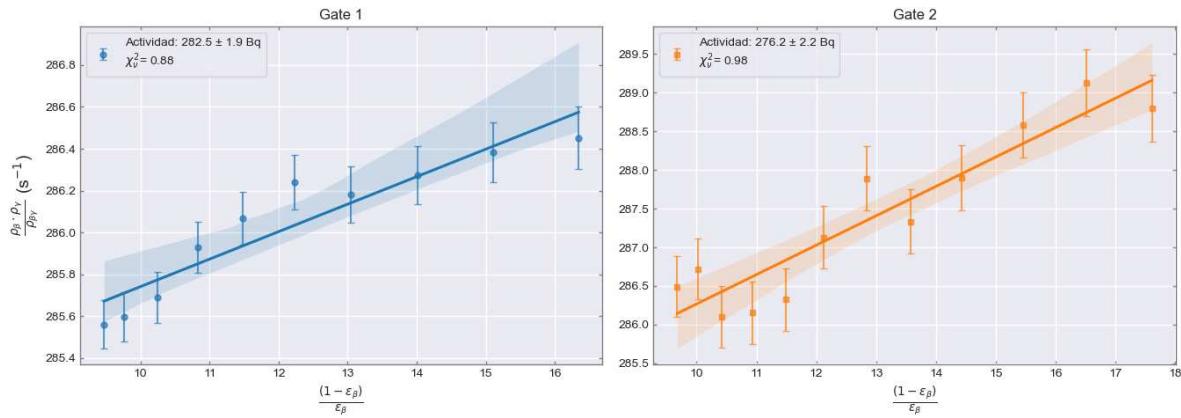


Figura 4.17: Función de eficiencia obtenida para un patrón puntual de ^{134}Cs (2004-1097). Las ventanas de energía gamma seleccionadas son detalladas en la Fig. 4.15.

Se aplicaron correcciones para el tiempo muerto, las coincidencias accidentales y el fondo utilizando las ecuaciones de Müller para tiempo muerto extensible [23]. El tiempo muerto de medición se estableció en $10 \mu\text{s}$. El retraso temporal entre canales y el tiempo de resolución de coincidencias fue obtenido a partir del histograma de retrasos entre el canal β y el canal γ (Fig. 4.18). El retardo más probable fue de -1200 ns . El tiempo de resolución se fijó en $1 \mu\text{s}$ para ambos canales.

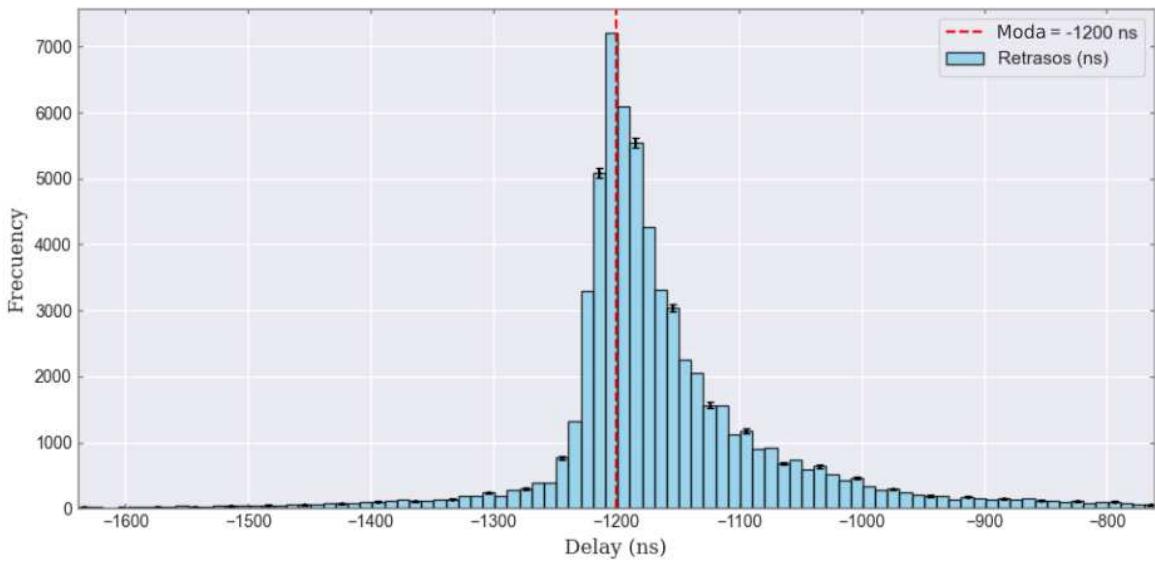


Figura 4.18: Histograma de retrasos temporales entre los canales β y γ para el ^{134}Cs utilizando un sistema de coincidencias $4\pi\gamma - \beta$ (Si).

Los resultados de la extrapolación para ambas ventanas gamma se resumen en la Tabla 4.7. Se observó que los datos presentan un comportamiento lineal conforme disminuye la eficiencia β , y que la curva de extrapolación depende de la ventana de energía gamma seleccionada. Haciendo el promedio pesado de los resultados de cada ventana de energía gamma, se obtiene una actividad a la fecha de referencia de 277.9 ± 2.61 Bq, que resulta comparable con el valor de referencia (279.4 ± 2.0 Bq). La discrepancia relativa es de 0.53 %.

Tabla 4.7

Resultados de las mediciones de ^{134}Cs .

Nucleido	Fuente	Ventana γ (keV)	Actividad ^b (Bq)
^{134}Cs	2004-1097	500 – 1800 1350 – 1750	282.5 ± 4.6 276.2 ± 3.5
		$\left. \right\} 277.9 \pm 2.61^a$	

^a Incertezza estadística y extrapolación (1σ).

^b Actividad a la fecha en la que se realizaron las mediciones.

La eficiencia máxima β en todas las mediciones fue inferior al 10 %, lo que resultó en puntos $(1 - \varepsilon_\beta)/\varepsilon_\beta$ alejados del origen de coordenadas y, por tanto, en una mayor incertidumbre en las mediciones. Esto puede deberse a la baja eficiencia geométrica del detector β y a pérdidas de energía causadas por el recubrimiento de la fuente.

El cálculo de incertidumbre se realizó de la misma forma que para el ^{60}Co y el ^{133}Ba . En la Tabla 4.8 se detallan las componentes de incertidumbre y su contribución relativa a la incertidumbre total.

Tabla 4.8

Desglose de la incertidumbre de la actividad para ^{134}Cs (2004-1097).

Componente de incertidumbre	Valor (%), $k = 1$	
	500–1800 keV	1350–1750 keV
Extrapolación de eficiencia	0.75	0.70
Tiempo muerto	0.35	0.30
Tiempo de resolución	0.05	0.05
Masa	0.07	0.07
Incertidumbre combinada^a	0.94	0.89

^a Calculada como la raíz cuadrada de la suma en cuadratura de las componentes individuales.

4.4 Estandarización de ^{152}Eu

El ^{152}Eu es uno de los radionucleidos más utilizados en espectrometría gamma, decae a través de varias ramas β al estado fundamental del ^{152}Gd (27.9 %) y mediante el proceso de EC al nivel fundamental del ^{152}Sm (72.1 %). Este presenta un esquema de decaimiento complejo (Fig. 4.19), con energías gamma características en un amplio rango del espectro,

(121.8 keV, 344.3 keV, 778.9 keV, 867.4 keV, 964.1 keV, 1085.8 keV, 1112.1 keV y 1408.0 keV), resultando de este modo particularmente útil para la calibración en energía de detectores γ . Las probabilidades de emisión varían entre 4 % y 30 %.

Dado que se espera que las eficiencias de detección de los eventos de desintegración β y de EC en el canal β sean diferentes, la estructura de doble desintegración de ^{152}Eu puede crear algunos problemas para la estandarización utilizando el método de conteo de coincidencias $4\pi\beta - \gamma$ con extrapolación de eficiencia [29, 33, 34].

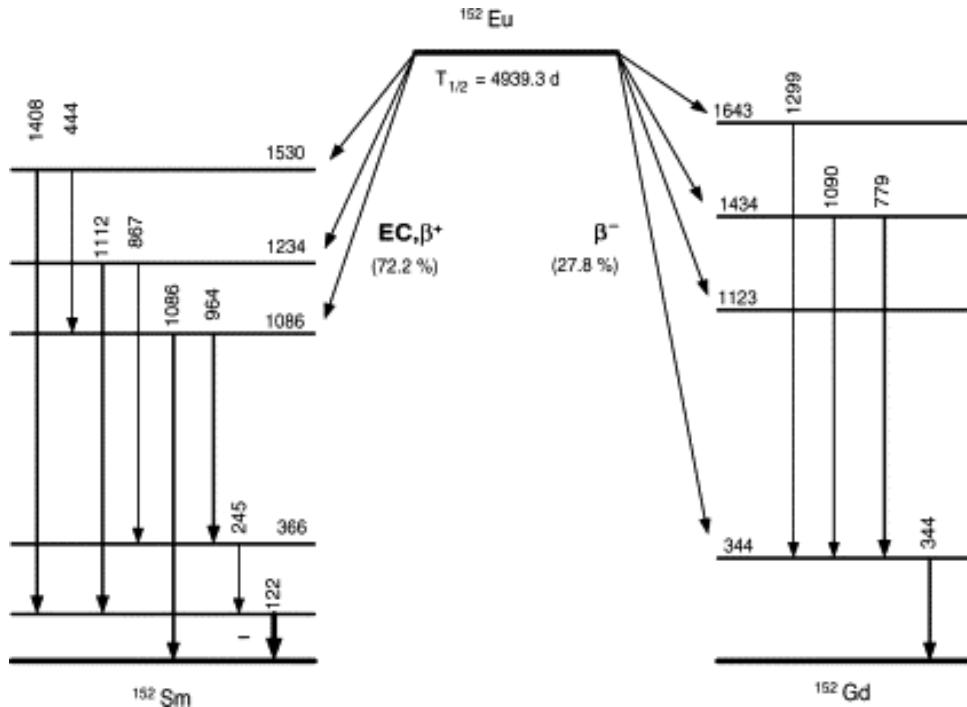


Figura 4.19: Esquema de decaimiento del ^{152}Eu .

Se realizaron mediciones de tres fuentes puntuales etiquetadas como F13-19, F14-19 y F15-19, fabricadas a partir de una solución diluida de ^{152}Eu con concentración de actividad (85.26 ± 2.17) kBq/g a la fecha de referencia 05/02/2025. Las fuentes son preparadas depositando gotas de solución radiactiva dentro de dos folias de Mylar de 23 μm de espesor y posteriormente selladas (ver Apéndice A).

Los datos fueron adquiridos con el sistema de coincidencias digital $4\pi\gamma - \beta$ descrito en la Sec. 2.2, utilizando un detector de barrera de superficie de silicio en el canal beta y un detector de NaI(Tl) tipo pozo para el canal gamma. El espectro obtenido en el canal beta para el ^{152}Eu es presentado en la Fig. 4.20. El espectro de energías gamma del ^{152}Eu y las ventanas de energía seleccionadas para el cálculo de eficiencia por extrapolación se muestran en la Fig. 4.22. Tres ventanas de energía gamma fueron elegidas, la primera corresponde a una región integral del espectro (43 keV - 1495 keV), involucrando la región de transición de 121.8 keV, que posee un alto coeficiente de conversión interna [35]. La segunda ventana incluye la región 200 keV - 1495 keV, y por último una ventana para la

región de 495 keV - 1495 keV.

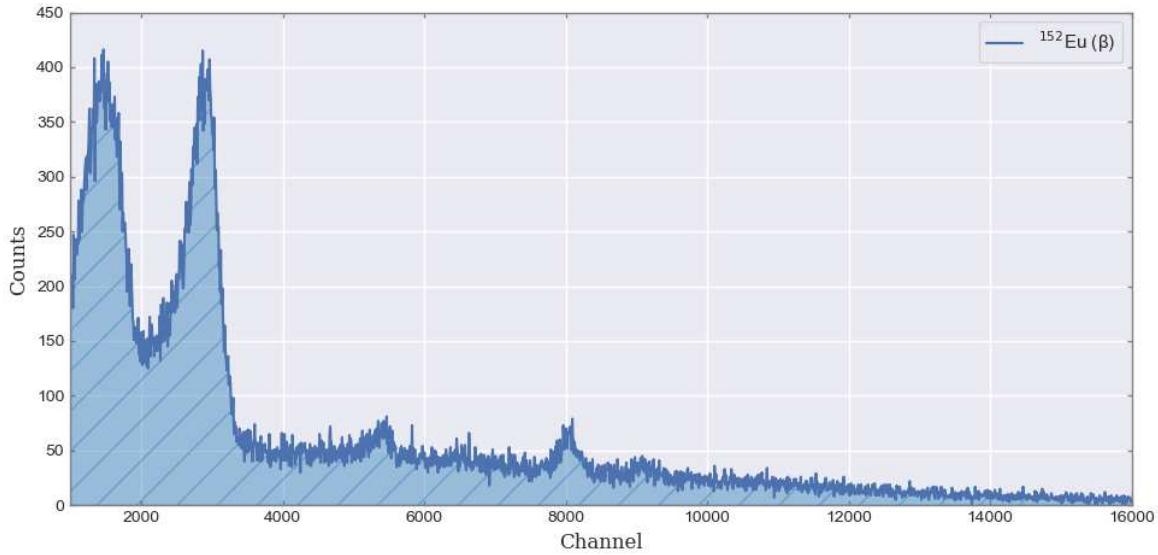


Figura 4.20: Espectro del canal β de ^{152}Eu obtenido con un detector de barrera de superficie de silicio.

Para todas las mediciones, se impuso un tiempo muerto extensible de $10 \mu\text{s}$. El tiempo de resolución de coincidencias impuesto fue de $1 \mu\text{s}$ para ambos canales β y γ , que fue determinado a partir del histograma de retrasos $\beta - \gamma$ (Fig. 4.21). El retraso más probable fue de 330 ns.

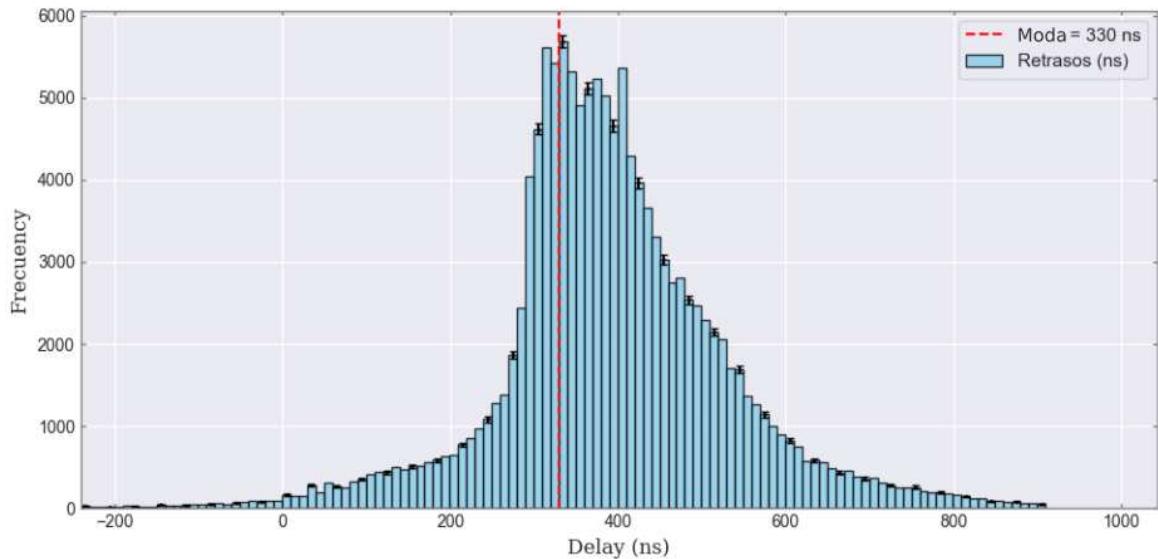


Figura 4.21: Histograma de retrasos temporales entre los canales β y γ para el ^{152}Eu utilizando un sistema de coincidencias $4\pi\beta - 4\pi\gamma$ (Si).

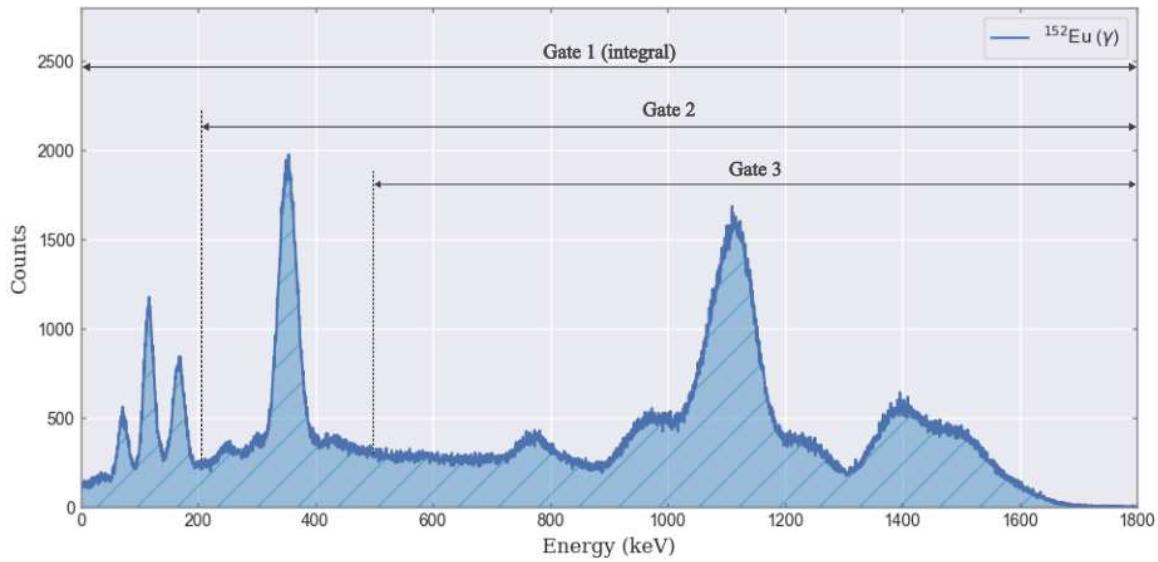


Figura 4.22: Espectro del canal γ de ^{152}Eu obtenido con un detector de NaI(Tl) de tipo pozo.

Para cada ventana de energía gamma, se aplicó el método de extrapolación sobre los datos de $\rho_\beta \cdot \rho_\gamma / \rho_c$ para diferentes valores de $(1 - \varepsilon_\beta) / \varepsilon_\beta$. Para estas mediciones se optó por variar la eficiencia β para tener 10 valores en un rango entre 8 % y 5 %. La Fig. 4.23 muestra las funciones de eficiencia $\beta - \gamma$ para las tres ventanas de energía y cada uno de los ajustes lineales sobre los datos de la fuente F13-19, indicando el valor de actividad obtenido al extrapolilar los datos a $(1 - \varepsilon_\beta) / \varepsilon_\beta = 0$. Para corregir los efectos de tiempo muerto y de coincidencias accidentales se utilizó la fórmula de Müller [23]. Este mismo análisis se aplicó para las fuentes F14-19 y F15-19. Considerando las tres ventanas gamma se calcula el valor promedio para cada fuente y luego se obtiene el valor de concentración de actividad de la solución haciendo el promedio pesado de los valores obtenidos para cada fuente. En la Tabla 4.9 se resumen los resultados de las mediciones de ^{152}Eu .

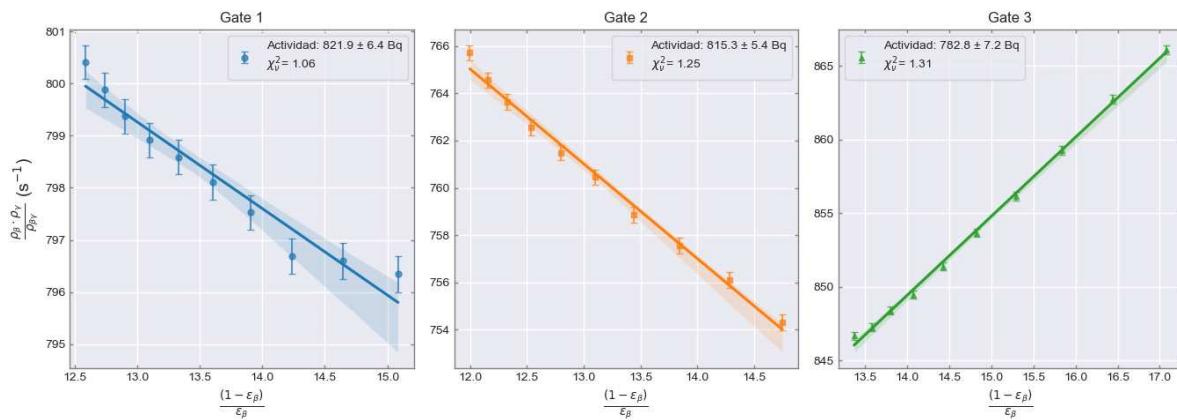


Figura 4.23: Funciones de eficiencia obtenidas para el ^{152}Eu (F13-19) con tres configuraciones diferentes de ventanas gamma. Los detalles de cada una de las ventanas utilizadas se muestran en la Fig. 4.22.

Tabla 4.9Resultados de las mediciones de ^{152}Eu .

Nucleido	Fuente	Ventana γ (keV)	Actividad (Bq)	Masa (mg)	C.A. ^b (kBq/g)
^{152}Eu	F13-19	43 – 1495	821.9 ± 6.4	9.420 (42)	$85.63 \pm 1.36^{\text{a}}$
		176 – 1495	815.3 ± 5.4		
		495 – 1495	782.8 ± 7.2		
	F14-19	43 – 1495	886.5 ± 5.3	10.190 (42)	$85.17 \pm 1.35^{\text{a}}$
		176 – 1495	874.7 ± 6.2		
		495 – 1495	842.2 ± 7.1		
	F15-19	43 – 1495	549.8 ± 4.3	6.260 (42)	$86.07 \pm 1.46^{\text{a}}$
		176 – 1495	544.1 ± 4.7		
		495 – 1495	522.3 ± 5.3		

^a Incertidumbre estadística y extrapolación (1σ).^b Concentración de actividad a la fecha de referencia.

Se observa en todos los casos que los datos presentan un comportamiento lineal conforme disminuye la eficiencia β y que la curva de extrapolación depende de la ventana de energía gamma elegida. La eficiencia máxima β en todos los casos se encuentra por debajo del 10 %, lo que provoca que los puntos $(1 - \varepsilon_\beta)/\varepsilon_\beta$ se encuentren alejados del origen de coordenadas y, por consiguiente, aumente la incertidumbre en las mediciones. Esto puede deberse en parte a la baja eficiencia geométrica ($< 2\pi$) y posiblemente a una pérdida de energía de los electrones emitidos por factores como el recubrimiento de la fuente (Mylar de 23 μm).

La concentración de actividad de la solución se obtiene haciendo el promedio pesado de los valores de concentración de las tres fuentes puntuales, obteniéndose un valor de 85.60 ± 0.80 kBq/g con incertidumbre estadística de 1σ . La diferencia relativa con el valor de referencia (85.26 ± 2.17 kBq/g) es menor al 0.5 %.

En la Tabla 4.10 se detallan las componentes de incertidumbre y su contribución relativa a la incertidumbre total de la medición de cada fuente.

Tabla 4.10Desglose de la incertidumbre relativa de la concentración de actividad para ^{152}Eu .

Componente de incertidumbre	Valor relativo (%), $k = 1$		
	F13-19	F14-19	F15-19
Extrapolación de eficiencia	1.45	1.44	1.55
Tiempo de resolución	0.52	0.51	0.56
Tiempo Muerto	0.08	0.08	0.08
Masa	0.21	0.21	0.22
Incertidumbre combinada	1.59	1.58	1.70

5 Simulación de eficiencia

(Método $4\pi\gamma$)

Como se mencionó en la Sec. 3.3, el software desarrollado permite, además del procesamiento de datos mediante el método de coincidencias, realizar un análisis alternativo aplicando el método $4\pi\gamma$ sobre las mismas mediciones. Pero para llevar a cabo este enfoque, es necesario conocer la eficiencia total de detección de los sistemas propuestos en este trabajo.

Actualmente, existen métodos para calcular la eficiencia de detección en detectores como NaI(Tl) o HPGe mediante códigos de simulación Monte Carlo (MC), los cuales ofrecen un amplio conjunto de herramientas para el modelado geométrico, el seguimiento de partículas a través de distintos modelos físicos y el registro detallado de eventos.

El proceso de cálculo consiste en la generación numérica de múltiples caminos aleatorios que simulan las interacciones de partículas con la materia utilizando un conjunto de secciones transversales diferenciales para los procesos de interacción. Una buena precisión estadística requiere simular un gran número de trayectorias. Si este número es suficientemente grande, se puede deducir información cuantitativa sobre el proceso de transporte (por ejemplo, la energía depositada en el volumen sensible del detector NaI(Tl) promediando sobre todas las trayectorias).

Se ha estudiado en trabajos anteriores la capacidad de los códigos MC como PENELOPE para reproducir adecuadamente los procesos físicos relevantes del transporte de fotones y electrones en la materia (validados en el rango de energía desde unos cientos de eV hasta alrededor de 10 MeV) [24].

En el laboratorio LMR, ya se han desarrollado simulaciones del detector NaI(Tl) de tipo pozo para su aplicación en el método $4\pi\gamma$ [3]. No obstante, en este trabajo se modificó la construcción geométrica del modelo de simulación con el objetivo de disminuir la cantidad de cuerpos utilizados y agregar correcciones en las dimensiones del blindaje. La versión anterior presentaba limitaciones al incorporar fuentes volumétricas con geometrías complejas, debido principalmente a la excesiva cantidad de cuerpos geométricos requeridos para su definición.

5.1 Modelado de la geometría experimental

Para el cálculo de eficiencia en detectores NaI(Tl) de tipo pozo, el modelado geométrico debe incluir la geometría completa del detector, considerando especialmente la configuración del pozo y sus alrededores con sus composiciones atómicas. Es importante incorporar el blindaje externo por su influencia en la respuesta del detector mediante efectos como el *backscattering* y la producción de pares. En la Fig. 5.1 se muestra la construcción de las geometrías utilizadas para la simulación de la curva de eficiencia en cada sistema.

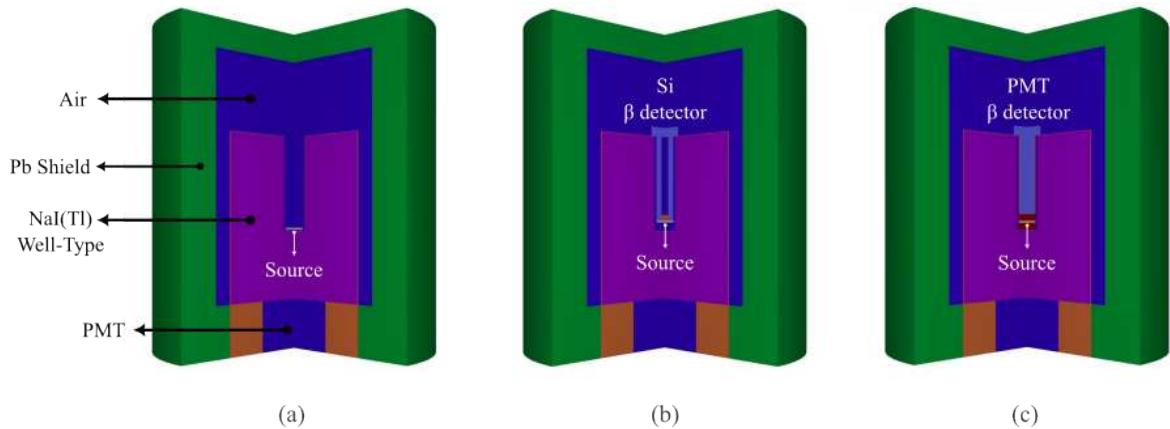


Figura 5.1: Geometrías diseñadas para la simulación de curvas de eficiencia con el software PENELOPE para los diferentes sistemas. (a) NaI(Tl) de tipo pozo. (b) Sistema de coincidencias $4\pi\gamma - \beta$ (Si). (c) Sistema de coincidencias $4\pi\beta - 4\pi\gamma$ (PS).

El proceso de simulación sigue una secuencia definida. Primero, las partículas primarias se generan aleatoriamente en la fuente activa. Luego, se rastrean paso a paso registrando tanto las interacciones primarias como las secundarias. Durante este proceso, se suma la energía depositada en el volumen sensible para cada evento. Finalmente, se registra una cuenta cuando la energía total depositada supera el umbral de detección establecido.

En la implementación práctica existen dos enfoques principales. El primero consiste en simular fotones monoenergéticos en el rango de 10 keV a 5 MeV para construir curvas de eficiencia. El segundo enfoque, aplicable a radionucleidos específicos, considera su esquema completo de desintegración. Una alternativa más sofisticada simula directamente las vías de desintegración y la radiación asociada, incluyendo automáticamente los efectos de suma al utilizar bases de datos especializadas como la Tabla de Radionucleidos del LNHB [36]. En este caso, se implementaron ambos enfoques con el objetivo de caracterizar el detector. Primero, se construyó una curva de eficiencia simulando la emisión de fotones monoenergéticos en 27 energías diferentes. Esto permitió evaluar el impacto en la eficiencia de detección al introducir un componente adicional en el pozo del detector de NaI, un fotomultiplicador (PMT) y, en otro caso, un detector de silicio montado en un

soporte impreso en 3D.

5.2 Cálculo de la eficiencia del sistema

La eficiencia de detección total para un fotón con energía E en un detector de pozo de NaI puede calcularse a partir de un modelo simplificado [37, 38]:

$$\epsilon_T(E) = f_G[1 - e^{-\mu_t T}]P_e \quad (5.1)$$

donde f_G representa la eficiencia geométrica ($\Omega/4\pi$), μ_t es el coeficiente de atenuación total (dependiente de la energía) en el cristal del detector (excluyendo dispersión elástica), T es la distancia media recorrida en el cristal y P_e es una ecuación de transmisión exponencial para interacciones fotoeléctricas en los materiales absorbentes (fuente, vial, aire, cubierta del detector) [38]. Se analizaron tres configuraciones geométricas del sistema de detección. La primera corresponde al detector de pozo estándar NaI(Tl) de 127 mm × 127 mm utilizado en el LMR. La segunda configuración incorpora adicionalmente un detector de silicio en el interior del pozo para la detección de emisiones beta (NaI(Tl)+Si). Por último, una tercera variante, donde el detector beta consiste en un fotomultiplicador acoplado a un centellador plástico y colocado dentro del pozo (NaI(Tl)+PMT/PS). Para cada configuración se determinó la curva de eficiencia mediante un ajuste polinómico de grado 5 sobre 27 puntos de energía seleccionados (20 keV a 3000 keV), cubriendo el rango espectral de interés (Fig. 5.2).

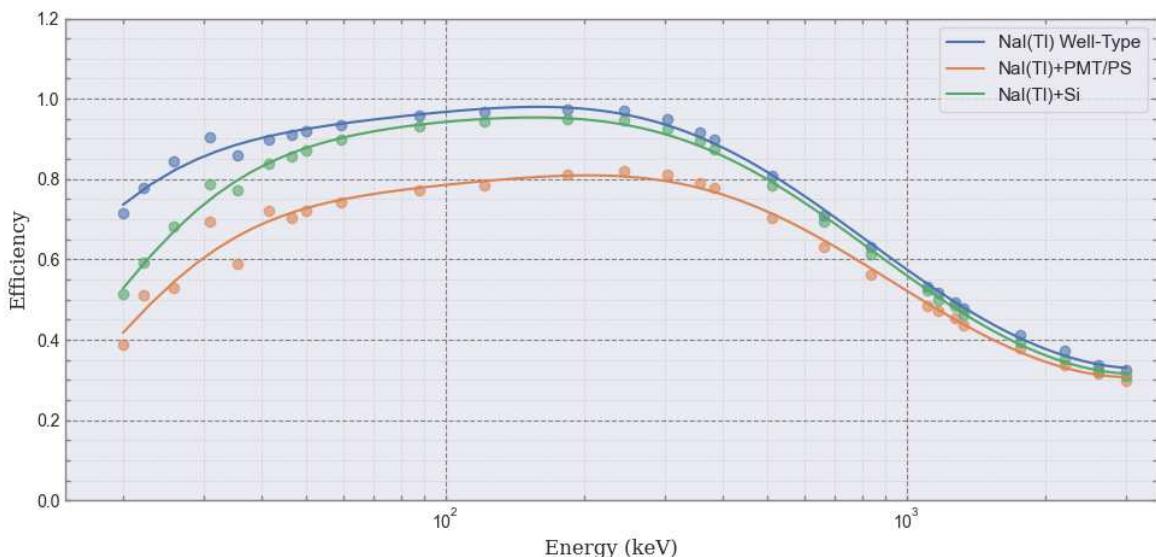


Figura 5.2: Curvas de eficiencia para las tres configuraciones del sistema, obtenidas mediante ajuste polinómico de grado 5 sobre los puntos experimentales. (a) Detector NaI(Tl) de pozo. (b) Sistema de coincidencias NaI(Tl) + detector de silicio. (c) Sistema de coincidencias NaI(Tl) + PMT con centellador plástico.

Las energías de calibración incluyeron líneas características de ^{133}Ba (30.8 keV), ^{152}Eu (356 keV), ^{137}Cs (661.66 keV) y ^{60}Co (1173.24 keV y 1332.50 keV), entre otras, como se detalla en la Tabla 5.1.

Se observa cómo la introducción de los detectores adicionales modifica en parte la respuesta del sistema, particularmente en el rango de bajas energías (por debajo de 100 keV) debido a efectos de absorción en los materiales adicionales.

Tabla 5.1

Curvas de eficiencia para las tres configuraciones del sistema (Fig. 5.1).

Energía (keV)	Radionucleido ^a	Eficiencia de detección (%)		
		NaI(Tl)	NaI(Tl)+Si	NaI(Tl)+(PMT/PS)
20.0	-	71.4	51.4	38.8
22.1	^{210}Pb	77.96	59.19	51.16
25.8	^{241}Am	84.47	68.32	52.97
30.8	^{133}Ba	90.42	78.85	69.29
35.5	^{235}U	86.02	77.15	58.99
41.5	^{239}Np	89.86	83.89	72.04
46.5	^{210}Pb	90.92	85.68	70.38
50.0	-	91.88	87.24	72.25
59.54	^{241}Am	93.58	89.85	74.30
88.0	^{88}Y	95.94	93.10	77.30
121.78	^{152}Eu	96.82	94.22	78.35
183.90	^{203}Hg	97.34	95.01	81.17
244.70	^{203}Pb	96.95	94.64	82.05
302.85	^{152}Eu	94.96	92.66	81.21
356.01	^{152}Eu	91.71	89.49	79.01
383.85	^{133}Ba	89.83	87.51	77.91
511.00	^{22}Na	80.73	78.49	70.41
661.66	^{137}Cs	71.06	69.32	63.21
834.85	^{88}Y	63.04	61.28	56.17
1112.07	^{152}Eu	53.17	52.21	48.53
1173.24	^{60}Co	51.78	49.97	47.30
1274.53	^{22}Na	49.33	48.35	45.35
1332.50	^{60}Co	47.77	46.46	43.57
1764.49	^{214}Bi	41.32	39.37	37.84
2204.06	^{208}Tl	37.18	35.25	33.77
2614.51	^{208}Tl	33.72	32.26	31.67
3000.0	-	32.40	31.12	29.85

^a Los datos han sido extraídos de tablas de decaimiento actualizadas a la fecha por el LNHB [36].

Las principales características de cada curva pueden explicarse mediante modificaciones a la Ec. (5.1) que consideran los nuevos elementos geométricos y sus propiedades de absorción. Se identifican tres regiones energéticas con comportamientos diferenciados. Por debajo de 40 keV, la eficiencia de detección varía abruptamente con la energía del fotón. Esto se debe principalmente al factor de transmisión P_e , siendo mayor la probabilidad de absorción en el revestimiento para fotones de baja energía. Entre 40 keV y 200 keV, la eficiencia de detección alcanza su valor máximo, ya que la transmisión P_e a través de las capas delgadas de materiales absorbentes es cercana a 1 y la probabilidad de interacción con el cristal activo es muy alta. El factor limitante es el ángulo sólido f_G cubierto por el

detector, siendo la parte superior de la cavidad el punto ciego. Por encima de 200 keV, la eficiencia de detección disminuye debido a fotones que salen del detector sin interactuar. La pendiente depende del volumen del detector, que determina la distancia media de interacción T . Cabe destacar que los fotones pueden contarse sin absorción total dentro del detector, y existe una contribución no despreciable debida a efectos de *backscattering* y producción de pares en el blindaje.

5.3 Validación de los resultados simulados

La validación inicial de las simulaciones se realizó utilizando los archivos del canal γ obtenidos durante las mediciones realizadas con ambos sistemas de coincidencias (ver Sec. 4). Estos resultados se compararon con valores de referencia obtenidos mediante los sistemas de medición presentes en el LMR (espectrometría gamma, TDCR y coincidencias X- γ). En la Tabla 5.2 se muestran los resultados obtenidos para las geometrías simuladas. Los resultados revelan un comportamiento diferente según el radionucleido analizado, lo que sugiere la necesidad de ajustes en la modelización geométrica.

Para los emisores gamma simples como ^{60}Co y ^{134}Cs , las eficiencias simuladas muestran excelente concordancia con los valores experimentales, con discrepancias inferiores al 1 %. En el caso del ^{60}Co , la concentración de actividad medida por el método $4\pi\gamma$ (175.77 ± 1.80 kBq/g) es compatible con el valor de referencia (175.09 ± 10.99 kBq/g). La eficiencia total obtenida por simulación MC es 0.9451 ± 0.0082 . Con el ^{134}Cs sucede lo mismo, los valores de actividad de referencia y medidos son compatibles, 305.90 ± 2.20 kBq y 303.87 ± 3.71 kBq respectivamente, con una eficiencia total de detección de 0.9860 ± 0.0056 .

Tabla 5.2Resultados de las mediciones por método $4\pi\gamma$

Nucleido	Sistema	Eficiencia simulada (%)	C.A. referencia (kBq/g)	C.A. ^a medición (kBq/g)	Δ^b (%)	Compatibilidad
^{133}Ba	NaI(Tl) + PMT/PS	98.91 ± 0.41	127.96 ± 0.93	123.65 ± 1.14	3.4	Incompatible
^{133}Ba	NaI(Tl) + Si	99.22 ± 0.34	127.96 ± 0.93	122.47 ± 2.49	4.3	Incompatible
^{152}Eu	NaI(Tl) + Si	97.60 ± 0.75	85.26 ± 2.17	77.69 ± 1.32	8.8	Incompatible
^{60}Co	NaI(Tl) + Si	94.51 ± 0.82	175.09 ± 0.99	175.77 ± 1.80	-0.3	Compatible
			Actividad referencia (kBq)	Actividad ^a medición (kBq)		
^{134}Cs	NaI(Tl) + Si	98.60 ± 0.56	305.90 ± 2.20	303.87 ± 3.71	-0.6	Compatible

^a Incerteza estadística (1σ).^b Discrepancia relativa entre el valor de referencia y la medición.

Sin embargo, se observan discrepancias significativas ($\sim 4\%$) para los radionucleidos con esquemas de decaimiento complejos como el ^{152}Eu y el ^{133}Ba en ambos sistemas. En el caso del ^{152}Eu , la diferencia entre la concentración de actividad medida (77.69 ± 1.32 kBq/g) y el valor de referencia (85.26 ± 2.17 kBq/g) alcanza un 8.8 %. Esta discrepancia sugiere que la modelización actual no representa adecuadamente el sistema, debido posiblemente a errores en las dimensiones del detector o en la elección incorrecta de materiales. Esta discrepancia puede deberse también a los efectos de suma en cascadas gamma complejas o la interacción de electrones de conversión.

Estos resultados preliminares indican que, mientras la geometría es adecuada para transiciones gamma simples, requiere modificaciones adicionales para describir correctamente espectros con múltiples líneas en coincidencia. Se propone como continuación de este trabajo verificar las eficiencias de detección simuladas con fuentes previamente estandarizadas.

6 Conclusiones

Este trabajo incluyó el diseño, construcción y caracterización de dos sistemas digitales de coincidencias para la determinación de actividad por métodos absolutos de diferentes radionucleidos.

Se desarrolló y evaluó un sistema $4\pi\beta-4\pi\gamma$ (PS), que integra un detector NaI(Tl) de tipo pozo para las emisiones gamma y un detector de centelleo plástico para la detección de partículas beta. Este sistema permitió determinar la actividad patrones de ^{133}Ba disponibles en el LMR, con resultados compatibles con los valores de referencia. Paralelamente, se diseñó y construyó un sistema $4\pi\gamma-\beta$ (Si), en el que se utiliza el mismo detector NaI(Tl) tipo pozo para las emisiones gamma, acoplado a un detector de barrera de superficie de silicio para la detección de las emisiones β . Las mediciones de los radionucleidos como ^{152}Eu , ^{134}Cs , ^{60}Co , y ^{133}Ba resultaron ser compatibles con los valores de referencia.

Por otro lado, se implementó el método $4\pi\gamma$ utilizando las mediciones realizadas en ambos sistemas de coincidencias. Esto requirió estimar la eficiencia total de detección en cada configuración experimental mediante simulaciones Monte Carlo. Para ello, se diseñaron nuevas geometrías y se optimizó la geometría previamente utilizada en el laboratorio, permitiendo una mayor flexibilidad en la representación de diferentes formas de fuentes radiactivas. Esta implementación condujo a resultados compatibles para ^{60}Co y ^{134}Cs . Sin embargo, las discrepancias observadas en otros radionucleidos sugieren la necesidad de continuar con el estudio de los materiales y dimensiones considerados en las simulaciones, a fin de mejorar la compatibilidad de las mediciones.

Para ambos sistemas se incorporó electrónica de adquisición digital, previamente utilizada en el LMR. La implementación de este sistema permitió simplificar la cadena de procesamiento al eliminar módulos analógicos, facilitando así el análisis por coincidencias. La digitalización no solo facilita el procesamiento de señales, sino que también abre la posibilidad de aplicar diferentes metodologías sobre un mismo conjunto de datos.

En cuanto al procesamiento y análisis de datos, se desarrolló un software que facilita la visualización de los espectros obtenidos y ejecuta de manera integral el análisis de coincidencias. Este programa incluye módulos para corregir los efectos de tiempo muerto y el decaimiento radiactivo. Adicionalmente, se implementó un módulo complementario para aplicar el método $4\pi\gamma$ sobre los datos del espectro gamma, herramienta que resulta

de gran utilidad tanto para el sistema desarrollado como para el sistema $4\pi\gamma$ ya operando en el LMR.

Actualmente se están realizando pruebas con un nuevo sistema de adquisición digital (*CAEN Digitizer*), que ofrece la ventaja de visualizar y procesar los datos en tiempo real, permitiendo además la realización de coincidencias en línea.

Paralelamente, se propone seguir modificando las geometrías de la simulación para lograr una mayor compatibilidad en la detección de todos los radionucleidos estudiados, así como utilizar diferentes patrones de fuentes radiactivas puntuales para construir una curva de eficiencia más precisa y representativa. En esta misma línea, se encuentra en desarrollo un programa destinado a ajustar las dimensiones del detector, a partir de una curva de eficiencia experimental obtenida con distintos radionucleidos. Este software no solo permite la caracterización óptima del sistema $4\pi\gamma$, sino que también podrá ser aplicado a otros detectores empleados en el LMR como el detector HPGe, utilizado en espectrometría gamma.

Bibliografía

- [1] P. J. Campion, “*The standardization of radio-isotopes by the beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors*”, International Journal of Applied Radiation and Isotopes, Vol. 4, 1959, p. 232.
- [2] P. Cassette & R. Vatin, “*Experimental evaluation of TDCR models for the 3-PMT liquid scintillation counter*”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, Vol. 312, 1992, p. 95.
- [3] M. Rossi, C. Bulpardo, P. Arenillas, G. Cerutti, & M. C. Ferrari, “*A new digital $4\pi\gamma$ system with a NaI well-type detector at LMR-CNEA*”, Applied Radiation and Isotopes, Vol. 134, 2018, pp. 337–339.
- [4] P. Arenillas & P. Cassette, “*Implementation of the TDCR liquid scintillation method at CNEA-LMR, Argentina*”, Applied Radiation and Isotopes, Vol. 64, Issues 10–11, 2006, pp. 1500–1504.
- [5] ICRU, “*Particle Counting in Radioactivity Measurements*”, International Commission on Radiation Units and Measurements Report 52, 1994, (ISBN 0-913394-51-3).
- [6] A. P. Baerg, “*The efficiency extrapolation method in coincidence counting*”, Nuclear Instruments and Methods, Vol. 1996, 1996, pp. 112–143.
- [7] G. A. Brinkman & A. H. W. Aten Jr., “*Absolute standardization with a NaI(Tl) crystal: V. Calibration of isotopes with complex decay schemes*”, International Journal of Applied Radiation and Isotopes, Vol. 16, 1965, pp. 177–181.
- [8] W. Mannhart & H. Vonach, “*Absolute calibration of a well-type NaI-detector to an accuracy of 0.3 %–0.1 %*”, Nuclear Instruments and Methods, Vol. 136, 1976, pp. 109–117.
- [9] C. Ballaux, “*High-efficiency gamma-ray detection systems for radionuclides metrology*”, International Journal of Applied Radiation and Isotopes, Vol. 34, 1983, pp. 493–499.

- [10] G. Winkler & A. Pavlik, “*Some aspects of activity measurements with NaI(Tl)*”, International Journal of Applied Radiation and Isotopes, Vol. 34, 1983, [páginas no especificadas].
- [11] C. Thiam, C. Bobin, F. J. Maringer, V. Peyres, & S. Pommé, “*Assessment of the uncertainty budget associated with $4\pi\gamma$ counting*”, Metrologia, Vol. 52, 2015, pp. 97–107.
- [12] R. Vatin, “*Activity measurement of biomedical radionuclides with complex decay schemes by the $4\pi\gamma$ method*”, International Journal of Nuclear Medicine and Biology, Vol. 10, Issues 2–3, 1983, pp. 153–157.
- [13] Y. Kawada, M. Ohtuka, Q.-W. Wang, & Y. Hino, “*Absolute radioactivity measurements by the use of a $4\pi\beta$ - $4\pi\gamma$ detector configuration*”, Applied Radiation and Isotopes, Vol. 60, Issues 2–4, 2004, pp. 357–362.
- [14] Y. Nedjadi, C. J. Bailat, & F. O. Bochud, “*Primary activity measurements with a $4\pi\beta$ - $4\pi\gamma$ coincidence counting system*”, Applied Radiation and Isotopes, Vol. 70, Issue 1, 2012, pp. 249–256.
- [15] J. B. Birks, “*The theory and practice of scintillation counting*”, Pergamon Press, 1964.
- [16] G. F. Knoll, “*Radiation Detection and Measurement*”, 4th ed., Wiley, Hoboken, 2010.
- [17] R. L. Craun & D. L. Smith, “*Analysis of response data for several organic scintillators*”, Nucl. Instrum. Meth., Vol. 80, 1970, p. 239.
- [18] G. Choppin, J.-O. Liljenzin, & J. Rydberg, “*Radiochemistry and Nuclear Chemistry*”, 3rd ed., Elsevier, 2002.
- [19] P. W. Nicholson, “*Nuclear Electronics*”, John Wiley & Sons, 1974 (ISBN: 0-471-62385-2).
- [20] C. Bulpardo, “*Implementación de un Sistema Digital de Coincidencias, Anticoincidencias y Conteo por Correlación*”, Tesis de Licenciatura en Ciencias Físicas, FCEyN, UBA, 2010.
- [21] A. Gandy, “*Mesure absolue de l'activité des radionuclides par la méthode des coïncidences bêta-gamma à l'aide de détecteurs de grande efficacité. Etude des coïncidences instrumentales*”, Int. J. Appl. Radiat. Isot., Vol. 11, 1961, p. 75.
- [22] A. Gandy, “*Mesure absolue de l'activité des radionuclides par la méthode des coïncidences bêta-gamma à l'aide de détecteurs de grande efficacité–Corrections de temps morts*”, Int. J. Appl. Radiat. Isot., Vol. 13, 1962, p. 501.

- [23] J. W. Müller, “*Sur la perte de coincidences vraies par un temps mort cumulatif*”, Rapport BIPM-77/2, Bureau International des Poids et Mesures, Sèvres Cedex, 1977, 4 p.
- [24] F. Salvat, J. M. Fernández-Varea, J. Baró, & J. Sempau, “*PENELOPE: An Algorithm and Computer Code for Monte Carlo Simulation of Electron-Photon Showers*”, CIEMAT Report No. 799, 1996.
- [25] B. Chauvenet, J. Morel, & J. Legrand, “*Intercomparison of the Measurement of Photon Emission Rates of X and γ Rays Emitted by Barium 133*”, Report ICRM-S-6, LMRI, 1980, 53 p.
- [26] E. Funck & A. N. Larsen, “*The influence from low energy x-rays and Auger electrons on $4\pi\beta\gamma$ coincidence measurements of electron-capture-decaying nuclides*”, Int. J. Appl. Radiat. Isot., Vol. 34, No. 3, 1983, pp. 565–569.
- [27] A. Rytz, “*International comparison of activity measurements of a solution of ^{133}Ba* ”, Technical Report, Bureau International des Poids et Mesures, Sèvres, March 1984 (published 1985), 4 p.
- [28] B. R. S. Simpson & W. M. van Wyngaardt, “*Absolute activity of ^{133}Ba by liquid scintillation coincidence counting using the $4\pi(e,X)\gamma$ extrapolation technique*”, Appl. Radiat. Isot., Vol. 66, Nos. 6–7, 2008, pp. 929–933.
- [29] M. Havelka & J. Sochorová, “*Standardisation of ^{124}Sb and ^{152}Eu using software coincidence counting system*”, Appl. Radiat. Isot., Vol. 68, 2010, pp. 1330–1334.
- [30] Y. Nedjadi, C. Bailat, & F. Bochud, “*Primary activity measurements with a $4\pi\beta$ - $4\pi\gamma$ coincidence counting system*”, Appl. Radiat. Isot., Vol. 70, No. 1, 2012, pp. 249–256.
- [31] Y. Unno, T. Sanami, S. Sasaki, M. Hagiwara, & A. Yunoki, “*Evaluation of absolute measurement using a 4π plastic scintillator for the $4\pi\beta\gamma$ coincidence counting method*”, Appl. Radiat. Isot., Vol. 134, 2018, pp. 302–306.
- [32] M. T. Duran, Y. Nedjadi, F. Juget, F. Bochud, & C. Bailat, “*Fast digital $4\pi\beta$ - $4\pi\gamma$ coincidence counting with offline analysis at IRA*”, Appl. Radiat. Isot., Vol. 134, 2018, pp. 329–336.
- [33] T. S. Park, J. M. Lee, & H. Y. Hwang, “*Standardization of ^{152}Eu and ^{88}Y* ”, Appl. Radiat. Isot., Vol. 56, 2002, pp. 275–280.
- [34] T. Yamada, Y. Nakamura, Y. Kawada, Y. Sato, & Y. Hino, “*Standardization of ^{152}Eu and ^{154}Eu by $4\pi\beta$ - $4\pi\gamma$ coincidence method and $4\pi(\beta + \gamma)$ integral counting*”, Appl. Radiat. Isot., Vol. 64, 2006, pp. 1220–1224.

- [35] N. K. Şahin & S. Ergün, “*Development of a calculation software for $4\pi\beta\text{-}\gamma$ digital coincidence counting and its application to ^{60}Co and ^{152}Eu activity measurements*”, *Appl. Radiat. Isot.*, Vol. 172, 2021, 109686.
- [36] Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB), “*Tablas de Datos Nucleares Recomendados*”, 2025, Disponible: <https://www.lnhb.fr/en/nuclear-data/recommended-data/> [Consultado: 1 April 2025].
- [37] O. Sima, “*Accurate calculation of total efficiency of Ge well-type detectors suitable for efficiency calibration using common standard sources*”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, Vol. 450, 2000, pp. 98–108.
- [38] S. Pommé, J. Camps, G. Sibbens, T. Vidmar, & Y. Spasova, “*Some modifications to Sima’s model for total efficiency calculation of well-type detectors*”, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Vol. 281, 2009, pp. 143–147.

A Preparación de fuentes

En la Figura A.1 se presenta un esquema del procedimiento experimental empleado en el laboratorio para la preparación de fuentes radiactivas, ya sea en formato puntual o en viales de centelleo líquido, a partir de soluciones patrón diluidas.

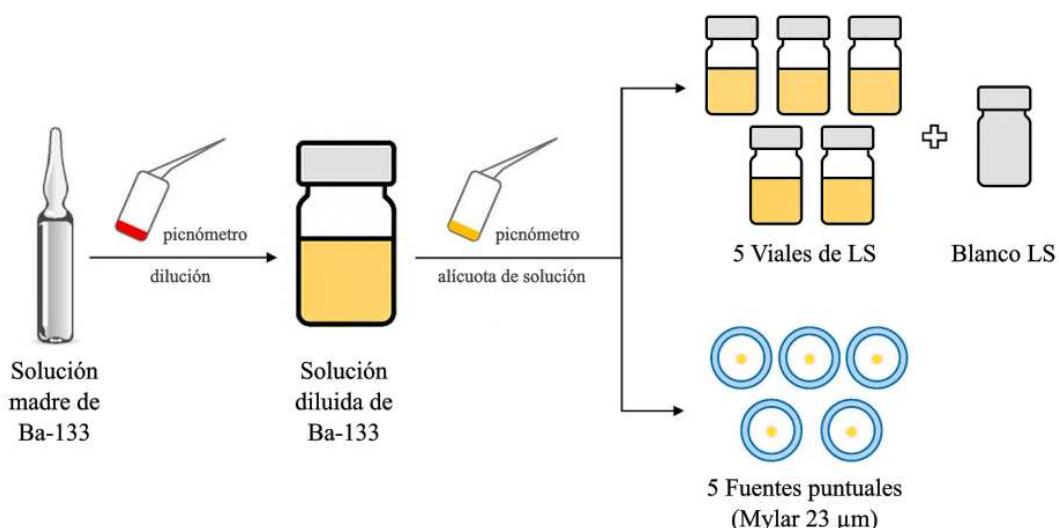


Figura A.1: Esquema del procedimiento utilizado para la preparación de fuentes puntuales y viales de centelleo líquido a partir de una solución diluida de ^{133}Ba .

Para la preparación de fuentes puntuales, se utilizan folias de Mylar de aproximadamente 4×4 cm, seleccionando el espesor del material según la energía gamma del radionucleido. Se utiliza Mylar de 12 μm para energías menores o iguales a 150 keV y de 23 μm para energías superiores. En el lado opaco del Mylar, que contiene adhesivo, se imprime el nombre del radionucleido, el número identificador de la fuente (F14-19) y un círculo que indica la posición de depósito. Se calcula la masa de solución a depositar en función de la concentración de actividad y la actividad deseada, y se realiza la deposición gravimétrica de una gota sobre el soporte, seguida de su secado bajo lámpara. Por último, la fuente se sella colocando otra folia de Mylar por encima, enfrentando los lados adhesivos, y se plastifica térmicamente para garantizar su sellado.

En el caso de mediciones por TDCR, se preparan 5 viales de centelleo líquido. Cada vial de vidrio borosilicatado (20 mL) se llena con 12 mL de cóctel centellador Ultima GoldTM AB. Posteriormente, se agregan alícuotas gravimétricas de solución diluida de

^{133}Ba , contenida en un medio portador de BaCl_2 en HCl 0,1 mol/L, con masas comprendidas entre 10 mg y 20 mg. Además, se prepara un vial adicional con solo líquido centellador para ser utilizado como blanco para la corrección de la tasa de fondo.

B Incertidumbres

B.1 Incertidumbre en la estadística de conteo

Las incertidumbres en las tasas de conteo y en los respectivos fondos son determinados de forma muy sencilla, propagando la incertidumbre en el tiempo de medición, t_{med} y la desviación estándar σ_ρ del promedio ρ de la tasa de conteos ρ_i , de la serie de N intervalos temporales:

$$\Delta\rho_{\beta,\gamma,c} = \sqrt{\left(\frac{1}{t_{med}}\frac{\sigma_\rho}{\sqrt{N}}\right)^2 + \left(\frac{-\rho_{\beta,\gamma,c}}{t_{med}^2}\Delta t_{med}\right)^2}$$

La desviación estándar aparece dividida por el número de intervalos, N , ya que su contribución a la incertidumbre total disminuirá al promediar todas las tasas de conteo obtenidas.

B.2 Incertidumbre en las variables temporales dependientes del TAR

Las incertidumbres en el tiempo de retraso (δ) y el tiempo de medición, se consideran iguales a la mínima resolución del TAR, esto es 10^{-8} segundos.

B.3 Incertidumbre en la extrapolación

La subrutina *analisis* del programa *DCC* calcula las incertidumbres σ_y y σ_x de las expresiones

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \quad \text{y} \quad \frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma}$$

Estas incertidumbres están dadas por:

$$\sigma_x = \sqrt{\left(\frac{1}{N_c} \Delta N_\gamma\right)^2 + \left(\frac{-N_\gamma}{N_c^2} \Delta N_c\right)^2}$$

$$\sigma_y = \sqrt{\left(\frac{N_\gamma}{N_c} \Delta N_\beta\right)^2 + \left(\frac{N_\beta}{N_c} \Delta N_\gamma\right)^2 + \left(\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c^2} \Delta N_c\right)^2}$$

Donde,

$$\Delta N_\beta = \sqrt{\left(\frac{\partial N_\beta}{\partial t_\beta} \Delta t_\beta\right)^2 + \left(\frac{\partial N_\beta}{\partial t_m} \Delta t_m\right)^2 + \left(\frac{\partial N_\beta}{\partial F_\beta} \Delta F_\beta\right)^2}$$

$$\Delta N_\gamma = \sqrt{\left(\frac{\partial N_\gamma}{\partial t_\gamma} \Delta t_\gamma\right)^2 + \left(\frac{\partial N_\gamma}{\partial t_m} \Delta t_m\right)^2 + \left(\frac{\partial N_\gamma}{\partial F_\gamma} \Delta F_\gamma\right)^2}$$

$$\begin{aligned} \Delta N_c = & \left[\left(\frac{\partial N_c}{\partial t_\beta} \Delta t_\beta\right)^2 + \left(\frac{\partial N_c}{\partial t_\gamma} \Delta t_\gamma\right)^2 + \left(\frac{\partial N_c}{\partial t_c} \Delta t_c\right)^2 \right. \\ & + \left(\frac{\partial N_c}{\partial N_\beta} \Delta N_\beta\right)^2 + \left(\frac{\partial N_c}{\partial N_\gamma} \Delta N_\gamma\right)^2 + \left(\frac{\partial N_c}{\partial t_m} \Delta t_m\right)^2 \\ & \left. + \left(\frac{\partial N_c}{\partial F_\gamma} \Delta F_\gamma\right)^2 + \left(\frac{\partial N_c}{\partial \delta} \Delta \delta\right)^2 + \left(\frac{\partial N_c}{\partial F_c} \Delta F_c\right)^2 \right]^{1/2} \end{aligned}$$

B.4 Incertidumbre debida a correcciones por decaimiento (u_{Dec})

Cuando la concentración de actividad medida C_{med} deba referenciarse a una fecha dada, el valor medido debe corregirse según:

$$C_{ref} = C_{med} \cdot e^{-\frac{\ln(2)\Delta t}{T_{1/2}}} \quad (B.1)$$

donde C_{ref} es la concentración de actividad a la fecha de referencia, $T_{1/2}$ es el período de semidesintegración del radionucleido, y Δt es el tiempo transcurrido entre la fecha de referencia y la fecha de medición. La contribución a la incertidumbre debido a correcciones por decaimiento se calcula por propagación de errores en:

$$u_{dec}^2 = e^{-\frac{2\ln(2)t}{T_{1/2}}} \left\{ u_{C_{med}}^2 + C_{med}^2 \left[\left(\frac{\ln(2)\Delta t}{T_{1/2}^2}\right)^2 u_{T_{1/2}}^2 + \left(\frac{\ln(2)}{T_{1/2}}\right)^2 u_{\Delta t}^2 \right] \right\}$$

donde $u_{T_{1/2}}$ es la incertidumbre en el período de semidesintegración, cuyo valor se extrae de la base de datos del *Bureau International des Poids et Mesures* (BIPM) y $u_{\Delta t}$ es la

incertidumbre en la determinación del tiempo transcurrido entre la fecha de medición y la fecha de referencia. La incertidumbre relativa ε_{Dec} debido a la corrección por decaimiento se expresa como:

$$\varepsilon_{dec}^2 = \varepsilon_{C_{med}}^2 + \left[\frac{\ln(2) \cdot \Delta t}{T_{1/2}} \right]^2 \cdot [\varepsilon_{T_{1/2}}^2 + \varepsilon_{\Delta t}^2]$$

donde $\varepsilon_{C_{med}}$, $\varepsilon_{T_{1/2}}$ y $\varepsilon_{\Delta t}$ son las incertidumbres relativas en C_{med} , $T_{1/2}$ y Δt respectivamente. La última componente es, en la inmensa mayoría de los casos, despreciable.

B.5 Incertidumbre en la masa de la fuente u_m

La masa de la gota de solución depositada se determina por diferencia de pesadas. Se consideran las siguientes contribuciones a la incertidumbre:

- Incertidumbre del proceso:
 - Repetibilidad u_{rep} : 0,0053 mg determinada como la desviación estándar de una serie de 10 pesadas con una pesa de 20g
 - Resolución u_{res} : se determina como la mínima unidad de lectura dividido por $\sqrt{12}$ (distribución uniforme) es decir $(0,01/\sqrt{12})$ mg
 - Empuje u_{emp} : Para una gota de 10mg, de solución acuosa a 1025 hPa, 70 % de humedad y 20°C, la contribución a la incertidumbre debido al empuje es 0,00074 mg
- Incertidumbre u_{cal} en la calibración de la balanza, cuyo valor se extrae del certificado de calibración: 0,029 mg

$$u_m = \sqrt{u_{rep}^2 + u_{res}^2 + u_{emp}^2 + u_{cal}^2}$$

La incertidumbre en una pesada se obtiene como la raíz cuadrada de la suma cuadrática de las contribuciones mencionadas, es decir:

$$u_{pes} = \sqrt{u_{rep}^2 + u_{res}^2 + u_{emp}^2 + u_{cal}^2} = 0,030 \text{ mg}$$

La masa de la alícuota depositada en la fuente radiactiva se determina por diferencia de pesadas y por lo tanto, la incertidumbre u_m se determina como:

$$u_m = \sqrt{2 \cdot u_{pes}^2} = 0,042 \text{ mg}$$

B.6 Incertidumbre total combinada

La incertidumbre en la concentración de actividad para una fecha de referencia a un tiempo t de la medición, está dada entonces por la expresión:

$$\Delta C_A = \frac{1}{M} \left[e^{-\frac{2 \ln(2) \Delta t}{T_{1/2}}} \left\{ \left(\frac{m}{\sqrt{n-2}} \sqrt{\frac{1}{R^2} - 1} \cdot \frac{\sum_{i=1}^n w_i x_i^2}{\sum_{i=1}^n w_i} \right)^2 + \sigma_y^2 \right. \right. \\ \left. \left. + \left(A_{med} \cdot \frac{\ln(2) \Delta t}{T_{1/2}^2} u_{T_{1/2}} \right)^2 \right\} + \left(\frac{A}{M} u_M \right)^2 \right]^{1/2}$$

donde n es el número de condiciones de eficiencia evaluadas, m es la pendiente de la recta de ajuste y M es la masa de solución depositada. El primer término entre paréntesis corresponde a la incertidumbre en la extrapolación. Las incertidumbres de la estadística de conteo y de las correcciones por tiempo muerto, tiempo de resolución, delay y tiempo de medición están incluidas en el término σ_y , que es la incertidumbre en la actividad aparente, $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}$, en la condición de máxima eficiencia. El último término entre paréntesis corresponde a la incertidumbre de la corrección por decaimiento, mientras que el último término de la raíz es debido a la incertidumbre de la masa M .

B.7 Incertidumbre del promedio pesado

Para determinar el valor final de concentración de actividad de la solución patrón, se realizan mediciones independientes sobre distintas fuentes preparadas a partir de la misma disolución. Cada una de estas mediciones proporciona un valor de concentración de actividad C_{A_i} , acompañado de su correspondiente incertidumbre σ_i .

Dado que los valores de actividad de las fuentes son estadísticamente independientes pero provienen de la misma solución, el valor representativo de concentración de actividad se obtiene mediante un promedio ponderado por sus incertidumbres, en el cual las mediciones con menor incertidumbre tienen mayor influencia. Este promedio se calcula de la siguiente forma:

$$\bar{C}_A = \frac{\sum_{i=1}^n \lambda_i C_{A_i}}{\sum_{i=1}^n \lambda_i}$$

donde los pesos λ_i se definen como el inverso del cuadrado de la incertidumbre asociada a cada medición:

$$\lambda_i = \frac{1}{\sigma_i^2}$$

La incertidumbre estándar asociada al valor promedio ponderado de concentración,

denotada como $\sigma_{\bar{C}_A}$, se determina mediante:

$$\sigma_{\bar{C}_A} = \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^n \lambda_i}}$$

Notar que en el caso particular en que todas las incertidumbres sean iguales ($\sigma_i = \sigma$), la expresión anterior se reduce a la desviación estándar del promedio:

$$\sigma_{\bar{C}_A} = \frac{\sigma}{\sqrt{n}}$$

C Software DCC2

En esta sección se describe brevemente el procedimiento de uso de la pestaña DCC2. Al iniciar la configuración, el usuario selecciona primero el radionucleido de interés desde un menú desplegable, acción que actualiza automáticamente el campo de tiempo de vida media. Este valor puede visualizarse en diferentes unidades (años, días, horas o segundos) mediante un selector integrado.

Para el cálculo de concentración de actividad, la interfaz incluye un campo específico donde se ingresa la masa de la fuente radiactiva, acompañado de un selector de unidades que permite trabajar con miligramos o gramos. Justo debajo, dos entradas de fecha, medición y referencia, habilitan el cálculo automático del decaimiento radiactivo entre ambos puntos temporales, función que se ejecuta mediante el botón **Decay** una vez completado el análisis principal.

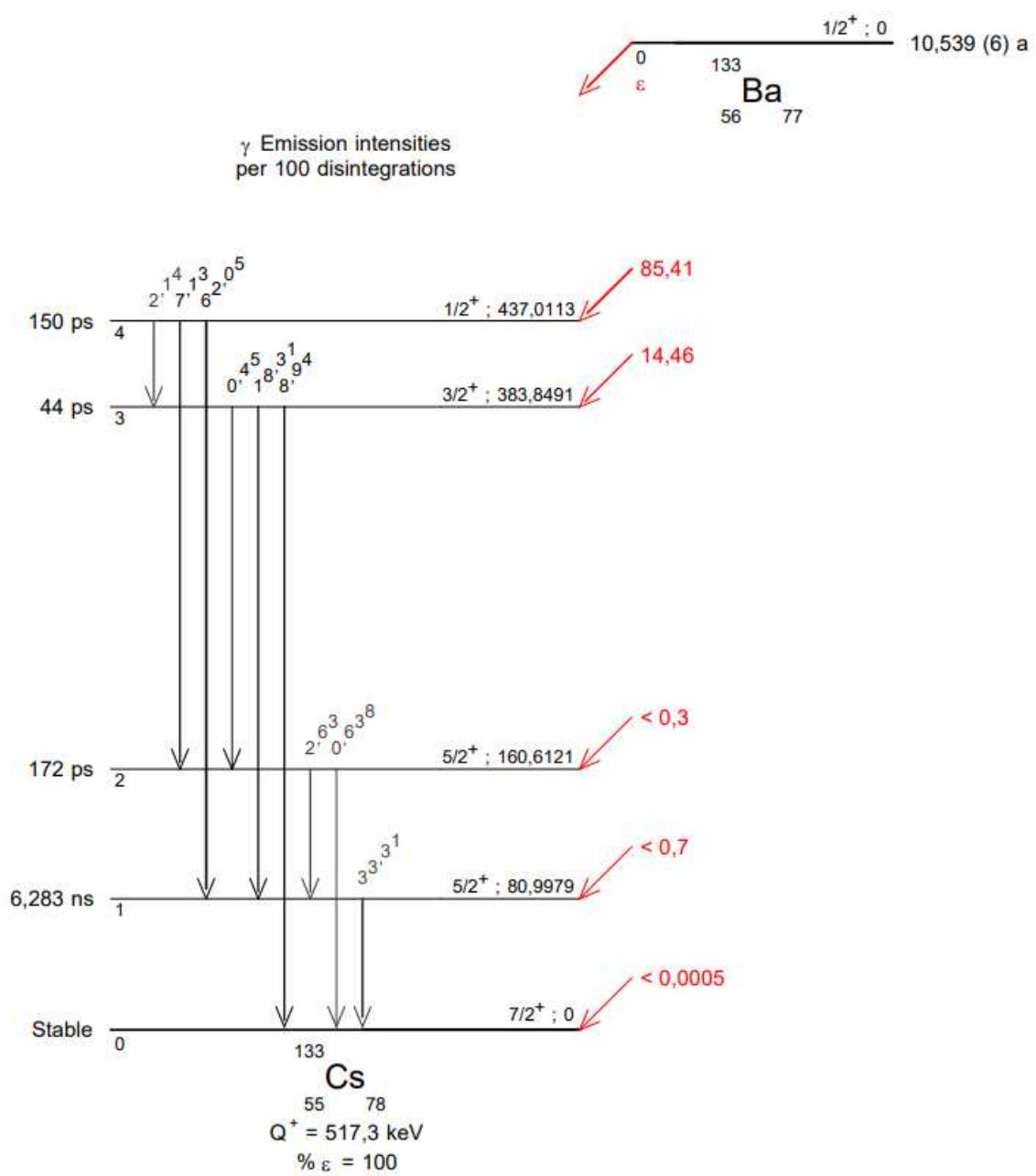
La configuración temporal del análisis se establece mediante tres parámetros, el número de intervalos en que se dividirá el conjunto de datos original (por defecto 20), la duración de cada subintervalo en segundos (típicamente 60 s), y el tiempo muerto extensible del sistema (ej. 10 μ s). Adicionalmente, el campo *Resolution Time* define la ventana temporal para identificar coincidencias entre canales (usualmente 5 μ s), mientras que el valor de *Delay* muestra automáticamente el retraso temporal calculado entre los pulsos β y γ durante la carga de archivos, el cual en el ejemplo mostrado es de 0.33 μ s.

Los rangos de energía para ambos canales se sincronizan automáticamente con las selecciones realizadas en la pestaña **SpectraUI**. El rango beta (ej. 1000-2000) y la ventana gamma (ej. 2000-3000) aparecen aquí como valores de solo lectura, asegurando consistencia en el análisis. Únicamente el campo *Steps* requiere entrada manual, especificando el número de pasos para el barrido de eficiencias entre los umbrales inferior y superior del espectro β .

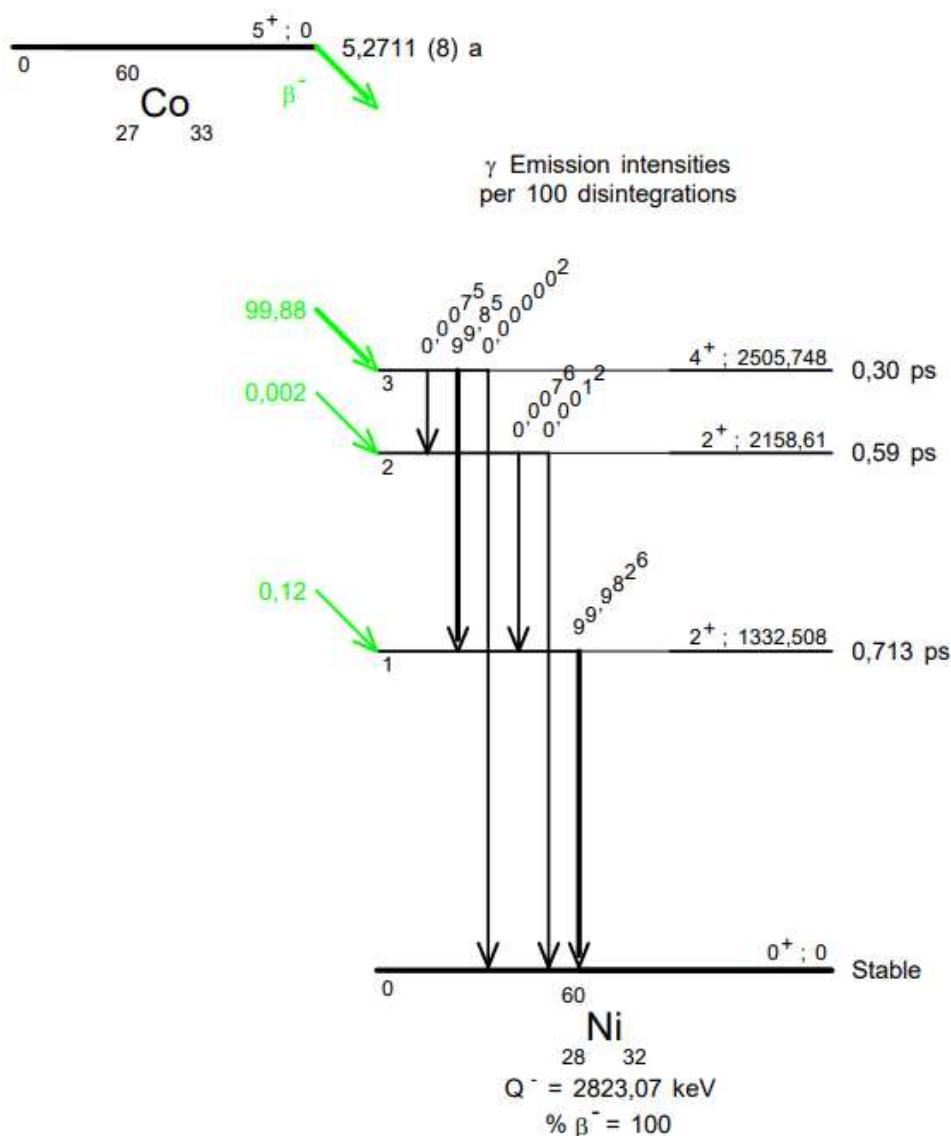
Para iniciar el cálculo por extrapolación se presiona el botón **RUN**, que ejecuta el algoritmo completo de extrapolación.

D Esquemas de decaimiento

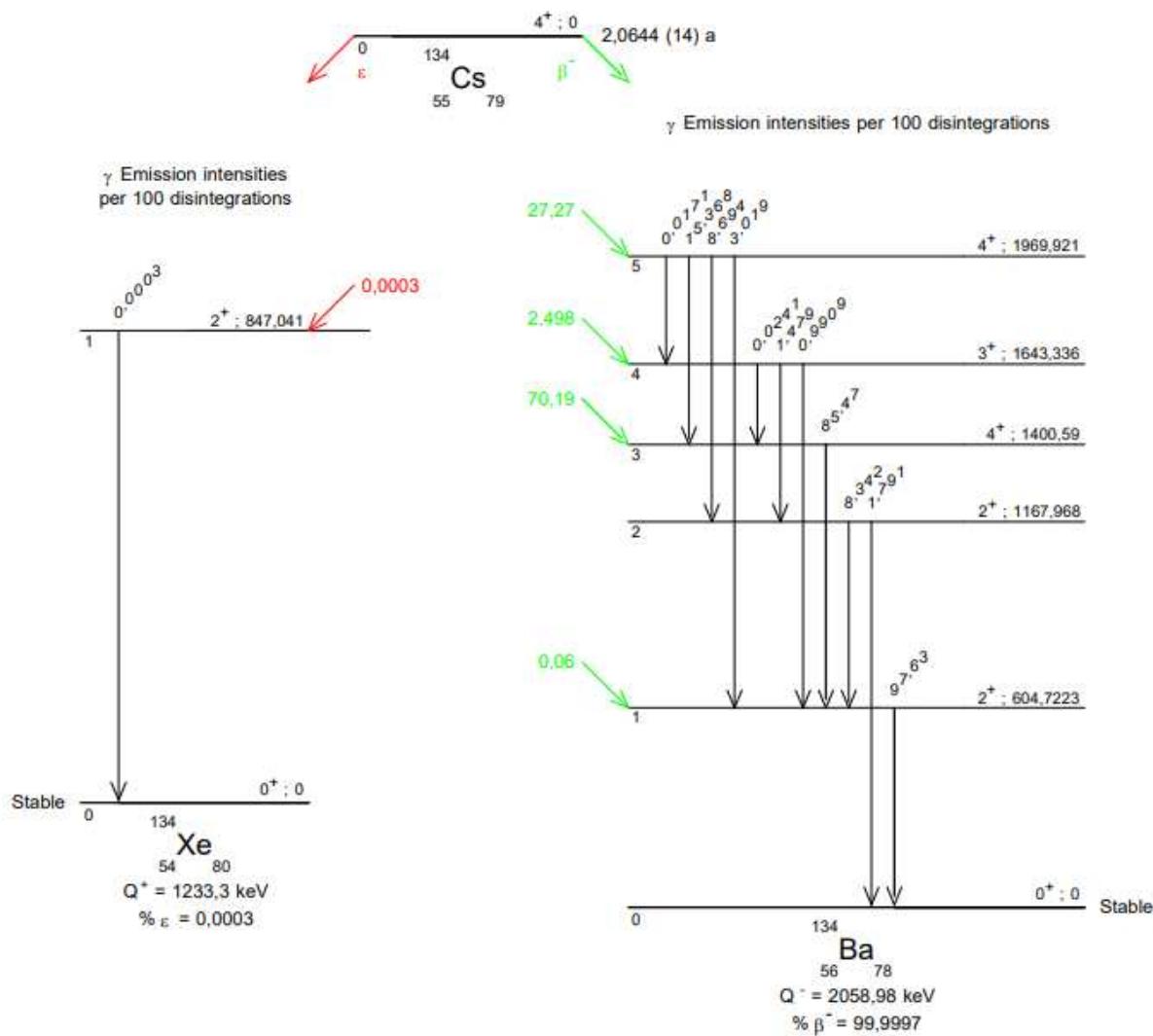
D.1 ^{133}Ba



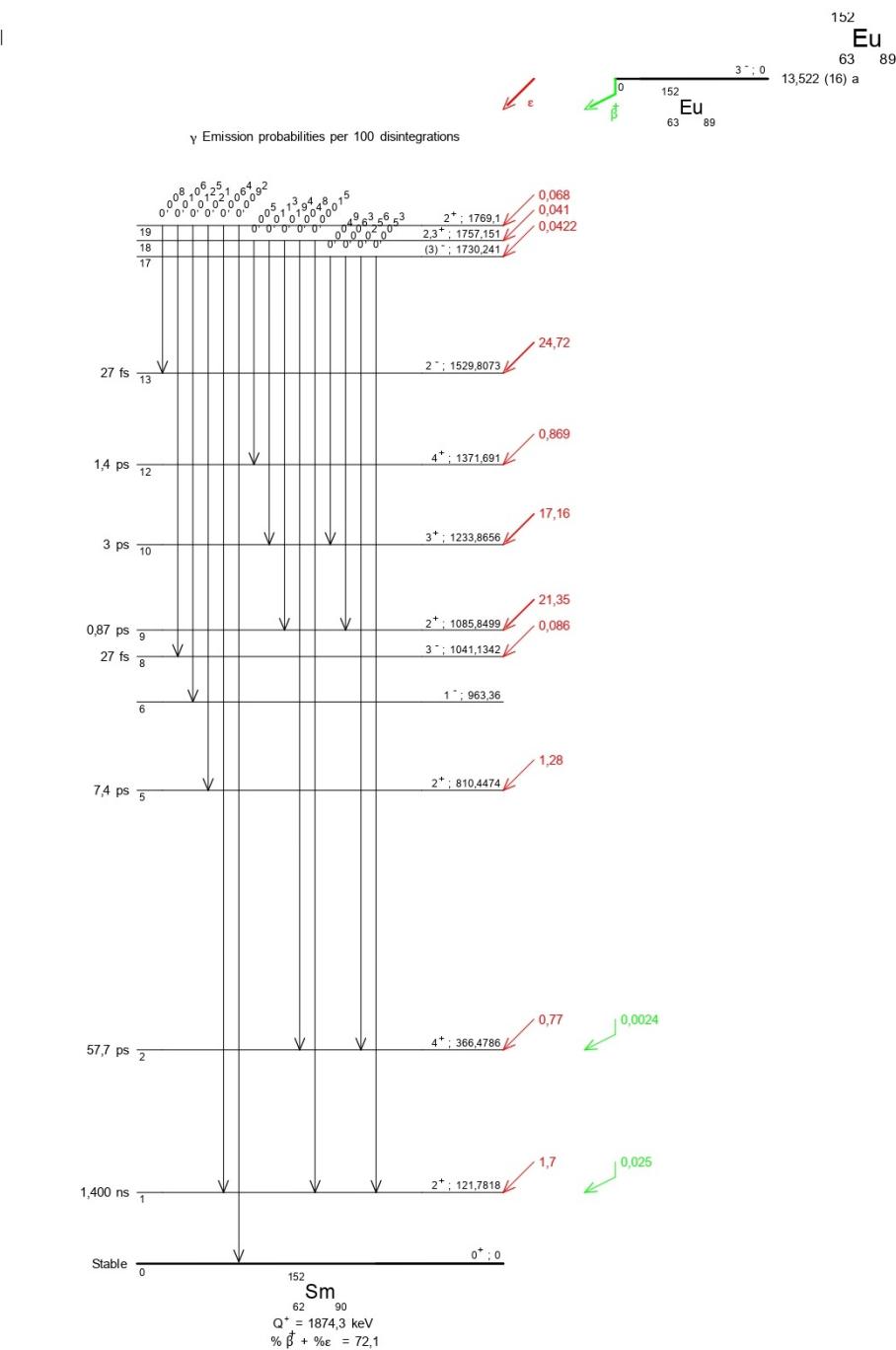
D.2 ^{60}Co

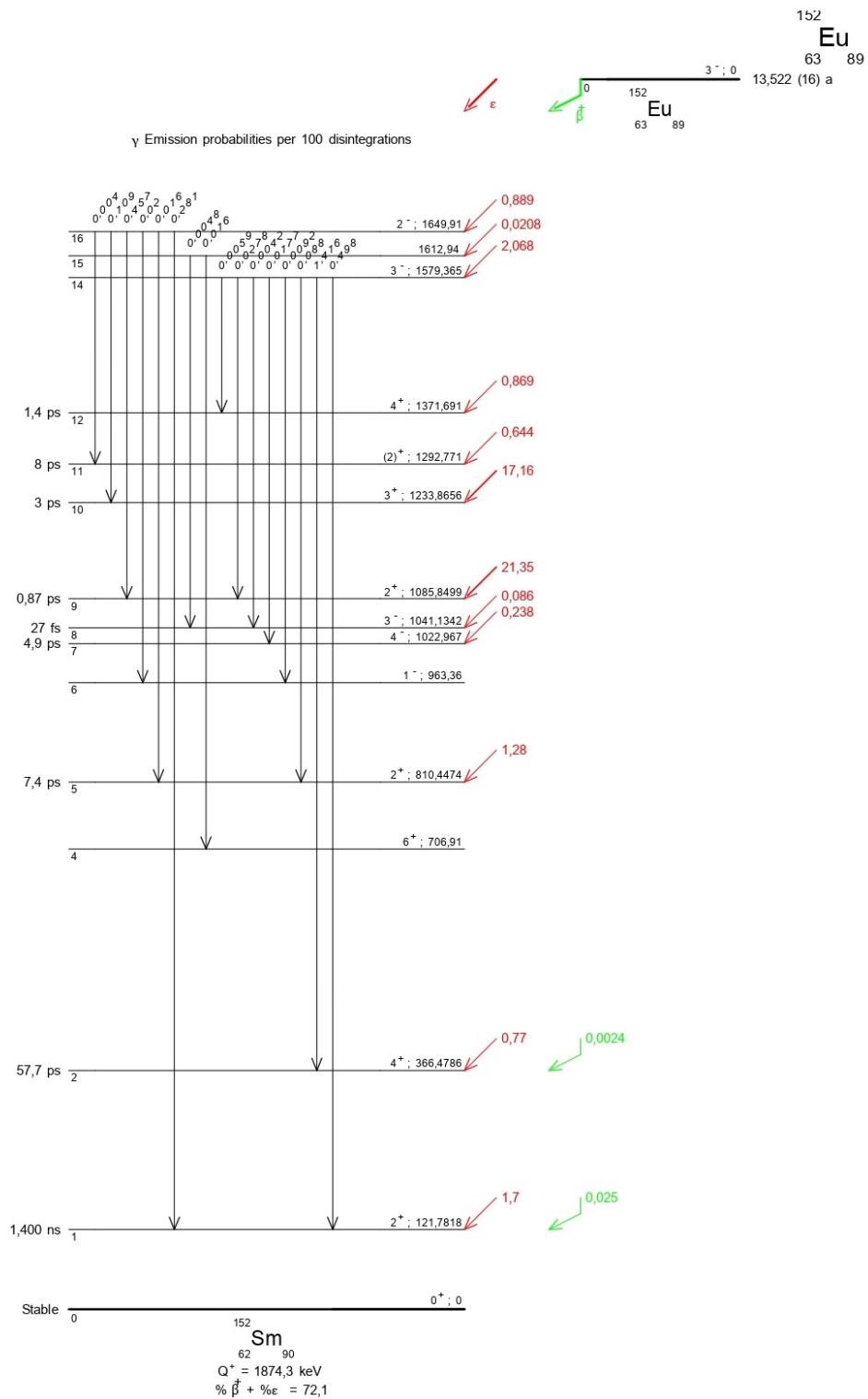


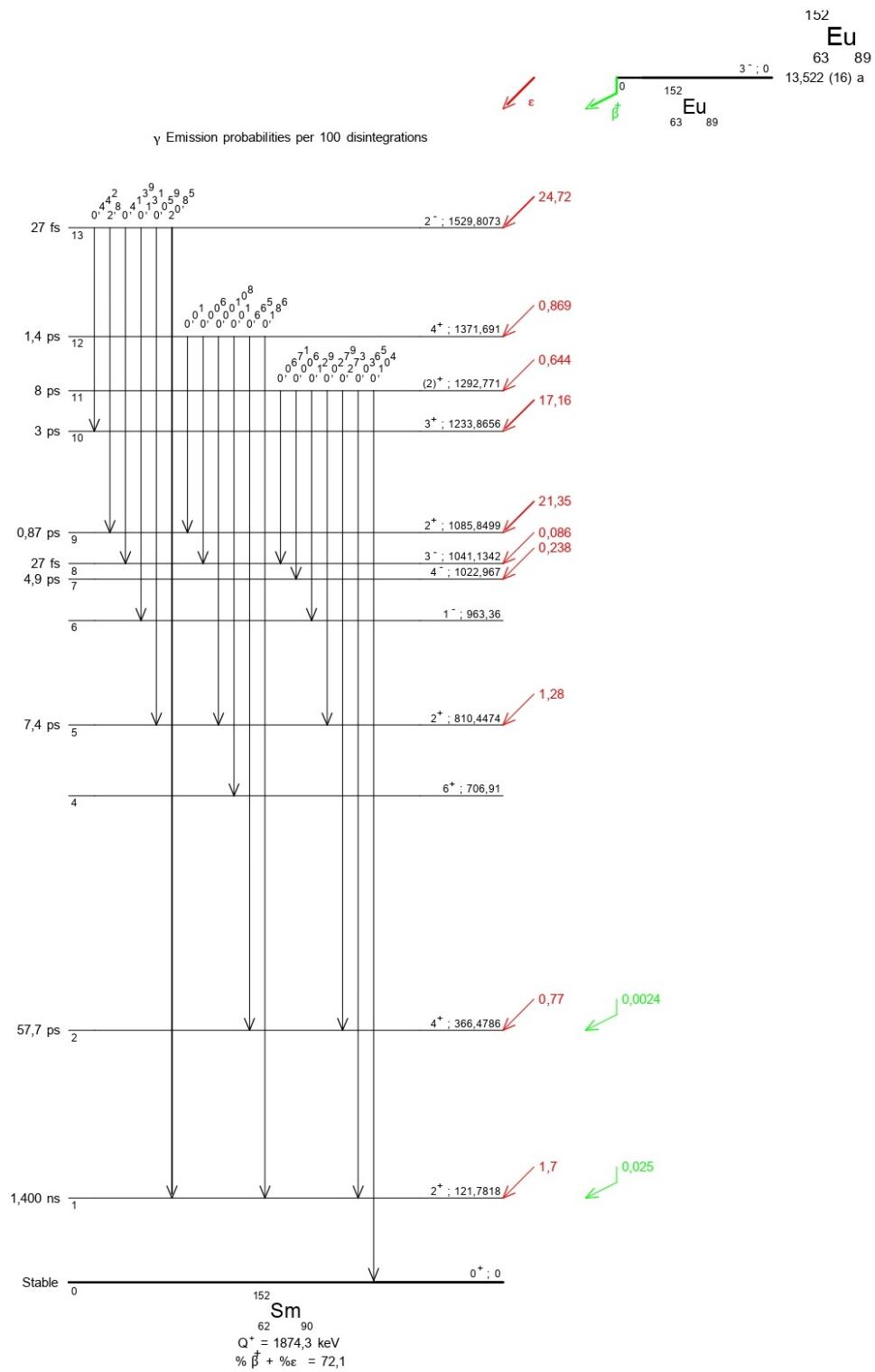
D.3 134Cs

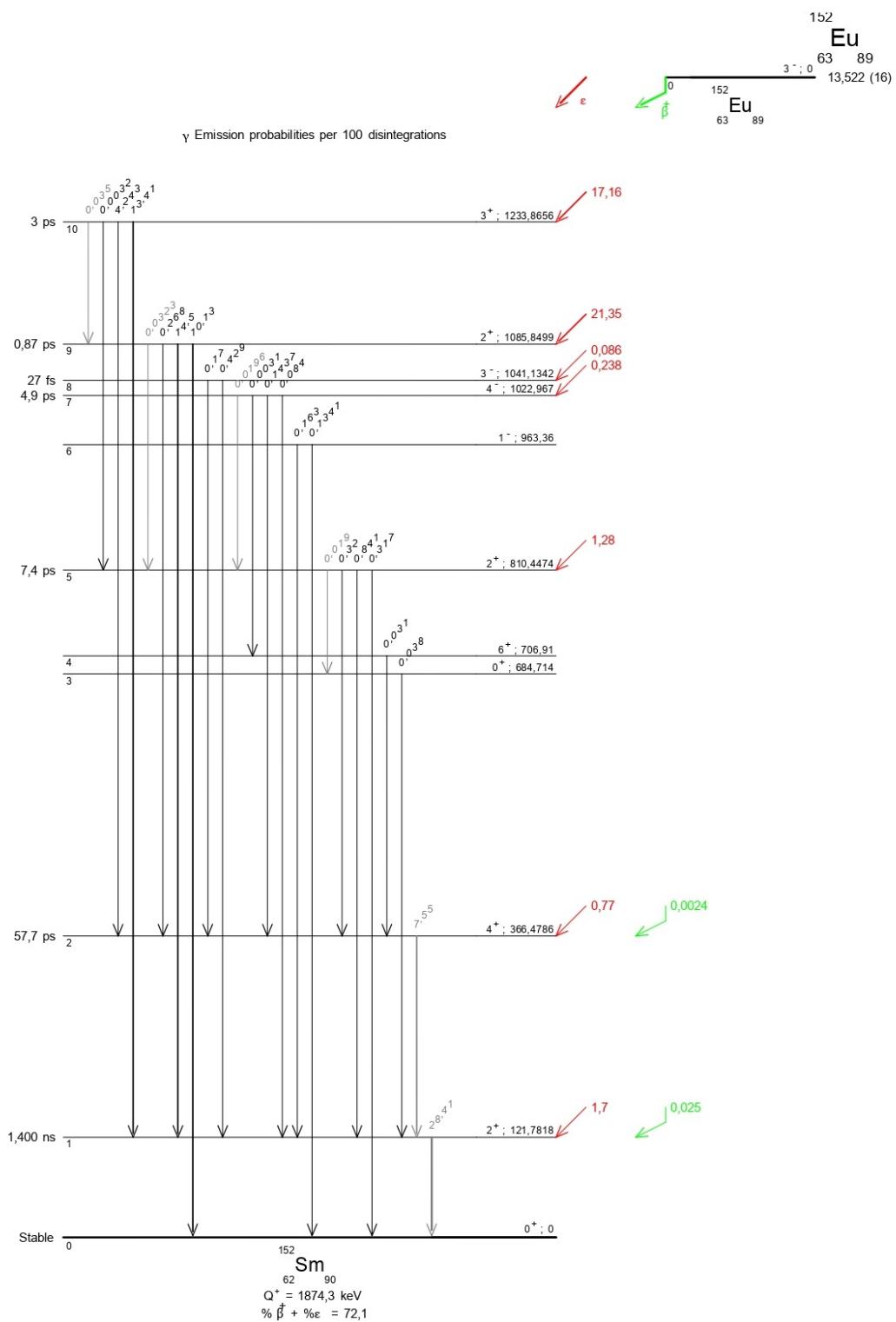


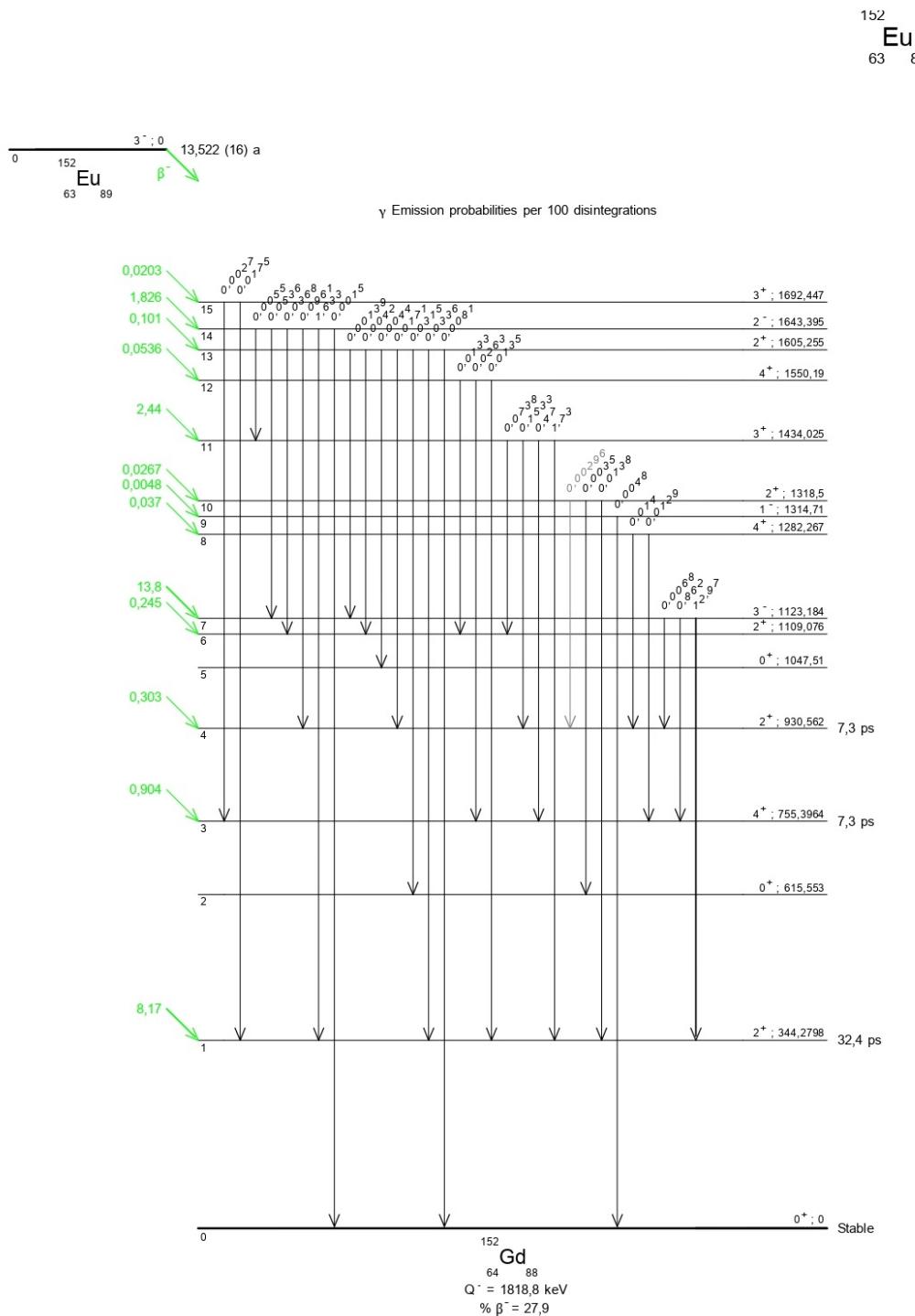
D.4 ^{152}Eu

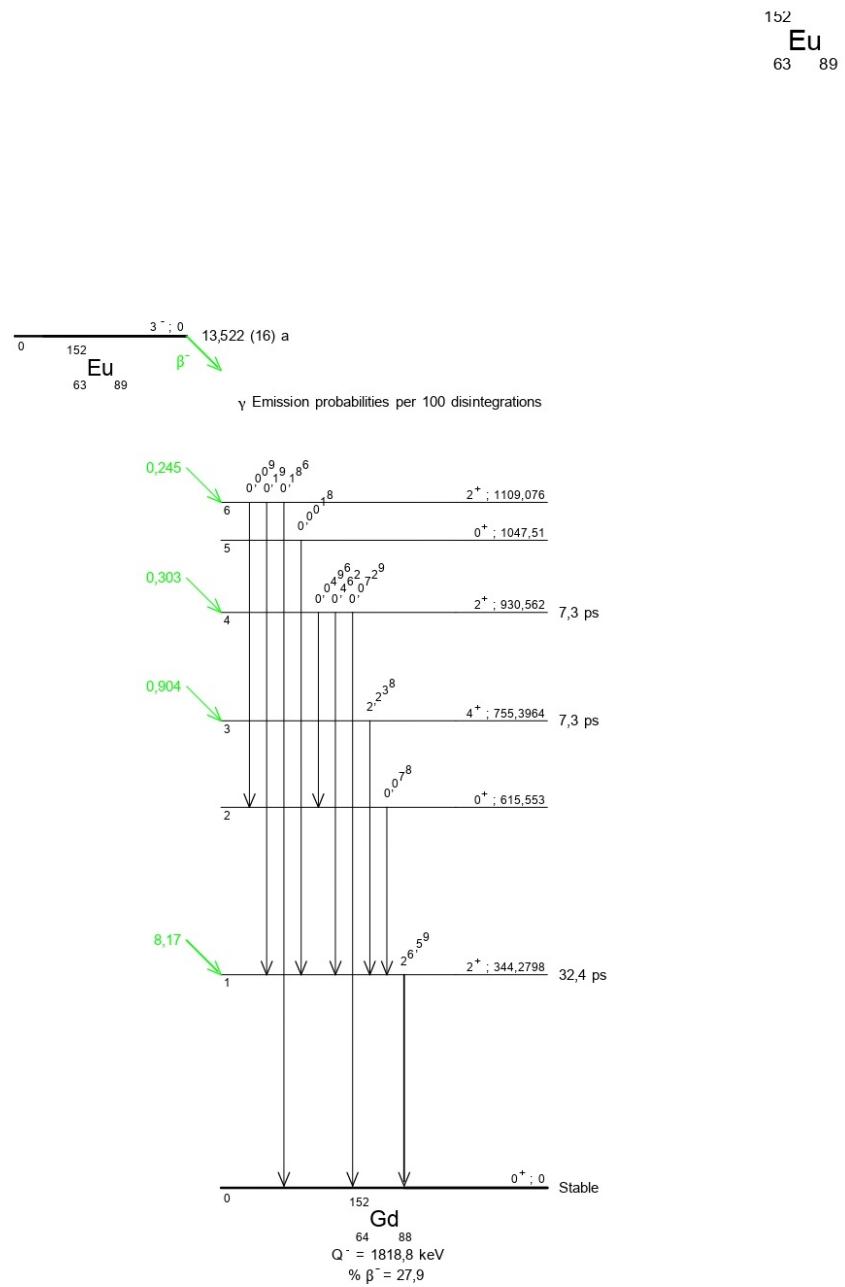












Tesis disponible bajo Licencia: Creative Commons, Atribución – No Comercial – Compartir Igual (by-nc-sa) 2.5 Argentina Buenos Aires, 2025.