

Trabajo Fin de Máster en Física Nuclear

# Caracterización de materiales centelleadores para dispositivos de fusión usando haces de iones negativos

Jairo Antonio Villegas Domínguez

Universidad de Sevilla

Septiembre de 2019



Tutores: Francisco Javier García López y María del Carmen Jiménez Ramos

*Departamento de Física Atómica, Molecular y Nuclear*

*Universidad de Sevilla*

# Índice

<b>1</b>	<b>Introducción</b>	<b>4</b>
1.1	Perspectivas energéticas actuales y cambio climático. . . . .	4
1.2	¿Por qué energía de fusión? . . . . .	4
<b>2</b>	<b>Física del Tokamak</b>	<b>7</b>
2.1	Condiciones termonucleares: El criterio de Lawson . . . . .	7
2.2	Confinamiento magnético del plasma . . . . .	7
2.3	Sistemas de calentamiento . . . . .	9
2.4	Pérdida de iones rápidos por fluctuaciones magnetohidrodinámicas . . . . .	10
<b>3</b>	<b>Caracterización de materiales centelleadores</b>	<b>12</b>
3.1	El centelleador como detector de partículas cargadas pesadas [22] . . . . .	12
3.2	Caracterización de materiales centelleadores por su ioluminiscencia: El modelo de Birks . . . . .	13
3.3	Aplicación en dispositivos de fusión: FIELDS . . . . .	14
<b>4</b>	<b>Montaje experimental</b>	<b>15</b>
4.1	La fuente de iones (SNICS) . . . . .	16
4.2	La cámara de vacío . . . . .	17
4.3	La fibra óptica y el espectrómetro [15, 32] . . . . .	19
4.4	Montaje para la medida de la corriente incidente . . . . .	20
<b>5</b>	<b>Método de análisis de los resultados</b>	<b>21</b>
5.1	Curva de calibración . . . . .	21
5.2	Corrección del ruido de fondo . . . . .	21
5.3	Cálculo de la tasa absoluta de fotones y el espectro de emisión . . . . .	22
5.4	Cálculo del rendimiento absoluto experimental . . . . .	22
<b>6</b>	<b>Resultados y discusión</b>	<b>24</b>
6.1	Espectros de emisión de las muestras centelleadoras en incidencia normal . . . . .	24
6.2	Rendimiento absoluto de las muestras centelleadoras en incidencia normal . . . . .	27
6.2.1	Resultados experimentales . . . . .	27
6.2.2	Discusión de los resultados . . . . .	29
6.3	Rendimiento del TG Green en función de la dirección de detección . . . . .	36
6.3.1	Resultados . . . . .	36
6.3.2	Interpretación de los resultados . . . . .	37
<b>7</b>	<b>Conclusiones</b>	<b>40</b>

## Resumen

La producción de energía eléctrica mundial actual presenta diversos inconvenientes a largo plazo. Entre ellos destaca el impacto medioambiental y la agotabilidad de los combustibles fósiles, la limitación en abastecimiento global de las renovables, y la producción de radioisótopos de larga vida en centrales nucleares de fisión. El desarrollo de un reactor de fusión nuclear se presenta como la mejor alternativa para abordar todos estos problemas. Este ambicioso proyecto supone una multitud de desafíos tecnológicos que investigadores de todo el mundo enfrentan a diario. En este trabajo nos centraremos en uno de esos desafíos : la detección de iones rápidos que escapan del plasma durante su calentamiento.

Para llevar al combustible a alcanzar un estado autosostenible en el que ocurran reacciones de fusión con una ganancia positiva, el plasma debe calentarse hasta  $k_B T \sim 15keV$  mediante métodos internos y externos. Uno de ellos es el llamado NBI (Neutral Beam Injection) en el que se inyectan átomos neutros (generalmente de deuterio) a energías mayores que las térmicas del plasma. Estas se ionizan al colisionar con las partículas del combustible y se suman al mismo. Mediante más colisiones, estos iones van cediendo su energía al plasma, produciéndose su calentamiento. El método NBI supone que durante el tiempo de calentamiento plasmático existe una distribución energética de iones en el mismo en el intervalo [ $\sim 10keV, \sim 10MeV$ ]. Si muchos de estos iones escapan del plasma, se ponen en peligro tanto la eficiencia de calentamiento como la integridad física de las paredes internas del reactor. Es por ello que los dispositivos de fusión implementan los detectores llamados FILD (Fast Ion Loss Detector) que ayudan a controlar en tiempo real la pérdida de estos iones rápidos.

Los FILD disponen de una fina lámina de material centelleador que sirve como detector de iones. En su diseño, el centelleador debe ser caracterizado previo instalación en el reactor para conocer su rendimiento, es decir, el número de fotones emitidos por ion incidente en función del tipo y energía de este. Para ello se usan modelos de ioluminiscencia como el modelo de Birks, aplicado con éxito en diversas muestras centelleadores para iones positivos de energías del orden del MeV.

En este trabajo se presentan y discuten los resultados de las primeras medidas experimentales realizadas en el CNA (Centro Nacional de Aceleradores) del rendimiento de centelleadores para iones de energías del orden de decenas de keV. Para ello el CNA adquirió una cámara de vacío que fue usada por primera vez en estos experimentos. Mediante la fuente de iones negativos SNICS (Source of Negative Ions by Cesium Sputtering) se consiguió un haz que se inyectaba en la cámara de vacío mediante un inyector magnético. Dentro de dicha cámara se encontraban las láminas centelleadoras colocadas en un portamuestras que podía girarse en torno a la dirección del haz. Con una Faraday Cup conectada a un integrador de corriente se midió la corriente incidente sobre las muestras durante los segundos anteriores y posteriores a la irradiación. Una de las limitaciones que se encontraron durante el desarrollo de los experimentos es que no era posible monitorear la intensidad de iones durante el tiempo de irradiación, lo que supuso tener una incertidumbre total sobre las fluctuaciones de la corriente durante dicho tiempo. A 45deg con respecto a la dirección del haz, se colocó la entrada de una fibra óptica que guiaba a los fotones que incidían sobre ella hacia un espectrómetro.

Las muestras analizadas fueron las llamadas TG Green y P46, cuyas características son propicias para la detección de iones rápidos. Se intentó también caracterizar una muestra de YAP:Ce, pero la limitación en el intervalo espectral de calibración del espectrómetro no nos permitió llevarlo a cabo. Se usó un haz de iones negativos de  $H^-$  en lugar de iones de deuterio (ion rápido más común en el combustible del reactor), pues así se evitan problemas de radiación indeseada y estos son suficientes para sacar unas primeras conclusiones teniendo en cuenta lo novedoso del experimento. La energía de los iones del haz se mantuvo constante a 72keV.

Se encontró que el modelo de Birks ajustado para reproducir el rendimiento absoluto de las muestras al irradiarlas con iones positivos de energías del orden del MeV no predecía correctamente nuestros resultados experimentales. A su vez, se encontró que la emisión de fotones de centelleo por ioluminiscencia no seguía un comportamiento isótropo. En la sección 6 se presentan y discuten algunas posibles explicaciones para estos hechos.

# 1 Introducción

## 1.1 Perspectivas energéticas actuales y cambio climático.

Los combustibles fósiles han sido y siguen siendo el recurso de producción de energía eléctrica, térmica y mecánica globalmente más usado. Desde hace varias décadas, diversas organizaciones intergubernamentales como la ICPP (Intergovernmental Panel on Climate Change) y la IEA (International Energy Agency) han ido advirtiendo sobre el impacto que el uso abusivo de estos recursos está teniendo en el medio ambiente y sus correspondientes consecuencias a corto y largo plazo para el calentamiento global.

Si bien el uso de fuentes de energía libres de emisiones de gases de efecto invernadero como las renovables y la de fisión nuclear ha aumentado desde los primeros avisos [1], esto no ha hecho que la demanda de combustibles fósiles haya caído en la última década. Al contrario, esta fuente se presenta como una de las que más ha aumentado en demanda en los últimos años [1]. Este incremento tiene en parte su origen en que el consumo de electricidad en general y el uso de medios de transporte han aumentado de forma global durante el siglo XXI [1]. Sin embargo, también ha contribuido a ello la escueta financiación que los proyectos que invierten en la mejora y el fomento de fuentes de energías limpias han recibido de algunos países durante dicho periodo [2], así como la actitud negacionista hacia el calentamiento global antropogénico de algunos líderes políticos y grupos de presión [3].

En 2018, el IPCC publicó un informe en el que advierte de la severidad y la posible irreversibilidad de algunos de estos efectos climáticos si para 2100 las emisiones de  $CO_2$  antropogénicas no han caído gradualmente a cero [4]. Todas las estrategias que el informe propone para conseguir este objetivo tienen un denominador común: la reducción del uso de combustibles fósiles, y cuanto antes.

Así pues, el mundo se encuentra en una coyuntura en la que en los próximos años la fuente de energía eléctrica más usada debe empezar a desaparecer. Y no sólo por razones medioambientales, sino también por motivos económicos si tenemos en cuenta que los combustibles fósiles tienen una vida limitada. Se estima que la del petróleo y el gas natural es de unos 50 años y la del carbón de poco más de un siglo [1]. Con estas previsiones, las naciones que basasen el grueso de su producción de energía en la quema de combustibles fósiles importados estarían destinada a sufrir una inflación de precios gradual hasta llegar a una crisis económica y social [5].

A corto plazo es claro que las renovables son la mejor apuesta para sustituir a los combustibles fósiles [6]. Sin embargo, a largo plazo existe otra alternativa que además de ser también limpia con el medio ambiente, generaría muchísima más potencia eléctrica que las renovables: la energía de fusión.

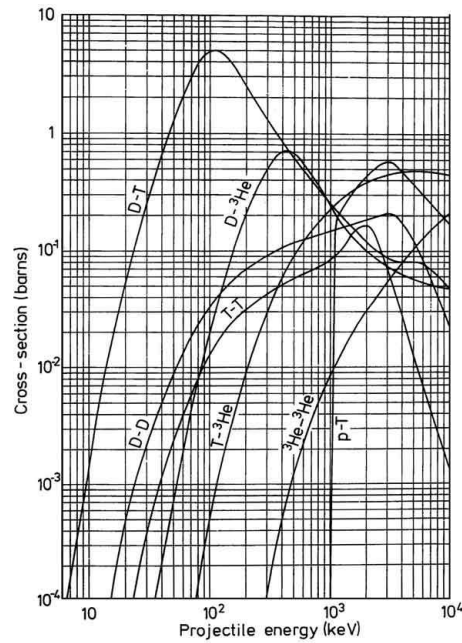
## 1.2 ¿Por qué energía de fusión?

El estudio de los mecanismos de producción de energía del Sol han sido la inspiración para el desarrollo teórico y tecnológico de una fuente de energía para consumo humano basada en la fusión nuclear [7]. En el interior de las estrellas, las energías térmicas son tales que puede asumirse que la mayoría de los átomos están ionizados, teniendo pues un plasma de electrones y núcleos (principalmente núcleos de  $^1H$ : protones). Hacia el centro de las mismas, las condiciones de temperatura, densidad y presión son tales que la energía de los protones puede vencer la repulsión electrostática entre los mismos, dando lugar a reacciones de fusión que liberan tantísima energía que generan un gradiente de presiones que evita el colapso gravitacional de estos cuerpos [8].

Para conseguir reacciones de fusión en un reactor el enfoque debe ser otro, pues no es viable reproducir las condiciones extremas del interior estelar en un laboratorio en la Tierra. De todas las opciones, la reacción de fusión del deuterio y el tritio para formar una partícula alfa y un neutrón:



es una de las más prometedoras para operar en un reactor de fusión. Esto es debido a que es la que tiene una sección eficaz mayor a menores energías térmicas de los iones (o en otras palabras, es la más *sencilla* de alcanzar en el laboratorio), y además es una de las que libera mayor energía [9].



*Figura 1: Sección eficaz de varias reacciones de fusión en función de la energía de los reactivos [9]. Como vemos, la reacción  $D(T,\alpha)n$  puede iniciarse a partir de apenas unos pocos keV, teniendo una sección eficaz máxima en torno a 100keV. Además, dicho máximo es mucho mayor para esta reacción que para cualquiera de las otras reacciones de fusión alcanzables en el laboratorio.*

Una central nuclear de fusión tendría un funcionamiento básico muy similar al de las centrales de fisión o de combustibles fósiles: usar la energía liberada en una reacción para cederla a un refrigerante y generar vapor que mueva una turbina, transformando finalmente esta energía mecánica en eléctrica mediante un generador. La única diferencia en este caso sería que dicha energía liberada la proporcionan las reacciones de fusión (como la descrita en la ecuación (1.1)) en lugar de las de fisión o combustión [10].

El desarrollo y puesta a punto de esta fuente de energía llevaría a la solución de la mayoría de los problemas expuestos en el apartado anterior, a saber:

**Es una fuente de energía abundante y sostenible a muy largo plazo.** Como vimos, la demanda de electricidad a nivel global no ha hecho más que aumentar en los últimos años, y dado el número actual de naciones en vías de desarrollo tecnológico, se prevé que seguirá aumentando [6]. Las reacciones de fusión controladas tienen el potencial de generar mucha más potencia eléctrica que cualquiera de las fuentes de energía actuales [11], lo que ayudaría a suplir dicha demanda. Por otro lado, los combustibles de fusión son prácticamente inagotables. El deuterio se encuentra de forma natural en nuestros océanos, y la vida media de sus reservas para reactores de fusión se estima en el orden del billón de años [12]. Por otro lado, el tritio es un radionúclido con una semivida de unos 12 años, por lo que no se encuentra de forma natural en la Tierra y tendría que producirse mediante reacciones de activación neutrónica con litio natural:



Este litio formaría parte de la envoltura que rodea la región dónde se encuentra el combustible del reactor. De esta forma, una vez inyectado en el mismo una pequeña parte de tritio manufacturado externamente para iniciar la fusión, la propia infraestructura interna del reactor haría que se siguiera creando tritio de forma autosostenible a partir del neutrón generado en la reacción (1.1) [10]. De las dos reacciones anteriores, aquella con  ${}^6\text{Li}$  sería la más probable de ocurrir dada su sección eficaz. Así, podemos deducir que la vida media de las reservas de tritio para fusión es equivalente a la de  ${}^6\text{Li}$  en la naturaleza para el mismo fin, que se estima en 20,000 años [12]. Este tiempo es más que suficiente para desarrollar técnicas eficientes de fusión con otro tipo de reacciones, como las siguientes en las que sólo necesitaríamos deuterio:



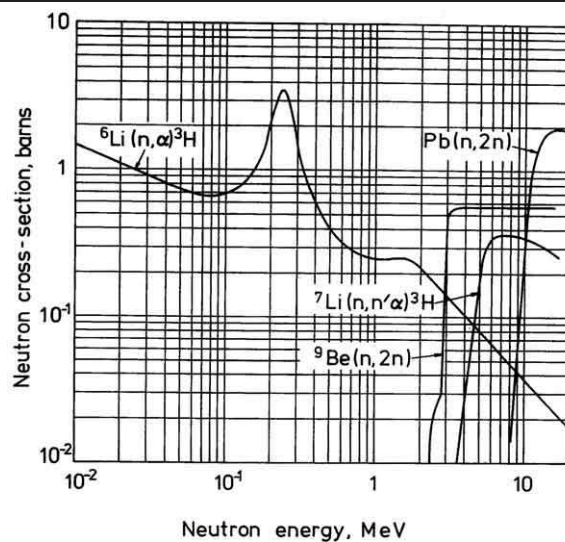


Figura 1.2: sección eficaz de varias reacciones de activación neutrónica en función de la energía de los neutrones [9]. Como vemos, la reacción  ${}^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$  puede darse para energías del neutrón del orden del keV, mientras que la reacción  ${}^6\text{Li}(n,n'\alpha)\text{T}$  tiene un umbral en torno a 4-5MeV para poder empezar a producirse.

**Es una fuente de energía con un impacto medioambiental mínimo.** Al igual que en el caso de las renovables y la energía de fisión, en la producción de energía por fusión no se emitirían gases de efecto invernadero [11]. Tampoco se emitiría a la atmósfera ningún tipo de producto químico dañino para los ecosistemas. De hecho, el producto de fusión más abundante sería el helio, un gas inerte [12]. El único peligro medioambiental que podría suponer esta fuente de energía sería la producción de radioisótopos por activación neutrónica en la estructura del reactor. Sin embargo, estos tendrían una semivida tan corta que en apenas 100 años de aislamiento habrían desaparecido, mientras que los productos radiactivos generados por fisión pueden necesitar hasta más de un millón de años de aislamiento para ello [12]. Si bien con las renovables no hay ningún riesgo radiactivo, la principal ventaja de la fusión con respecto a estas en este tema es la no dependencia climatológica para la producción de energía (i.e. días nublados en caso de la energía fotovoltaica o días sin viento para la eólica) y la ya mencionada capacidad de generar mucha más potencia eléctrica.

Por último, una de las ventajas que cabe destacar de la energía de fusión frente a la de fisión es que es altamente segura en comparación. Un fallo en el núcleo de un reactor de fisión puede llevar a una reacción en cadena que sea fatal, como bien sabemos de los accidentes acontecidos en Chernobyl o Fukushima. En cambio, un fallo en el núcleo de un reactor de fusión llevaría únicamente al enfriamiento del plasma en cuestión de segundos y a un cese rápido de las reacciones [11]. Dicho en pocas palabras, ni el combustible ni sus productos pueden llegar a explotar. Esto hace además que la energía de fusión esté libre de riesgo de proliferación de armas nucleares.

Con todo lo expuesto, parece que una fuente de energía eléctrica que opere mediante fusión nuclear sería una solución ideal. Sería limpia con el medio ambiente, podría generar una potencia suficiente para suplir a una cada vez más demandante humanidad, carecería de las dependencias con el clima que suponen las renovables y además sería muy segura. Entonces, ¿por qué no se ha implantado ya? Si tuviéramos que precisar de forma rápida el por qué no existen plantas de energía de fusión nuclear en la actualidad, diríamos lo siguiente: su desarrollo tecnológico es increíblemente costoso y complicado.

Comentábamos anteriormente que la reacción (1.1) era la más sencilla de obtener en el laboratorio. Incluso así, para obtenerla necesitaríamos calentar el combustible a una temperatura de unos 150 millones de grados Kelvin (mayor que la del centro del Sol) [12]. Si bien conseguir estas temperaturas es ya un desafío, en el camino de conseguirlas nos encontramos con otro. El de confinar el plasma de átomos ionizados en el que se convierte el combustible. El objetivo de la comunidad científica dedicada a la investigación en fusión como fuente de energía reside en esto: el poder confinar una cantidad significativa de plasma durante el tiempo suficiente y en las condiciones necesarias para conseguir una ganancia en potencia eléctrica mediante reacciones de fusión [12].

En este trabajo haremos hincapié en uno de los desafíos teóricos y tecnológicos que presenta este objetivo: *el entender y controlar la pérdida de iones rápidos del plasma durante su calentamiento*. Aunque existen diversas formas de confinar un plasma a altas temperaturas, aquí nos centraremos en el método de confinamiento magnético con dispositivos tipo Tokamak.

## 2 Física del Tokamak

Durante los primeros años de la Guerra Fría, prácticamente toda la investigación en fusión nuclear tenía como cometido el manufacturar armas nucleares [10]. No fue hasta el éxito que supuso el diseño de una bomba basada en fusión termonuclear que se comenzó a pensar en el desarrollo de un reactor de fusión para la generación de energía eléctrica [13]. La idea del dispositivo Tokamak (abreviación de **T**oroidalnaya **K**ameras **M**agnitnami **K**atushkami en ruso o Cámara Toroidal con Bobinas Magnéticas en castellano) surgió en la comunidad científica de la URSS en los años 50, propuesta por Andrei Sakharov e Igor Tamm por inspiración de una carta de Oleg Lavrentiev. Aunque otros diseños de métodos de confinamiento plasmático para fusión se desarrollaron a su vez (como el Stellarator en Estados Unidos), el Tokamak pronto se impuso como la opción más prometedora para su objetivo [13].

### 2.1 Condiciones termonucleares: El criterio de Lawson

Comentábamos anteriormente que la reacción de fusión (1.1) era la más sencilla de conseguir en el laboratorio. Veamos qué condiciones debe cumplir el plasma de un reactor para que dicha reacción empiece a producirse. Al ir calentando un plasma compuesto de D y T (con métodos externos que describiremos más adelante) hacia estas condiciones termonucleares, las partículas  $\alpha$  emitidas en la reacción comienzan a contribuir al calor total aportado al sistema. Llegados a cierto punto, este calor aportado por las alfas es suficiente para mantener la temperatura del plasma en condiciones termonucleares, y los sistemas de calentamiento externo pueden retirarse [14]. Es justo en este momento en el que en el reactor comenzaría un periodo de ganancia de energía. Es decir, tras haber aportado externamente una cantidad de energía para llevar a las partículas del plasma a fusionarse, este se ha convertido en una fuente autosostenible que será capaz de generar más energía que la inicialmente aportada. Como dato, el proyecto ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor) tiene como uno de sus objetivos el generar 500MW de potencia con un aporte inicial de 50MW, teniendo pues una ganancia de  $Q = 10$  [11].

Puede demostrarse que estas condiciones se consiguen cuando [14, 15]

$$\ell = nT\tau > U \quad (2.1)$$

siendo  $n$  la densidad de partículas,  $T$  la temperatura (comúnmente expresada en literatura en  $keV$ ),  $\tau$  el tiempo de confinamiento del plasma y  $U$  una constante umbral que depende del tipo de reacción. Para la reacción (1.1) este umbral es del orden de  $10^{21} keV \cdot s/m^3$  [14, 15].

La relación (2.1) se conoce como criterio de Lawson, y es esencial para el diseño de un reactor de fusión. Lo que nos dice es que para conseguir reacciones de fusión autosostenibles el plasma debe poder confinarse durante un tiempo  $\tau$  y a ciertas condiciones de temperatura y densidad. Dado que para ello las temperaturas necesarias son del orden de 10-20keV [14] (equivalentemente del orden de 100-200 millones de grados Kelvin), el plasma no puede en ningún momento entrar en contacto físico con la estructura que lo envuelve, pues los daños que esta sufriría serían irreparables [15]. En el Tokamak, esto se consigue mediante confinamiento magnético.

### 2.2 Confinamiento magnético del plasma

En el estado de agregación de la materia al que llamamos gas, en general los electrones están ligados a los núcleos, siendo pues los constituyentes del sistema partículas neutras. En estado de plasma, las energías térmicas son tales que dichos átomos están ionizados, teniendo pues un conjunto de electrones e iones desligados que forman un fluido de partículas cargadas cuyo movimiento se ve afectado por la acción de campos electromagnéticos externos. Este es el principio del método por confinamiento magnético en el tokamak [14].

Las ecuaciones del movimiento de una partícula no relativista de masa  $m$  y carga eléctrica  $q$  bajo la acción de un campo magnético  $\vec{B}$  están dadas por [14]:

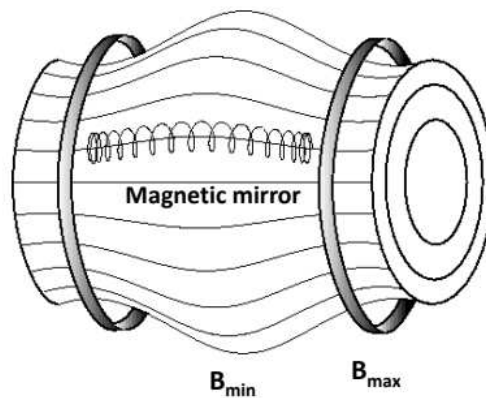
$$\begin{cases} m \frac{d\vec{v}}{dt} = q\vec{v} \wedge \vec{B} \\ \vec{r}(t) = \int_0^t \vec{v}(\tau) d\tau \end{cases} \quad (2.2)$$

siendo  $\vec{v}$  la velocidad de la partícula. Si dicho campo es uniforme y aplicado en la dirección  $\hat{z}$  ( $\vec{B} = B\hat{z}$ ), las soluciones de las ecuaciones (2.2) son

$$\begin{cases} \vec{v}(t) = (v_x, v_y, v_z) = (v_0 \sin(\omega t), v_0 \cos(\omega t), v_z) \\ \vec{r}(t) = (x, y, z) = (\rho(1 - \cos(\omega t)), \rho \sin(\omega t), v_z t) \end{cases} \quad (2.3)$$

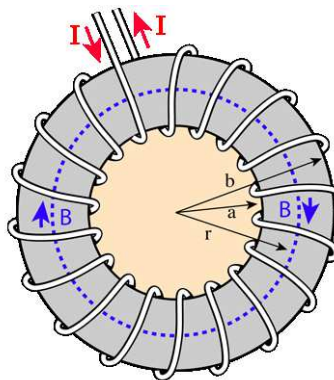
dónde  $v_0$  y  $v_z$  son constantes,  $\omega = qB/m$  y  $\rho = v_0/\omega$ . Así pues, tendríamos que las partículas exhibirían un movimiento helicoidal subdividido en un movimiento rectilíneo uniforme en la dirección del campo y un movimiento circular con radio  $\rho$  y frecuencia  $\omega$  en el plano perpendicular a dicho campo.

Si se añade un gradiente de campo magnético en la dirección del propio campo:  $\nabla_z B_z \neq 0$ , a este movimiento helicoidal se le suma una aceleración no nula en la dirección del campo [14]. Las partículas que se desplacen hacia zonas de mayor intensidad de campo sienten una fuerza que las acelera hacia las zonas de intensidad menor, atrayéndolas en dicha región.



**Figura 2.1:** Esquema del funcionamiento de un espejo magnético, uno de los primeros diseños de dispositivos para confinamiento magnético [10]. El gradiente de campo es tal que la intensidad del mismo es mínima en el centro de la estructura. Así, toda partícula que se desplace hacia los extremos siente una fuerza que tiende a “devolverla” hacia la parte central.

Los primeros intentos de dispositivos de fusión operaban confinando al plasma entre dos extremos (figura 2.1) en base a los principios expuestos. Sin embargo, pronto se descubrió que operando de esta forma los tiempos de confinamiento era demasiado pequeños como para cumplir el criterio de Lawson, por lo que se decidió a intentar confinar el plasma en una estructura cerrada toroidal [15].

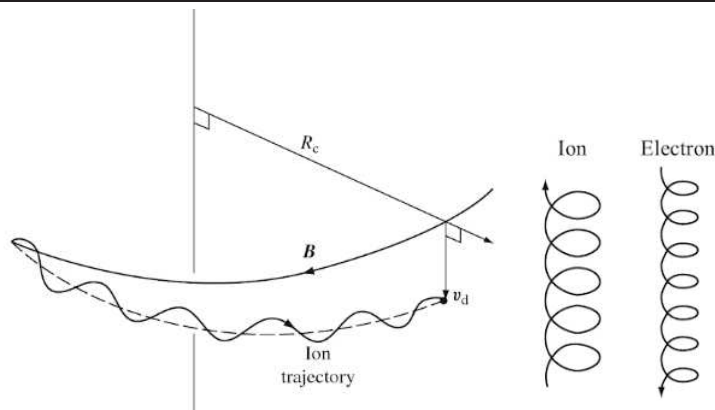


**Figura 2.1:** Esquema del campo magnético que genera un solenoide en torno a una estructura toroidal [16]. Aunque en este caso las líneas de campo están cerradas, la intensidad del mismo tiene una dependencia radial en la forma  $B \propto 1/r$ , lo que no ocurre en el caso del campo creado por un solenoide lineal.

Como en un solenoide toroidal se genera un campo en la forma  $\vec{B} \propto 1/r\hat{\phi}$  (en coordenadas cilíndricas), tenemos un gradiente de campo magnético en la dirección perpendicular al campo:  $\nabla_r B_\phi \neq 0$ . A diferencia del caso del espejo magnético, en el que tanto campo, gradiente y aceleración compartían dirección, lo que ahora sucede es que las partículas sienten una fuerza de deriva que tiende a desplazarlas con una velocidad que depende del signo de su carga [14]:

$$\vec{v}_{d1} \propto \frac{\vec{B} \wedge \nabla B}{q} \propto \frac{\hat{z}}{q} \quad (2.4)$$



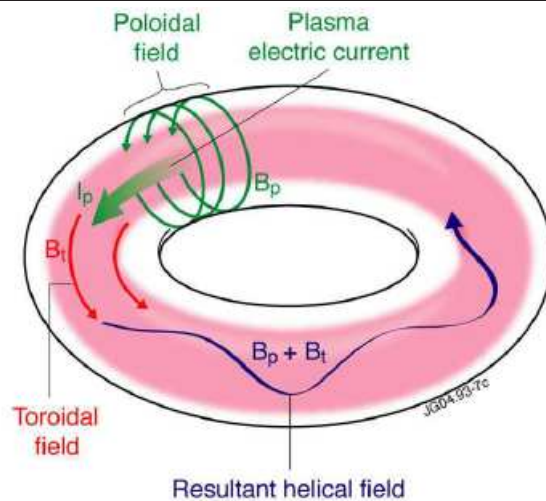


**Figura 2.3:** Desviación de la trayectoria de un ion en el plasma por acción de un gradiente de campo magnético perpendicular a la dirección del campo (izquierda) y sentido de dichas trayectorias para iones y electrones (derecha) [14]. Para los electrones,  $\vec{v}_d$  tiene signo opuesto, lo que causa una separación de cargas en el plasma.

Así, las trayectorias helicoidales de los electrones e iones son desplazadas en sentidos opuestos, creándose una separación natural de cargas en la dirección  $\hat{z}$  y por tanto apareciendo un campo eléctrico en la misma dirección:  $\vec{E} = E\hat{z}$ . Esto hace que las partículas sientan otra fuerza que las desplaza de nuevo perpendicularmente a la dirección del campo magnético, con una velocidad de deriva [14]:

$$\vec{v}_{d2} = \frac{\vec{E} \wedge \vec{B}}{B^2} \propto \hat{r} \quad (2.5)$$

Esto demostró que un campo magnético toroidal no confinaba al plasma, pues las fuerzas de deriva tendían a desplazarlo hacia las paredes del toroide que lo contenía. Para solucionar esto, se añadió al sistema un campo magnético poloidal (perpendicular al toroidal) que evitaba la separación de cargas [15]. En el Tokamak el campo poloidal lo produce la propia corriente que supone el plasma circulando en la dirección toroidal, con ayuda de un transformador situado en el centro de la estructura [14].



**Figura 2.4:** Campo magnético resultante de aplicar uno toroidal y otro poloidal [17]. Las partículas del plasma siguen una trayectoria definida por el campo total, pudiendo ser confinadas dentro de la estructura.

Así pues, el diseño de confinamiento magnético estaba resuelto. Veamos ahora como se procede para el calentamiento del mismo a condiciones termonucleares.

### 2.3 Sistemas de calentamiento

En el tokamak, la propia corriente toroidal inducida para crear el campo poloidal se usa para aumentar la temperatura del plasma. Al aumentar la corriente, las partículas se vuelven muy energéticas y pierden energía mediante

colisiones. Parte de esta energía se invierte en aumentar la temperatura del plasma [11]. Esto es lo que se conoce como sistema por calentamiento óhmico.

Dicho sistema sólo permite el aumento de la temperatura hasta  $T \approx 3keV$ , debido a que la resistividad del plasma es una función decreciente con  $T$  (es decir, a mayor temperatura, menores serán las pérdidas y menos eficiente será el sistema de calentamiento). Así pues, el calentamiento óhmico no es suficiente para llevar a las condiciones de fusión termonuclear, y debe añadirse un sistema de calentamiento externo para ello [12]. En concreto, el tokamak usa dos métodos [11]:

**Calentamiento mediante haces neutros:** Esta técnica, llamada NBI (Neutral Beam Injection) se basa en la inyección de haces de D o T neutros en el plasma a grandes energías (del orden de  $\sim 100keV$ , mayores que las térmicas del plasma). Como estas partículas no se ven afectadas por los campos magnéticos, viajan en línea recta hasta ionizarse mediante colisiones con las partículas cargadas del plasma. Una vez ionizadas, se suman al plasma y van cediendo poco a poco su energía cinética mediante más colisiones, lo que supone un aumento de la temperatura [12]. Estos haces se consiguen primeramente acelerando iones positivos de D o T en un dispositivo externo. Tras alcanzar las energías deseadas, los iones pasan por un sistema neutralizador que elimina su carga, y es entonces cuando se inyectan en el plasma [11]. *El entender como controlar las pérdidas de estos tipos de iones es la motivación de los experimentos realizados para este trabajo, como comentaremos ampliamente en la sección 4.* Cabe mencionar que, dadas las dimensiones del tokamak, la técnica NBI necesitaría de la ayuda de haces extra mucho más energéticos que unos  $\sim 100keV$ . Sin embargo, el proceso de generación de haces neutros es muy poco eficiente si queremos inyectarlos a energías muy altas. Como se discutirá en la sección 4, la sección eficaz de neutralización de iones a energías del orden del MeV se reduce en varios órdenes de magnitud si estos son positivos. Así, si aceleramos demasiado un haz de iones positivos para su posterior conversión en un haz neutro mediante la técnica NBI, la probabilidad de neutralizarlos antes de ser inyectados en el plasma es demasiado pequeña. Dado que el problema tiene menos pesos para iones negativos, recientemente se ha estado considerando su uso como mejora de la técnica NBI [18].

**Calentamiento por radiofrecuencia:** Este método se basa en dirigir ondas electromagnéticas de muy alta frecuencia dentro del plasma a través de una fuente externa. El mecanismo de calentamiento en este caso es similar al de los hornos microondas. Eligiendo la frecuencia de las ondas para coincidir con la frecuencia característica  $\omega$  de las partículas del plasma (ecuaciones (2.3)), estas absorben energía muy eficientemente, produciéndose un aumento de su energía cinética.

Mediante estos tres sistemas de calentamiento, el primer objetivo es llevar al plasma a temperaturas del orden de  $5 - 7keV$ . A partir de este valor, la reacción de fusión (1.1) empieza a tener una sección eficaz suficiente como para que las partículas alfa generadas comiencen a contribuir apreciablemente al calentamiento del plasma [12]. Con esta cuarta contribución, el sistema externo puede empezar a retirarse, consiguiéndose un plasma en ignición termonuclear autosostenible para  $T \sim 15keV$ .

## 2.4 Pérdida de iones rápidos por fluctuaciones magnetohidrodinámicas

Podemos deducir del apartado anterior que, a grandes rasgos, los mecanismos de calentamiento externo se basan en la transferencia de energía térmica al plasma desde partículas muy energéticas (rápidas). Los iones, al ser más pesados, tienen mucha más relevancia que los electrones en esta transferencia energética, y de ahí radica la importancia de controlar sus pérdidas durante el proceso de calentamiento plasmático (además de, como comentamos, suponer un riesgo a la integridad de la estructura del Tokamak).

La Magnetohidrodinámica (MHD) es la rama de la física que estudia la dinámica de fluidos conductores (como el plasma) bajo la acción de campos magnéticos. En física de reactores de fusión, la MHD se aplica para encontrar la configuración geométrica magnética que maximice el parámetro de Lawson (ecuación (2.1)) consiguiendo a la vez un estado de equilibrio estable [12]. En el apartado 2.2, la MHD se aplicó para deducir que, además de un campo toroidal, el confinamiento del plasma requería de otro poloidal.

Por definición, un plasma confinado en un equilibrio MHD estable no perderá su masa/energía mediante un desplazamiento macroscópico hacia las paredes de la estructura que lo contiene. Sin embargo, si que podrá perder energía mediante otros mecanismos microscópicos de transporte [12]. La mayoría de estos, como la producción de iones rápidos mediante mecanismos externos en trayectorias magnéticas no confinadas o las dispersiones coulombianas, pueden entenderse y controlarse con relativa facilidad [15]. Sin embargo, las altas temperaturas y gradientes de densidad que alcanza el plasma durante su calentamiento llevan a inestabilidades MHD que todavía carecen de una teoría predictiva definitiva [12]. En concreto, la relación entre estas fluctuaciones MHD y

la cantidad de iones rápidos perdidos en función de la energía y tipo de partícula en dispositivos de fusión es un campo de investigación abierto [19, 20].

Los detectores que se usan para medir esta pérdida de iones rápidos (FILD o Fast Ion Loss Detectors) tienen implementados centelleadores, que como veremos más adelante, son los más adecuados para este problema [20]. *Previamente a su instalación en dispositivos de fusión, el comportamiento del centelleador (o en otras palabras, la cantidad de luz que emite) en función del rango de energías y tipo de ion detectado debe ser caracterizado.* Dicha tarea supone la principal motivación de los experimentos realizados en el CNA para este trabajo, en el que se analizan los resultados de las primeras medidas en caracterización de materiales centelleadores para iones de energías del orden de decenas de keV.

### 3 Caracterización de materiales centelleadores

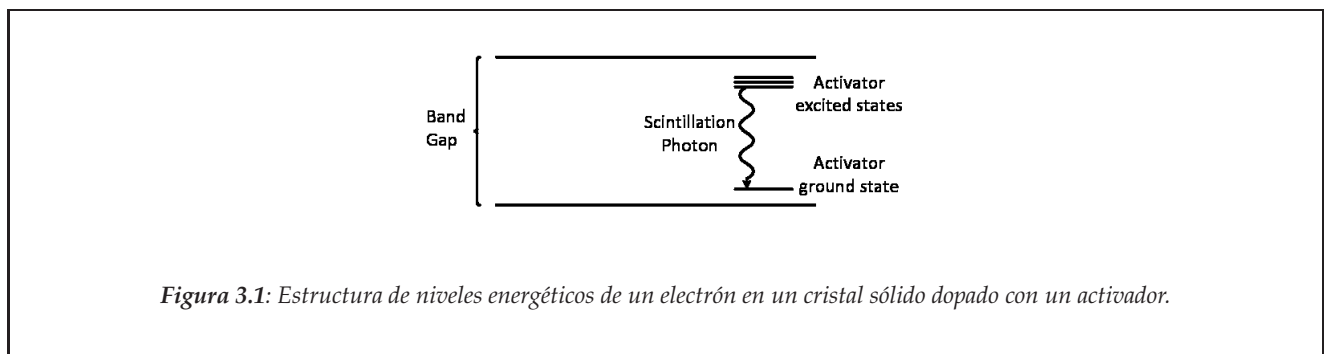
Exentos del despliegue tecnológico del que disponemos hoy en día para detectar partículas, los físicos experimentales de principios del siglo XX debían hacer uso de su ingenio y sus sentidos para la investigación en el campo de la Física Atómica, Nuclear y de Partículas. Es por ello que la detección de radiación ionizante mediante luz de centelleo es una de las técnicas más antiguas. El contaje visual por centelleo de algunos materiales, introducido por Crookes y Regener en 1908, jugó un papel muy importante en investigación nuclear en aquella época [21]. Hoy en día la detección por centelleo sigue siendo uno de los métodos más usados en muchos campos de investigación, siendo de especial importancia en experimentos que requieran de una buena eficiencia la hora de contar partículas [22].

#### 3.1 El centelleador como detector de partículas cargadas pesadas [22]

A altas energías (del orden del keV o mayor), en su paso por la materia las partículas cargadas pesadas (a partir de aquí se llamarán “pesadas” indistintamente) interactúan con el medio principalmente cediendo parte de su energía a los electrones ligados a átomos o moléculas. Dependiendo de como de energético es el proyectil y de la estructura de estados electrónicos, dichos electrones podrán o bien excitarse a un estado ligado de mayor energía o bien ser expulsados completamente del átomo o molécula. Si los mecanismos de desexcitación o neutralización posteriores conllevan a la emisión de un fotón en el rango de energías del espectro visible, tendremos que se ha producido el fenómeno de ioluminiscencia, y dicho material será pues ioluminiscente. Este es el mecanismo básico de todos materiales que se usan en detectores de centelleo, en el cual la emisión y contaje de luz visible nos advierte del paso previo de una partícula.

Los detectores de centelleo pueden dividirse en dos tipos: orgánicos e inorgánicos. La principal diferencia es que en los primeros la luz se emite por excitación y desexcitación de las moléculas del medio, mientras que para los segundos dicha luz es emitida por transiciones entre niveles de energía determinados por la red cristalina del material sólido elegido. Por razones que comentaremos más adelante, para el propósito de mesurar la pérdida de iones en dispositivos de fusión se elige el centelleador inorgánico.

En la figura 3.1 se esquematiza la estructura de niveles energéticos de un electrón en un material centelleador inorgánico empleado como detector de partículas.



En la parte inferior se representa la banda de valencia, que corresponde a los niveles de aquellos electrones ligados a la red cristalina, mientras que en la parte superior se representa la banda de conducción, en la que los electrones tienen energía suficiente como para moverse libremente a lo largo del cristal. Entre estas bandas hay un gap prohibido de energías. En un cristal puro, los electrones que absorben energía de las partículas pesadas incidentes pueden únicamente pasar de la banda de valencia a la de conducción, dejando una vacante (hueco) en la primera. El regreso del electrón de la banda de conducción a la de valencia puede producirse mediante la emisión de un fotón. Sin embargo, este proceso es altamente ineficiente con respecto a otros que no emiten fotones. Además, si el gap de energías es demasiado grande, dicho fotón no tendrá una energía en el rango del visible. Para solucionar esto y optimizar el fenómeno de centelleo se añaden impurezas al cristal, los llamados activadores. Estos se eligen de forma estratégica para que se generen niveles permitidos dentro del gap y dar lugar al proceso que se describe a continuación.

Una partícula pesada formará un gran número de pares electrón-hueco al excitar a los electrones de la banda de valencia a la de conducción. El hueco se desplazará rápidamente hacia el activador y lo ionizará, ya que se elige de forma que su energía de ionización sea menor a la de ligadura de la red cristalina. Mientras tanto, el electrón en la banda de conducción se moverá libremente por el cristal hasta encontrar un activador ionizado, neutralizándolo. Si el activador queda en un estado excitado, este tenderá a desexcitarse rápidamente emitiendo un fotón en el rango del visible (también por efecto de la elección de la impureza). En general las vidas medias

de estos estados excitados son mucho mayores que el tiempo que tarda el electrón en “encontrar” al activador ionizado, por lo que puede asumirse que todos los fotones de centelleo son emitidos simultáneamente.

Cabe destacar que existen otros procesos que compiten con el descrito, como la captura electrónica del activador ionizado para dejarlo en su estado fundamental sin necesidad de emitir fotones, o que el electrón vaya a un nivel excitado cuya transición al estado fundamental esté prohibida. En este último caso el electrón deberá primero ocupar otro estado excitado (por excitación térmica por ejemplo) antes de llegar al fundamental, produciéndose un “retraso” del fotón emitido con respecto a la emisión simultánea anteriormente descrita. En cualquier caso, la producción de luz en un centelleador no podrá ser nunca 100 % eficiente.

El uso de centelleadores inorgánicos frente a los orgánicos en detección de partículas pesadas tiene varias ventajas que comentamos a continuación. Por un lado, los inorgánicos tienen una respuesta mucho más lineal en lo referente a producción de luz y energía depositada, lo que siempre es deseable para la construcción de un detector. Además, los procesos que llevan a la emisión de un fotón en el rango visible tras el paso de una partícula pesada son mucho más eficientes en este tipo de centelleadores. Esto es en parte consecuencia de que un cristal dopado puede ser transparente a la luz de centelleo, pues en lo general sus espectros de emisión y absorción no se solapan como ocurre con frecuencia en los centelleadores orgánicos (o en un cristal puro).

### 3.2 Caracterización de materiales centelleadores por su ioluminiscencia: El modelo de Birks

La cantidad de fotones que emite un material centelleador al bombardearlo con partículas pesadas depende de varios factores, siendo los principales la propia naturaleza del material y la partícula y la energía de esta. Como comentamos, en su paso por la materia las partículas cargadas van cediendo parte de su energía al medio, ionizándolo o excitándolo. Una parte de esta energía cedida se invertirá en emisión de fotones mediante los mecanismos descritos en el apartado 3.1. y otra se disipará en procesos no radiativos.

Sea  $L$  el *rendimiento* de centelleo (número de fotones generados por ion incidente). Siguiendo el modelo desarrollado por Birks [21], en ausencia de procesos de quenching que lleven a la desexcitación o neutralización del medio sin emisión de fotones,  $L$  puede relacionarse con la potencia de frenado  $\frac{dE}{dr}$  de la partícula en la forma lineal:

$$\frac{dL}{dr} = S \frac{dE}{dr} \quad (3.1)$$

donde se elige  $\frac{dE}{dr} > 0$  y  $S$  es la *eficiencia* de centelleo (número de fotones generados por ion incidente y unidad de energía depositada). En lo que sigue, asumiremos que  $S$  es una constante característica del material centelleador.

La ecuación (3.1) es aplicable siempre y cuando la potencia de frenado tenga valores pequeños. En este modelo, Birks asumió que cuando las partículas pesadas van cediendo mucha de su energía al medio en su paso, se producen daños en el mismo que aumentan la probabilidad de procesos de quenching y por ende disminuyen el rendimiento de centelleo. Así, la corrección a la ecuación (3.1) para medias y altas potencias de frenado fue:

$$\frac{dL}{dr} = \frac{S \frac{dE}{dr}}{1 + k \frac{dE}{dr}} \quad (3.2)$$

donde  $k$  es una constante que da cuenta de la probabilidad de ocurrencia de procesos de quenching (también se asumirá que es una constante característica del centelleador). Aunque este modelo fue pensado para centelleadores orgánicos, ha probado ser útil al aplicarlo a centelleadores inorgánicos para diferentes iones en el rango de energías del MeV [15, 23]. La integración de la ecuación (3.2) nos dará como resultado el rendimiento del material:

$$L = S \int_0^{R(E_i)} \left( \frac{\frac{dE}{dr}}{1 + k \frac{dE}{dr}} \right) dr \quad (3.3)$$

donde  $R(E_i)$  es la distancia que recorre la partícula dentro del material centelleador cuando incide sobre el mismo con energía  $E_i$  (*rango*). Dado que usaremos el programa SRIM para calcular  $dE/dr$ , en el que esta se da en función de la energía o el rango pero no de la posición de la partícula dentro del medio, no usaremos la expresión (3.3) para el cálculo teórico de  $L$ . En su lugar, manipularemos la ecuación (3.2) para obtener

$$\frac{dL}{dE} = \frac{S}{1 + k \frac{dE}{dr}(E)} \quad (3.4)$$

$$L_{teo}(E_i) = \int_0^{E_i} \frac{SdE}{1 + k\frac{dE}{dE}(E)} \quad (3.5)$$

Determinado experimentalmente  $L_{exp}(E_i)$  y conocidos  $S$  y  $k$  para cada material centelleador de otros experimentos [23], podremos testar este modelo teórico.

### 3.3 Aplicación en dispositivos de fusión: FILDs

Como comentamos en el apartado 2.4, los detectores usados en dispositivos de fusión para medir la pérdida de iones rápidos son los llamados FILD. En la figura siguiente puede verse un esquema básico de la parte de estos detectores dónde se implementa el material centelleador. De las ecuaciones (2.3) se deduce que el radio de giro de las partículas del plasma depende de la velocidad de las mismas, y por tanto de su energía. Así, la cabeza del detector FILD se coloca de forma estratégica en las paredes internas del dispositivo de fusión para que sólo las órbitas de los iones rápidos (supratérmicos) puedan llegar y penetrar en ella a través del colimador. Una vez producido el fenómeno de ioluminiscencia en el material centelleador, los fotones se dirigen hacia un sistema óptico de adquisición que permite tanto medir el número de ellos como reproducir la distribución espacial y temporal de los iones rápidos que impactan sobre la pared interna del tokamak.

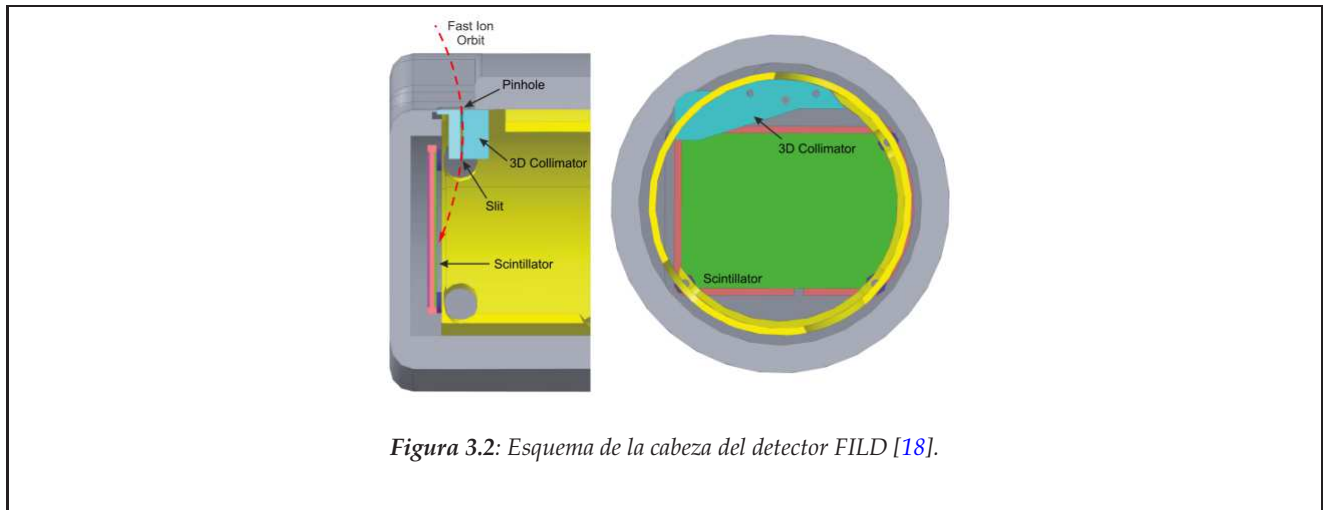


Figura 3.2: Esquema de la cabeza del detector FILD [18].

Los materiales centelleadores son los mejores candidatos para formar parte de la cabeza de los FILDs debido a su compacidad (en contraposición, los detectores de gas suelen requerir mayores dimensiones) y su inmunidad a que se produzcan tanto bucles de masa (corrientes indeseadas que aumentan el ruido de fondo) como interferencias electromagnéticas [20].

La correcta operación del FILD en las condiciones extremas del interior del tokamak dependerá en gran medida de la elección del material centelleador. En general dicho material debe satisfacer las siguientes condiciones [20, 24]:

- 1) Alta sensibilidad a las partículas pesadas que escapan del plasma ( $\alpha$ ,  $D$ ,  $T$  y protones principalmente). Como vimos anteriormente, los centelleadores inorgánicos son una buena elección para este cometido.
- 2) Baja sensibilidad a cualquier otro tipo de partícula (rayos  $\gamma$ , neutrones, electrones, etc). Para este propósito el colimador supone una gran ayuda.
- 3) Tener un tiempo de respuesta pequeño ( $\lesssim \mu s$ ), para poder caracterizar la frecuencia de las fluctuaciones MHD. Los materiales más usados tienen tiempos de respuesta del orden de  $\sim 0.1 \mu s$ .
- 4) Alta eficiencia de detección para todo el rango de energías de estos iones rápidos:  $[\sim 0.1 - 10] MeV$ .
- 5) Producir luz de forma continua y minimizando los procesos de quenching para el rango de temperaturas y energías de los iones de operación del tokamak.

Como hemos venido comentando, el objetivo de este trabajo es intentar ahondar en este último punto.

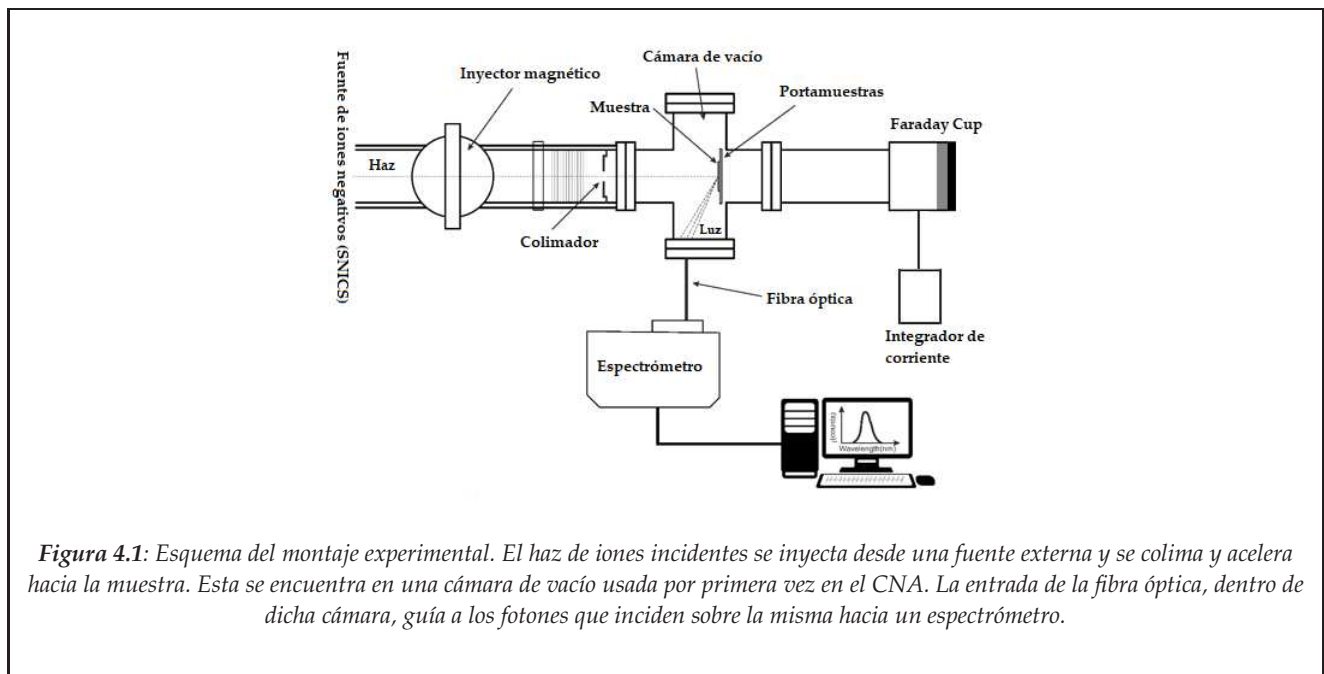
## 4 Montaje experimental

En esta sección se expone y discute el montaje experimental para las medidas del rendimiento de las muestras centelleadoras que se describen a continuación. Como comentamos en el resumen, esta fue la primera vez que se realizaron en el CNA este tipo de experimentos para iones de energías del orden de decenas de keV. En la figura 4.1 se muestra un esquema del montaje experimental. Los experimentos realizaron con tres muestras centelleadoras elegidas por ser muy buenas opciones con respecto a las condiciones de operación listadas al final de la sección anterior, a saber:

**TG Green [23]** Cristal de composición  $SrGa_2S_4$  cuyo activador es el  $Eu^{2+}$ . Emite luz verde (de ahí su nombre) teniendo su máximo espectral en torno a 535nm, resultado de la transición  $^4F \rightarrow ^5D$  del Eu. Tiene una densidad de  $3.65g/cm^3$  y un gap de energías prohibido de 4.2eV a temperatura ambiente. Su tiempo de respuesta es de  $\sim 0.49\mu s$ . El TG Green fue usado por primera vez como transductor en dispositivos tokamak.

**P46 (YAG: Ce) [15]** Es un óxido de tierras raras de composición  $Y_3Al_5O_{12}$  y dopado con  $Ce^{3+}$ . También emite luz verde con un pico en torno a 550nm, resultado de la transición  $^5D \rightarrow ^4F$  del Ce. Tiene una densidad de  $4.57g/cm^3$  y un gap de energías prohibido de 7.9eV a temperatura ambiente. Su tiempo de respuesta es incluso menor que para el TG Green, de unos  $\sim 0.07\mu s$ . El P46 ha sido usado en muchas ocasiones para diagnósticos de radiación, tanto en el campo de la energía de fusión como en otros (microscopios electrónicos, detectores de rayos X y electrones, etc).

**CIEMAT (YAP: Ce) [25, 26]** Es otro óxido de tierras raras de composición  $YAlO_3$  y dopado con  $Ce^{3+}$ . Emite luz con un máximo de intensidad en torno a los 370nm como resultado de las transiciones  $^4F \leftrightarrow ^5D$  del Ce. Su densidad es de  $5.37g/cm^3$  y su tiempo de respuesta es de unos  $\sim 0.03\mu s$ , menor que el de las otras dos muestras. Aunque el YAP: Ce se ha estudiado para su uso en varios campos de investigación incluido la energía de fusión, de momento no ha sido usado en dispositivos tokamak. Sin embargo, este material se presenta como uno de los mejores candidatos para optimizar el funcionamiento de los detectores FILD, debido a su alta eficiencia de centelleo y su corto tiempo de repuesta. Se denotará CIEMAT por haber sido manufacturado en sus instalaciones.



**Figura 4.1:** Esquema del montaje experimental. El haz de iones incidentes se inyecta desde una fuente externa y se colima y acelera hacia la muestra. Esta se encuentra en una cámara de vacío usada por primera vez en el CNA. La entrada de la fibra óptica, dentro de dicha cámara, guía a los fotones que inciden sobre la misma hacia un espectrómetro.

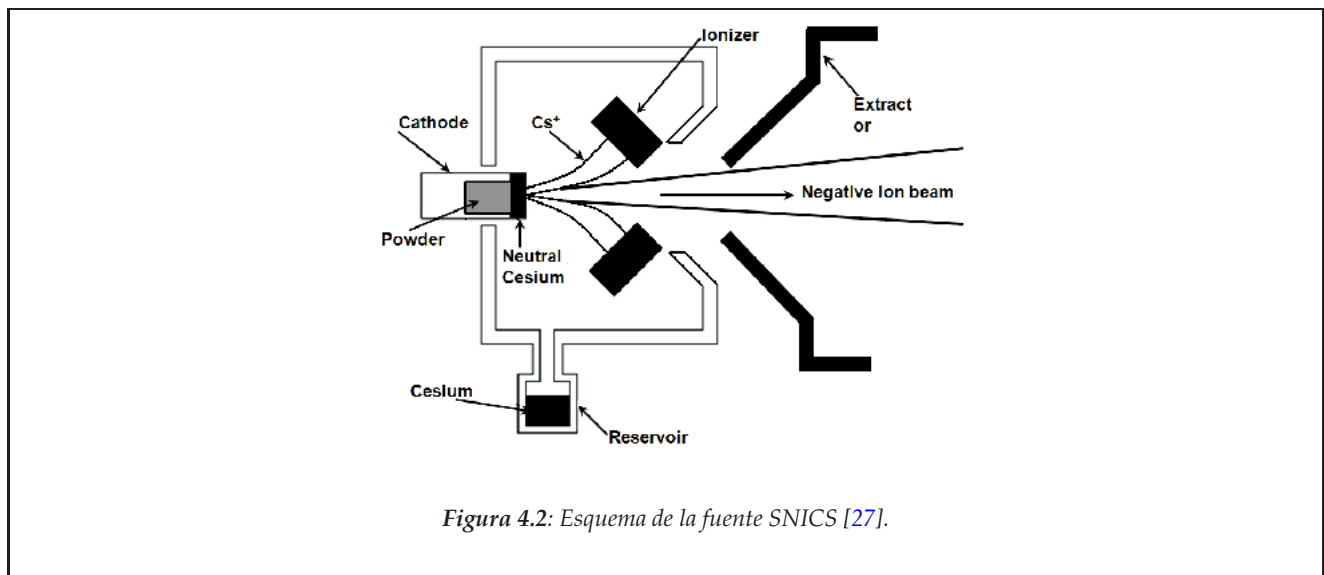
Todos las medidas se llevaron a cabo a temperatura ambiente y con iones de  $H^-$  a 72keV de energía. La corriente de iones se varió para las diferentes medidas, manteniéndose siempre en un intervalo de entre 1 y 3nA. El ángulo de incidencia (ángulo que forma la dirección del haz con la normal del portamuestras) se varió entre 0 y 90deg.

## 4.1 La fuente de iones (SNICS)

El SNICS (Source of Negative Ions by Cesium Sputtering) es una fuente de iones negativos que opera mediante bombardeo con iones de Cesio. En la figura 4.2 podemos ver un esquema básico de su funcionamiento. Un depósito que contiene el Cs se calienta a temperatura suficiente como para que este evapore y entre en la cámara central. En el extremo izquierdo de la misma (con respecto a la figura) se posiciona un cátodo a baja temperatura que se llena con una muestra sólida de un material que contiene al elemento a partir del cual queremos obtener el haz de iones negativos (como comentaremos más adelante, serán de hidrógeno en nuestro caso). En los extremos superior e inferior derecho se colocan dos ionizadores a temperatura suficiente como para ionizar los átomos de Cs que lo golpeen. Estos ionizadores se posicionan de forma que el espacio entre ellos permita que la mayoría de los iones negativos generados puedan llegar al extractor. Todo el sistema se mantiene en un alto vacío.

Cuando el vapor entra en la cámara, algunas de las partículas de Cs se enfrían, neutralizándose y adhiriéndose a la superficie del cátodo. Otras inciden sobre la superficie de los ionizadores y se convierten en iones de  $Cs^+$ , que son rápidamente atraídos por el cátodo. El voltaje se elige de forma que se optimice la probabilidad de ocurrencia de sputtering (erosión) en la superficie de la muestra sólida. Las partículas resultantes de la erosión pasan a través de la capa de Cs depositada en la superficie del cátodo. Si estas tienen una mayor afinidad electrónica que el Cs (como es el caso del hidrógeno), algunas capturarán electrones del mismo, convirtiéndose en iones negativos que serán rápidamente repelidos por el cátodo hacia el extractor.

Entre la cámara de vacío (en la que se encuentra la muestra centelleadora) y el extractor se coloca un inyector magnético seguido de un colimador, como vemos en la figura 4.1. El inyector magnético ayuda a guiar a los iones hacia la cámara de vacío y el colimador nos permite modelar el diámetro del haz.



Como comentamos en la sección 2, uno de los métodos de calentamiento plasmático para dispositivos de fusión se basa en la inyección de haces de partículas neutras (NBI) a energías mayores que las térmicas del plasma. Dichas partículas se ionizan mediante colisiones con los iones del plasma y se suman al mismo, empezando así a ceder su energía mediante más colisiones. Ello siempre y cuando no escapen del plasma, y es por ello que deben controlarse estas pérdidas. El D es el tipo de partícula más usada en el método NBI, pues coincide con las del combustible. Sin embargo en nuestros experimentos usamos haces de iones de hidrógeno, pues se evitan problemas de radiación y son suficientes para sacar unas primeras conclusiones teniendo en cuenta lo novedoso del experimento.

Por otro lado, los iones que escapan en dispositivos tokamak son positivos, pues en la ionización de las partículas neutras usadas en el método NBI los electrones son cedidos al plasma. No obstante, la fuente SNICS opera con haces de iones negativos. Aunque el CNA cuenta con un acelerador Tandem que podría ofrecernos un haz de iones de  $H^+$  (protones), los experimentos se realizaron con haces de  $H^-$  por motivos que comentamos a continuación.

La energía óptima de inyección de la fuente SNICS está en torno a  $E_i = 72keV$  (razón por la cual es la energía de los iones del haz incidente). Los iones negativos a esta energía se colimarían para obtener un haz de diámetro definido y se acelerarían hacia el terminal positivo del Tandem, para ser despojados de sus electrones en ese punto mediante un stripper. Tras ello, se produciría una segunda aceleración de los iones positivos al ser repelidos por dicho terminal. Dado que el potencial mínimo de operación del Tandem es de  $V_{min} = 300kV$ , mediante este método obtendríamos haces de  $H^+$  con una energía de unos  $2V_{min} + E_i \sim 700keV$ , mucho mayor que la de los

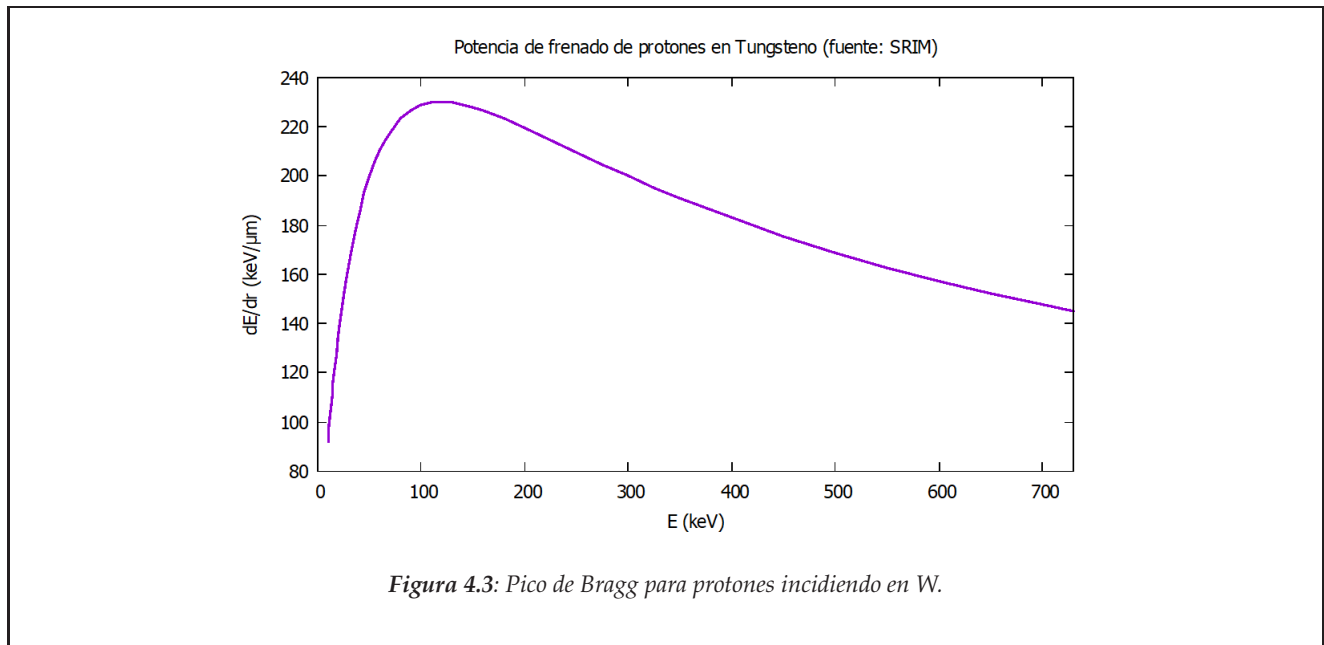


iones plasmáticos tras la inyección con el método NBI ( $\sim 100\text{keV}$ ). Si colocásemos una lámina de un material de alto número atómico  $Z$  tras la segunda aceleración, podríamos degradar el haz hasta las energías deseadas. Si bien las colisiones con los átomos del degradador harían que las partículas sufrieran un stragglng en sus trayectorias y se desviarían del haz inicialmente colimado, mediante un segundo colimador colocado tras esta lámina obtendríamos de nuevo un haz de diámetro definido que impactaría sobre la muestra centelleadora. Aunque esta metodología experimental parece en principio la ideal para nuestras medidas, en seguida encontramos varias limitaciones.

En primer lugar, en su paso por la lámina de degradador las partículas no sólo sufrirían un stragglng en sus trayectorias, sino que también las sufrirían en energías. En general el Au es el elemento óptimo para usar como degradador, pero el más común encontrado en los laboratorios es el W. Usando el programa SIMNRA podemos simular tanto el espesor que debe tener la capa de W para degradar el haz de  $\approx 700\text{keV}$  a  $\sim 100\text{keV}$  como la indeterminación en energías de las partículas salientes. El resultado es que con una fina lámina de W de unos  $\sim 3.2\mu\text{m}$  conseguiríamos degradar el haz hasta una energía media por partícula de  $\sim 100\text{keV}$ , pero con un stragglng de unos  $\approx 46\text{keV}$ .

Por otro lado, estos protones se encontrarían en torno al pico de Bragg (es decir, tendrían un rango de energías  $E \approx 100 \pm 48\text{keV}$  para el que la potencia de frenado es máxima) justo antes de emerger del degradador. Este es precisamente el intervalo de energías en el que la sección eficaz de intercambio de carga de los protones en la materia es máxima [28, 29, 30, 31]. Dicha sección eficaz se define como la suma de la sección eficaz de captura ( $\sigma_c$ ) y pérdida ( $\sigma_p$ ) de electrones. Si bien  $\sigma_p$  es relativamente constante hasta energías del orden del MeV,  $\sigma_c$  crece muy fuertemente al disminuir la energía, llegando a ser hasta 10000 veces más probable el que ocurra la captura de un electrón para neutralizar al  $H^+$  para  $100\text{keV}$  que para  $1\text{MeV}$  [29]. Con todo ello, el haz resultante tras la degradación tendría una indeterminación en el estado de carga, lo que se traduce en una indeterminación en la corriente que incide sobre el material centelleador.

Por último, cabe destacar que el uso de iones de  $H^-$  es equivalente al de iones de  $H^+$ . Esto se debe a que cuando el  $H^-$  impacta sobre la muestra, pierde sus dos electrones de forma casi instantánea, convirtiéndose en un ion de  $H^+$ .



En conclusión, si el experimento se hubiera llevado a cabo con protones dadas las instalaciones del CNA, tendríamos una pérdida significativa de precisión tanto en la energía de los iones como en la corriente incidente sobre las muestras, por lo que el rendimiento medido no sería absoluto. Estas limitaciones consiguen superarse si se usan iones de  $H^-$  con la fuente SNICS.

## 4.2 La cámara de vacío

El CNA incorporó una nueva cámara de vacío que fue usada por primera vez en estos experimentos. En la Figura 4.4 podemos ver el montaje de la misma.

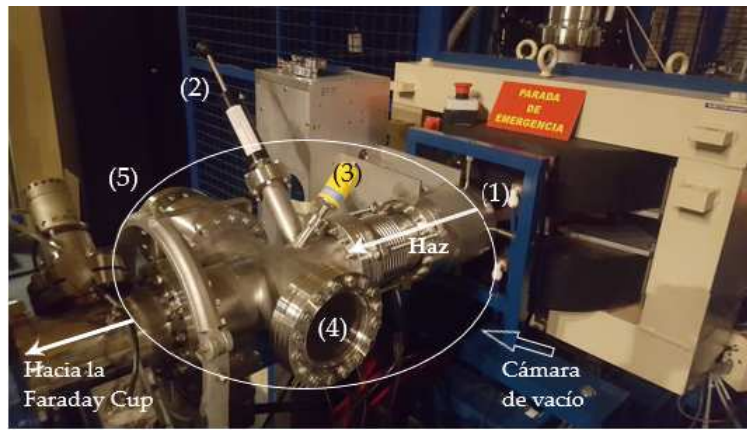


Figura 4.4: Montaje experimental de la cámara de vacío .

La cámara se acopla a la salida del inyector magnético usado para guiar a los iones hacia su interior (1). Tras dicho acople se posiciona el colimador, que puede manipularse de forma externa mediante una barra de control que permite modificar el diámetro del haz, bloquearlo o retirar el colimador completamente (2). En nuestros experimentos el haz colimado tenía un diámetro de  $D = 1\text{mm}$ . En la parte externa del sistema disponemos también de un vacuómetro (3) que nos permite evaluar el nivel de vacío dentro de la cámara en todo momento. A través de una ventana de cuarzo (4) podemos observar el interior de la cámara.

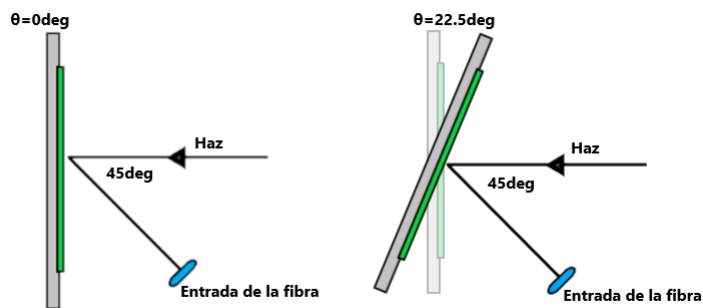
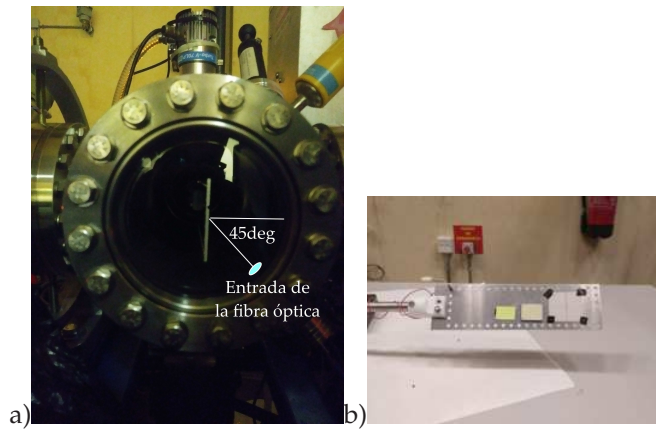


Figura 4.5: Esquema de la geometría del sistema durante las medidas variando el ángulo de incidencia  $\theta$ .

Cada muestra de material se coloca en sobre un portamuestras de aluminio de dimensiones  $19.6\text{cm} \times 5.5\text{cm}$ . El portamuestras está aislado eléctricamente, mediante una pieza de teflón, de unos brazos rotatorios acoplados al mismo. El poder rotar el postramuestras permite realizar medidas variando el ángulo de incidencia del haz (figura 4.5). Estos brazos serían perpendiculares al plano de la Figura 4.1 y se manipulan desde la posición diametralmente opuesta a la ventana de cuarzo (5). Cuando giramos el portamuestras justo  $90\text{deg}$  con respecto a la dirección del haz, permitimos que este siga su trayectoria hacia una Faraday Cup que nos mide la corriente incidente. El manipulador externo de los brazos rotatorios está aislado de la cámara de vacío mediante una válvula de guillotina que se abre y cierra mediante una electroválvula, lo que permite insertar las muestras sin alterar el nivel de vacío del acelerador. A su vez la electroválvula está conectada a un sistema de seguridad SAI, que la alimenta en caso de un corte de corriente (si hubiera un apagón durante las medidas, la guillotina se cerraría dañando los brazos rotatorios).



**Figura 4.6:** Vista lateral del portamuestras en el interior de la cámara a través de la ventana de cuarzo (a). Portamuestras acoplado al brazo rotatorio con las muestras centelleadoras colocadas (b).

### 4.3 La fibra óptica y el espectrómetro [15, 32]

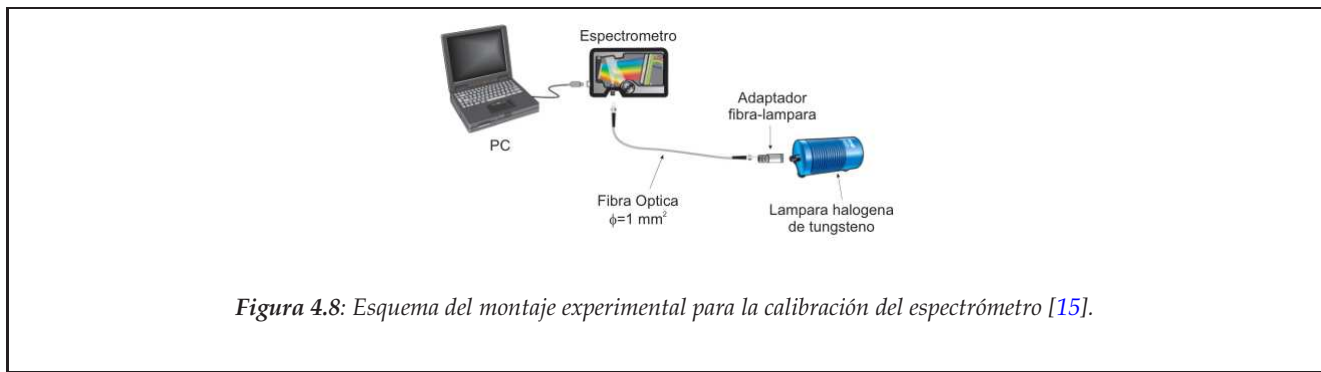
La fibra óptica de sílice se encuentra colocada a 45deg con respecto a la dirección del haz de iones y tiene 1mm de diámetro. Cuando la luz de centelleo llega a la entrada de la fibra, esta se guía hacia el espectrómetro con pocas pérdidas debido a la diferencia de índice de refracción entre la parte externa e interna de la estructura.

El espectrómetro usado es el QE6500 (Ocean Optics Inc.), cuyo diseño y partes principales pueden verse en la figura 4.7. El conector SMA asegura el correcto acople de la fibra al sistema, y a través de una abertura de tamaño variable puede regularse la cantidad de luz que entra. Tras ello, la luz pasa por un filtro que limita el rango de longitudes de onda que causarán señal. A continuación el haz entrante en el sistema se refleja en un espejo que lo colima hacia la red de difracción, que dispersa la luz en sus diferentes longitudes de onda y cuya densidad de líneas permite especificar la resolución espectral. Por último el haz se dirige hacia un espejo que lo focaliza hacia el detector CCD. Este es un detector de Silicio altamente sensible a la luz visible y cuya superficie externa está dividida en pequeñas áreas (píxeles). El espejo focalizador refleja el haz en cada pixel 2D en función de su longitud de onda, permitiendo tener medidas en todo el subconjunto espectral deseado.



**Figura 4.7:** Esquema del espectrómetro QE6500 (izquierda) y del funcionamiento del detector CCD (derecha) [15, 25].

Las medidas obtenidas con este sistema no son absolutas, pues parte del haz inicial que incide sobre la entrada de la fibra puede perderse por varios factores como el factor de transmisión de la fibra, la dimensión de la abertura, absorción en el sistema, etc. Es por ello que previamente a su utilización en el experimento, el espectrómetro debe ser calibrado con una fuente cuya irradiancia espectral es conocida. En nuestros experimentos usamos una lámpara halógena de tungsteno que emite en el intervalo espectral  $[350, 1000] \text{ nm}$ . Se obtuvo así una curva de calibración del espectrómetro que nos permite obtener medidas absolutas del número de fotones emitidos por las muestras centelleadoras dadas las condiciones del experimento.



#### 4.4 Montaje para la medida de la corriente incidente

Inicialmente el experimento fue diseñado para medir la corriente incidente mediante un integrador Brookhaven conectado al portamuestras, lo que nos permitía monitorear la corriente durante el tiempo de irradiación sin destruir el haz. Para evitar medidas erróneas por el escape de electrones secundarios de la superficie de la muestra, el portamuestras se polarizaba a +200V para atraerlos rápidamente de vuelta a la misma sin acelerar a los iones apreciablemente.

Al intentar realizar las medidas con este método, se encontró que no existía diferencia alguna en la lectura de la corriente cuando medíamos con colimador y sin él. Dado que no se encontró solución al problema, se intentó medir la corriente a tiempo real con otro tipo de integrador (lo llamaremos FC por ser el que se conecta normalmente a la Faraday Cup de la que dispone el CNA). En un intento de realizar la primera medida del rendimiento, se observó un nivel de degradación del material demasiado elevado para la corriente que marcaba el integrador. Este problema se achacó al hecho de que el modelo de integrador FC tiene su límite de precisión para corrientes del orden del nA.

Con todo ello, se decidió a medir la corriente usando el montaje de la figura 4.1, en el que se usó una Faraday Cup conectada al integrador Brookhaven. Cuando el portamuestras se gira 90deg con respecto a la dirección del haz, este tiene libertad para continuar a través del sistema en línea recta e impactar sobre la Faraday Cup. Esta envía los pulsos al integrador, que los traduce en una lectura de la intensidad de iones incidente. Así, este montaje mide la corriente incidente hasta alcanzar un valor estable, y posteriormente se gira el portamuestras para comenzar la irradiación. Aunque con este método podemos medir la corriente de forma más precisa, obtenemos la limitación de no poder monitorear las fluctuaciones que pueda sufrir esta durante el tiempo de irradiación sobre la muestra.

## 5 Método de análisis de los resultados

Como comentamos en la sección 3, el objetivo del experimento es obtener una medida absoluta del rendimiento  $L_{exp}$  de las muestras para poder compararlo con los valores obtenidos teóricamente con el modelo de Birks. Para ello, debemos realizar un tratamiento de los datos primarios obtenidos directamente del espectrómetro, que supone cuentas para cada longitud de onda:  $N(\lambda)$ .

### 5.1 Curva de calibración

Primero debemos transformar el número de cuentas  $N(\lambda)$  en número de fotones  $N_\lambda(\lambda)$  que inciden sobre la fibra óptica. Para ello hacemos uso de los datos obtenidos al calibrar el espectrómetro con la lámpara halógena, como se describió en el apartado 4.3. Estos datos suponen la energía necesaria depositada para generar una cuenta dada una longitud de onda:  $E_{dep}(\lambda)$ . Sabiendo que la energía de un fotón con longitud de onda  $\lambda$  viene dada por

$$E_\lambda = \frac{hc}{\lambda} \simeq \frac{1240}{\lambda} (eV \cdot nm) \quad (5.1)$$

tendremos que el número de fotones con longitud de onda  $\lambda$  incidiendo en la entrada de la fibra por cada cuenta vendrá dado por

$$C(\lambda) = \frac{E_{dep}}{E_\lambda} [\gamma/cuenta] \quad (5.2)$$

De esta forma, tendremos que

$$N_\lambda(\lambda) = C(\lambda)N(\lambda) \quad (5.3)$$

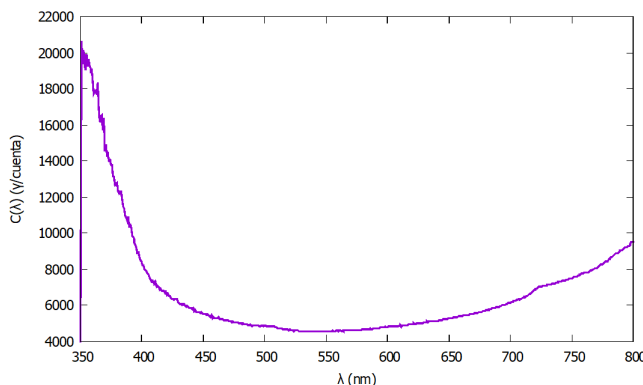


Figura 5.1: Curva de calibración del espectrómetro con la lámpara halógena de W.

### 5.2 Corrección del ruido de fondo

Una vez obtenido  $N_\lambda(\lambda)$  necesitamos ajustar el cero del eje de ordenadas (las cuentas), ya que por lo general el nivel de ruido desplaza este cero. Para ello, y para cada material centelleador, seleccionamos una región  $[\lambda_1, \lambda_2]$  en la que sabemos no hay emisión y calculamos el valor medio de  $N_\lambda(\lambda)$  sobre la misma ( $R$ ). Después sustraemos dicho valor medio a todo  $N_\lambda(\lambda)$  para obtener un espectro final para cada espectro recogido en el tiempo de exposición  $\Delta t$ :

$$I(\lambda, \Delta t) = N_\lambda(\lambda) - R \quad (5.4)$$

La región escogida para el TG Green y el P46 es  $[200, 400] nm$  y para el CIEMAT  $[750, 950] nm$ . Esta operación se realiza de forma iterativa para cada uno de los espectros obtenidos durante el tiempo de exposición  $\Delta t$ , por lo que para ello se implementó un bucle en C++.

### 5.3 Cálculo de la tasa absoluta de fotones y el espectro de emisión

Una vez obtenido  $I(\lambda, \Delta t)$ , puede calcularse la tasa de fotones que incide sobre la fibra óptica como

$$\Gamma_{fibra}(t) = \frac{\sum_{\lambda_1'}^{\lambda_2'} I(\lambda, \Delta t)}{\Delta t} \quad (5.5)$$

donde  $[\lambda_1', \lambda_2']$  es el intervalo aproximado de emisión de cada material centelleador, a saber: [460, 640]nm para el TG Green, [450, 700]nm para el P46 y [300, 700]nm para el CIEMAT.

Para hallar la tasa absoluta de fotones, es decir, la cantidad de fotones emitidos por el material, debemos conocer la eficiencia geométrica de detección  $\varepsilon_{geo}$ . Si suponemos que la emisión de fotones es isotrópica y tenemos en cuenta que el radio de la entrada de la fibra ( $f = 0.5mm$ ) es muy pequeño en comparación a su distancia al centelleador ( $d = 100mm$ ), la eficiencia geométrica podrá calcularse como:

$$\varepsilon_{geo} \simeq \frac{A_f}{A_d} \quad (5.6)$$

donde  $A_f$  es el área de la entrada de la fibra ( $\pi f^2$ ) y  $A_d$  es el área de una superficie esférica de radio  $d$  ( $4\pi d^2$ ). La asunción de isotropía de emisión se respalda en el hecho de que el cristal es homogéneo y transparente a su propia emisión. De esta forma, la eficiencia geométrica para un emisor isotrópico en estas condiciones no es más que la probabilidad de que un fotón que se emite desde el centro de una esfera de radio  $d$  centrada en la zona de irradiación llegue a su superficie justo en el pequeño casquete esférico (aproximado como un disco plano) dónde se encuentra la entrada de la fibra. Tendremos pues que

$$\varepsilon_{geo} \simeq \frac{f^2}{4d^2} = \frac{1}{160000} \quad (5.7)$$

esto es, uno de cada 160000 fotones emitidos es capaz de llegar al sistema óptico de detección dada la geometría del experimento. Con ello, la tasa absoluta de fotones en función de  $t$  podrá hallarse como

$$\Gamma(t) = \frac{\Gamma_{fibra}(t)}{\varepsilon_{geo}} = \frac{1}{\varepsilon_{geo}} \frac{\left[ \sum_{\lambda_1'}^{\lambda_2'} I(\lambda, \Delta t) \right]}{\Delta t} \quad (5.8)$$

para cada uno de los espectros colectados durante  $\Delta t$ . Por otro lado, los espectros de emisión se mostrarán como

$$I(\lambda) = \frac{1}{I_{max}\varepsilon_{geo}} \sum_{\Delta t} I(\lambda, \Delta t) \quad (5.9)$$

Al dividir entre el valor máximo de  $I(\lambda)$  ( $I_{max}$ ), obtenemos los espectros normalizados.

Para el cálculo de  $\Gamma(t)$  e  $I(\lambda)$  se implementó un programa en C++. Es importante notar que  $I(\lambda)$  es dependiente del tiempo de irradiación  $T = n\Delta t$  ( $n \in \mathbb{N}$ ), por lo que la forma de sus picos podrá variar con  $T$ .

### 5.4 Cálculo del rendimiento absoluto experimental

Una vez obtenido  $\Gamma(t)$  (fotones/s), para hallar el valor experimental del rendimiento absoluto en función del tiempo sólo necesitaremos dividir por la intensidad de iones  $i$  ( $nA = 10^{-9}C/s = \frac{10^{-9}C/s}{|e|C/protón} \simeq 6.242 \cdot 10^9$  iones/s, siendo  $e$  la carga del electrón), de forma que

$$L(t) = \frac{1}{i\varepsilon_{geo}} \frac{\left[ \sum_{\lambda_1'}^{\lambda_2'} I(\lambda) \right]}{\Delta t} = \frac{\Gamma(t)}{i} \quad (5.10)$$

Como veremos,  $L(t)$  es una función decreciente con el tiempo de irradiación, pues durante el mismo la continua incidencia de iones va produciendo un daño en el centelleador que reduce su rendimiento (el material se

degrada). Así pues, para cada una de las medidas, el valor del rendimiento absoluto experimental  $L_{exp}$  se calculará en base al modelo de Black-Birks para la degradación de los centelleadores por bombardeo iónico [21], que puede escribirse en la forma [15]:

$$L(F) = \frac{L_{exp}}{1 + F/F_{1/2}} \quad (5.11)$$

dónde  $F$  es la fluencia de iones. Esta se define como el número de iones incidentes por unidad de área de la superficie del centelleador. Si la corriente  $i$  de iones es constante, por definición tendremos que

$$F(t) = \frac{it}{|q|S_h} \quad (5.12)$$

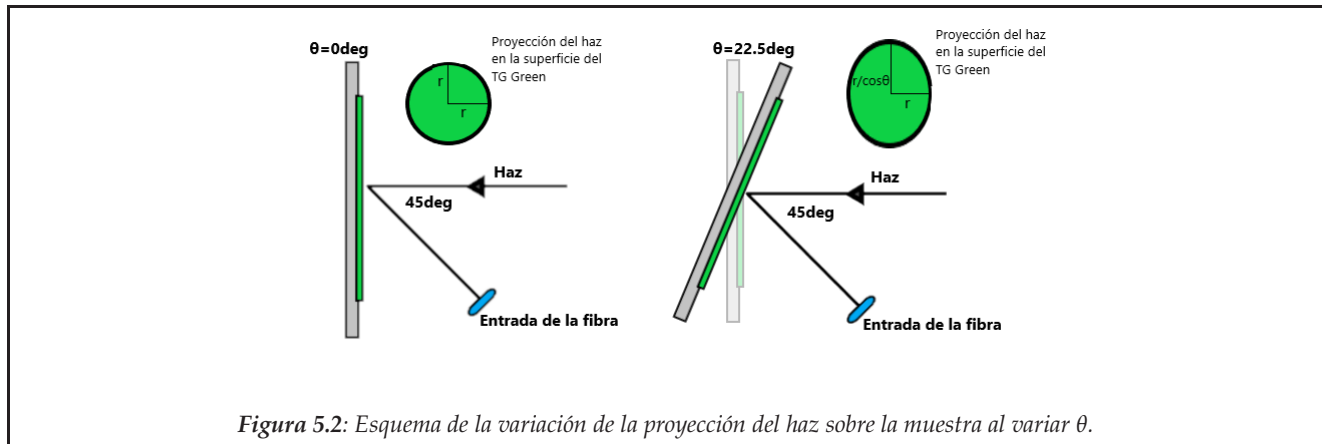
donde  $q$  es la carga del ion ( $|q| = +e$  en nuestro caso) y  $S_h$  es el área de la proyección del haz sobre la superficie de la muestra. Cuando irradiamos normalmente a la muestra,  $S_h$  coincide con la sección transversal del haz:  $S_h = \pi(D/2)^2$ . Si la muestra se gira un cierto ángulo  $\theta$  con respecto a la dirección del haz, la proyección del mismo es una elipse de área  $S_h = \pi(D/2)^2/\cos\theta$  (figura 5.2). De esta forma tenemos que

$$F(t, \theta) = \frac{4it\cos\theta}{e\pi D^2} \quad (5.13)$$

y podemos reescribir la ecuación 5.11 en función del tiempo como

$$L(t) = \frac{L_{exp}}{1 + Ait\cos\theta/F_{1/2}} \quad (5.14)$$

donde  $A = 4/(e\pi D^2) = cte$ ,  $L_{exp}$  es el rendimiento en el instante  $t = 0$  de comenzar la irradiación (y se define aquí como el absoluto experimental) y  $F_{1/2}$  es una constante que se define de forma que  $L(F = F_{1/2}) = L_{exp}/2$ .



Es importante notar que la parametrización presentada en 5.14 no implica que estemos asumiendo que las muestras no radian isotrópicamente, pues la dependencia en  $\theta$  introducida está relacionada con la fluencia de iones y no con la dirección de detección. Así, se espera que el rendimiento absoluto experimental  $L_{exp}$  no se vea afectado al variar  $\theta$ .

Comparando  $L(t)$  calculado con 5.10 y 5.14 podremos obtener el valor del rendimiento absoluto experimental mediante un ajuste de los parámetros  $L_{exp}$  y  $F_{1/2}$ . Nótese que el cálculo de  $F_{1/2}$  nos dará información sobre la resistencia del material a degradarse frente al bombardeo iónico.

El uso del modelo de Black-Birks está justificado dado su éxito al aplicarlo para explicar la degradación con el tiempo de irradiación (o fluencia) tanto del TG Green y el P46 como de otros cristales [15, 33, 34].

## 6 Resultados y discusión

Todos los resultados presentados en esta sección fueron obtenidos con el montaje experimental descrito en la sección 4 y analizados con la metodología expuesta en la sección 5. La entrada de la fibra estaba fija a 45deg con respecto a la dirección del haz. Las medidas se realizaron a temperatura ambiente y la energía de los iones se mantuvo constante en todas las medidas a 72keV.

La corriente incidente ( $i$ ), los tiempos de exposición ( $\Delta t$ ) e irradiación ( $T$ ) y la dirección del haz con respecto a la normal a la muestra ( $\theta$ ) variaron para cada medida. La tabla 6.1 recoge estas condiciones experimentales para cada una de ellas. Se realizaron 6 medidas con el TG Green, 3 con el P46 y 1 con el CIEMAT.

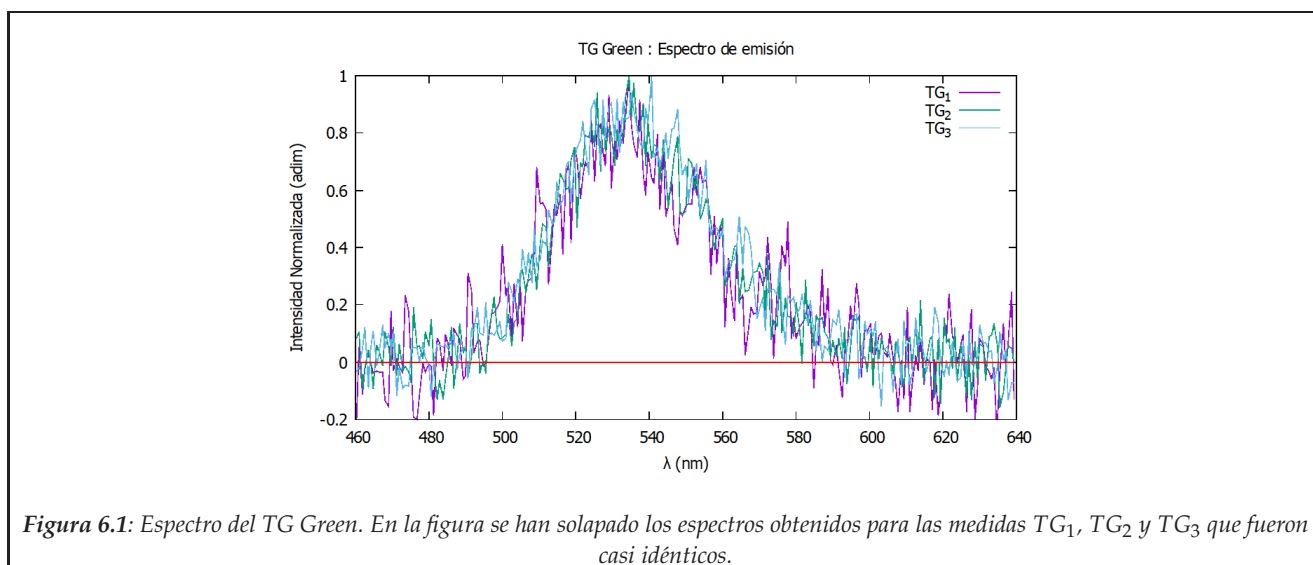
Etiqueta	Muestra	$i(nA)$	$\Delta t(s)$	$T(s)$ (aprox)	$\theta(deg)$
$TG_1$	TG Green	1-2.5 (media 1.75)	0.5	62	0
$TG_2$	TG Green	2.6	0.5	37	0
$TG_3$	TG Green	3	0.5	37	0
$TG_4$	TG Green	3	0.5	46	22.5
$TG_5$	TG Green	3	0.5	50	45
$TG_6$	TG Green	3	0.5	41	0-90
$P46_1$	P46	2.5	0.5	26	0
$P46_2$	P46	2.5	1	12	0
$P46_3$	P46	2.7	1	24	0
CIEMAT	CIEMAT	2.5	1	45	0

Tabla 6.1: Condiciones experimentales para cada una de las medidas realizadas.

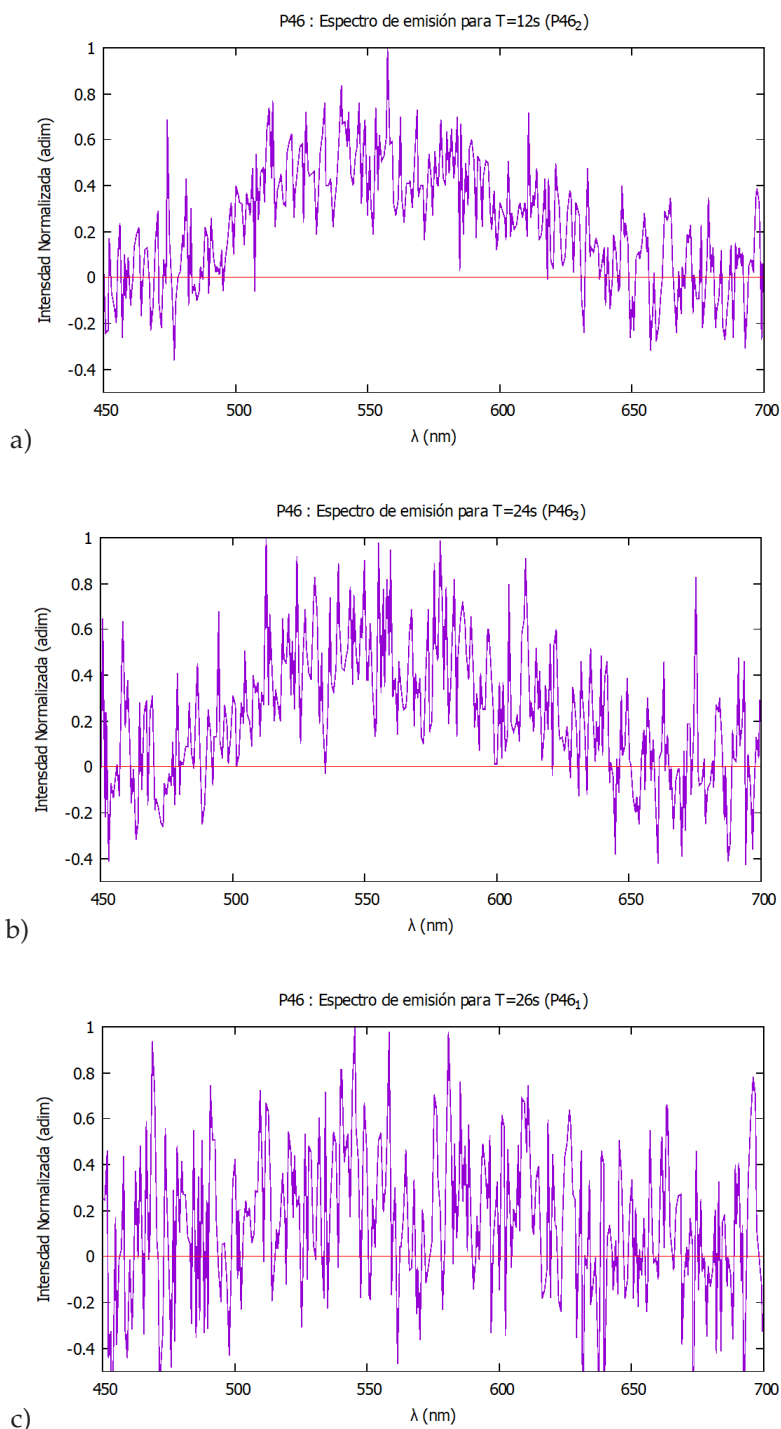
### 6.1 Espectros de emisión de las muestras centelleadoras en incidencia normal

Las correcciones por el ruido de fondo fueron casi despreciables en todos los casos y los espectros  $I(\lambda)$  se calcularon con la ecuación 5.9.

Los espectros de emisión para todas las medidas realizadas con el TG Green en incidencia normal fueron casi idénticos, con un pico en torno a 535nm. En la figura 6.1 podemos ver su espectro normalizado.



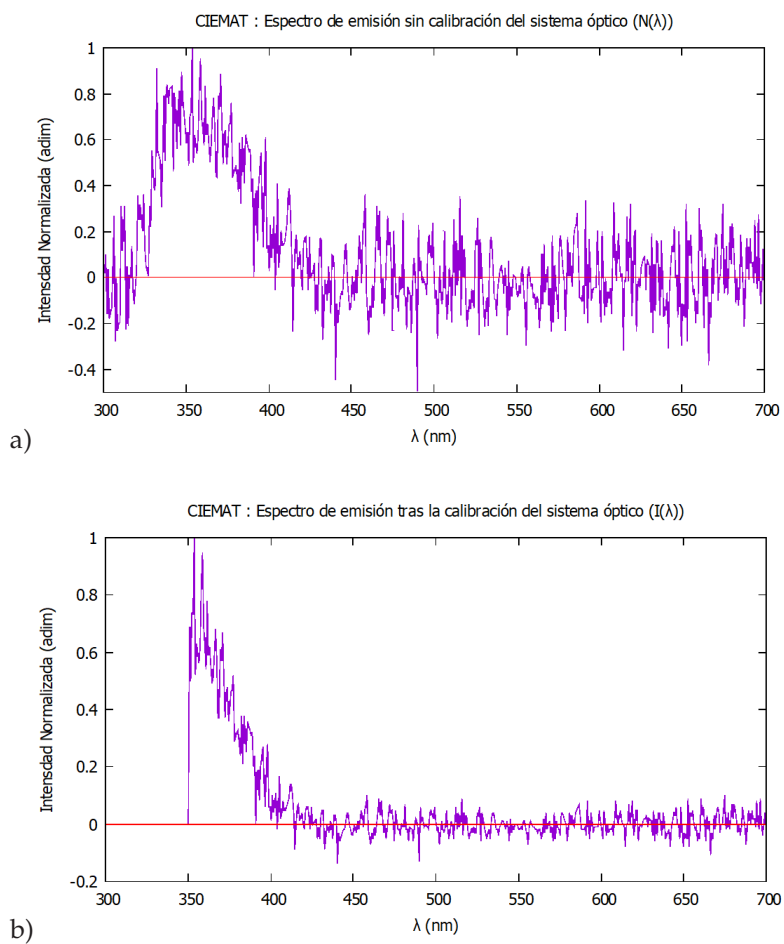




**Figura 6.2:** Evolución del espectro del P46 con el tiempo de irradiación  $T$ . Cuando dicho tiempo tiene un valor elevado (b,c), los daños producidos por el haz de iones disminuyen la intensidad de emisión de luz de centelleo.

En el caso del P46, los espectros difieren dependiendo del tiempo de irradiación  $T$ , como podemos ver en la figura 6.2. Cuando el espectro se recoge en 12s tenemos un tenue pico de emisión en torno a 550nm, pero cuando se recoge en tiempos mayores este pico se deforma y parece que se esté recogiendo sólo ruido. Esto se debe a que para grandes valores de  $T$ , la muestra de P46 ha sufrido demasiado daño iónico en su superficie y la eficiencia de centelleo disminuye.

En la figura 6.3 se presenta el espectro para la única medida realizada con el CIEMAT, con un pico en torno a 360nm. Dado que la lámpara halógena de W no emite por debajo de los 350nm, no pudimos calibrar el espectrómetro para todo el intervalo de emisión de esta muestra (figura 6.3b). Así, el rendimiento experimental que obtendremos para el CIEMAT no es absoluto. Para la caracterización de este centelleador de forma absoluta se podría usar una lámpara halógena de Hg(Ar) que emite en el rango espectral [180-1200]nm.



**Figura 6.3:** Espectro del CIEMAT. La figura (a) muestra el número de cuentas por longitud de onda  $N(\lambda)$  sin calibrar el espectrómetro, que ilustra el intervalo de emisión real del centelleador. La figura (b) muestra el número de fotones emitidos por la muestra en el intervalo espectral que permite la calibración del sistema óptico.

## 6.2 Rendimiento absoluto de las muestras centelleadoras en incidencia normal

### 6.2.1 Resultados experimentales

En este apartado presentamos el rendimiento hallado experimentalmente para cada una de las muestras con el haz incidiendo normalmente sobre las mismas. Siguiendo el método de análisis expuesto en la sección 5, primeramente obtenemos la tasa absoluta de fotones en función del tiempo  $\Gamma(t)$  de acuerdo a la ecuación 5.8. Con ella, el rendimiento absoluto en función del tiempo  $L(t)$  puede hallarse para cada muestra sin más que aplicar la ecuación 5.10. Con  $L(t)$  calculado,  $L_{exp}$  puede hallarse para cada medida mediante un ajuste de los datos experimentales con el modelo de Black-Birks (ecuación 5.14). Los resultados se muestran en la tabla 6.3.

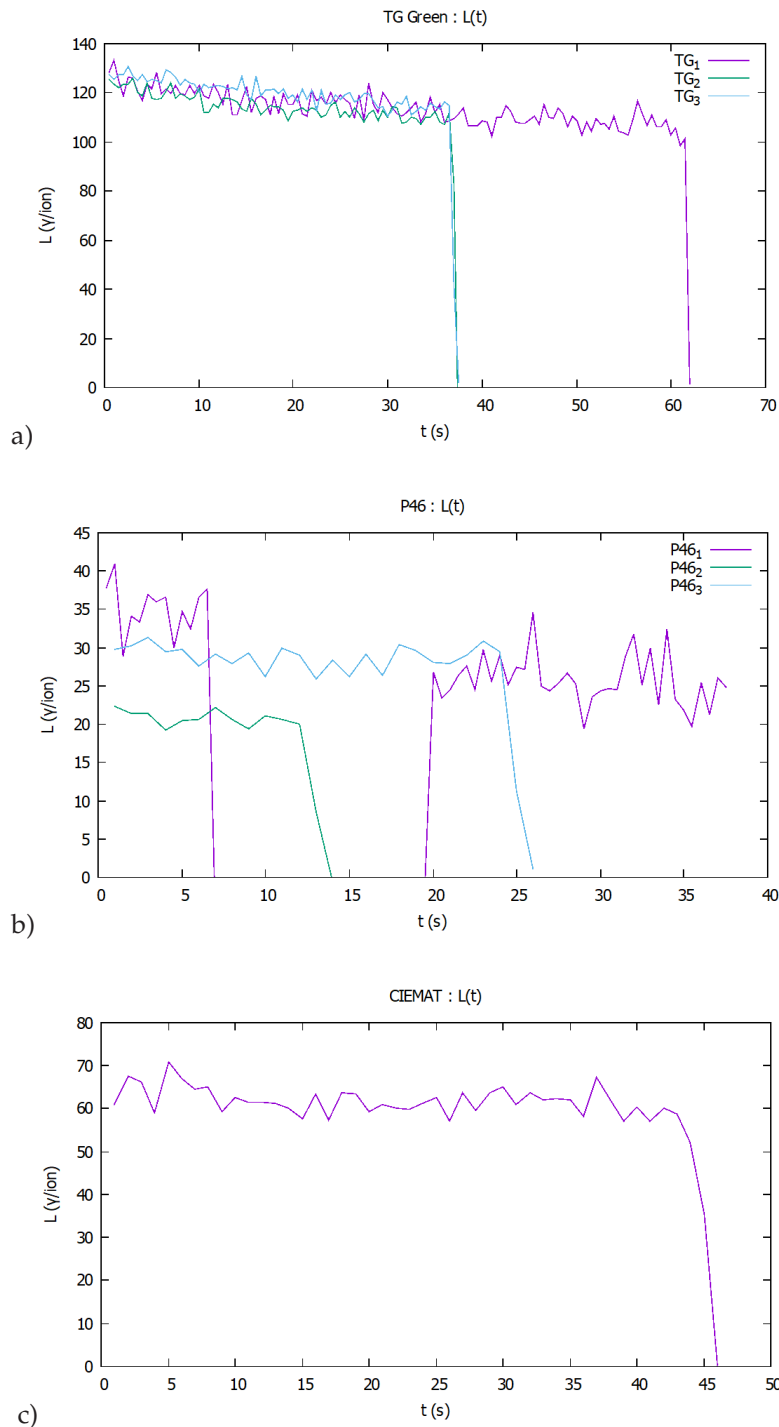


Figura 6.4: Rendimiento en función del tiempo para el TG Green (a), el P46 (b) y el CIEMAT (c). En las gráficas se ha ajustado el origen de abscisas y de ordenadas para coincidir con el tiempo aproximado en que comenzó la irradiación y con el valor de  $L(t)$  cuando no había corriente incidiendo en la muestra, respectivamente.

De la figura 6.5 puede deducirse que para iones de  $H$  el P46 tiene un rendimiento más bajo que el TG Green, lo que ya se confirmó para diferentes especies iónicas a energías del orden del MeV [15, 23]. No obstante, no es posible confirmar con nuestros experimentos si el TG Green tiene un mayor rendimiento que el CIEMAT, pues para este último la medida no es absoluta. En cualquier caso, cabe mencionar que otros experimentos confirmaron que el CIEMAT tiene una eficiencia de centelleo mayor que el TG Green al menos para energías de incidencia de hasta 40keV [26].

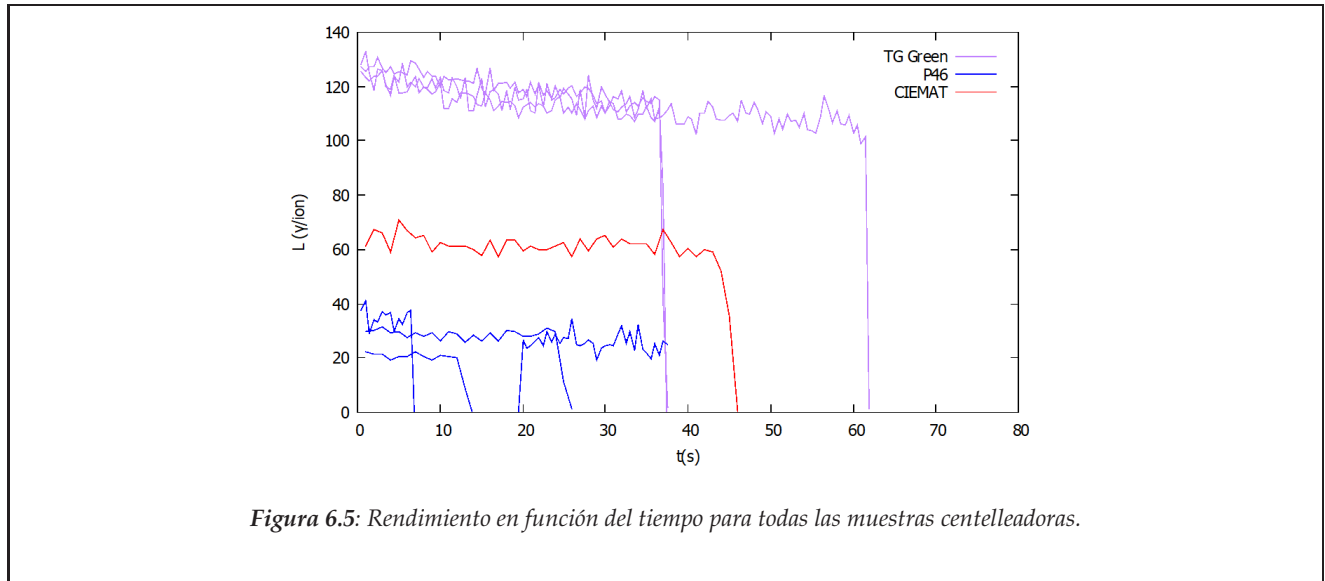


Figura 6.5: Rendimiento en función del tiempo para todas las muestras centelleadoras.

Los valores experimentales de los parámetros  $S$  y  $k$  definidos en el apartado 3.2 fueron hallados para el TG Green y el P46 en experimentos con iones de energías del orden del MeV y en las mismas condiciones de temperatura e incidencia del haz de nuestras medidas [23]. Los resultados se muestran en la tabla 6.2. Dado que para la muestra CIEMAT no disponemos de referencias para el valor de los parámetros  $S$  y  $k$  y además su rendimiento hallado experimentalmente no es absoluto, no pudimos testar el modelo de Birks con este centelleador. Si que podemos argumentar, dados los valores de  $F_{1/2}$  en el ajuste de los datos experimentales, que el CIEMAT es el centelleador más resistente a la degradación por daño iónico.

	TG Green	P46
$S(\gamma/ion \cdot eV)$	0.179	0.051
$k(10^{15}at/cm^2/eV)$	0.05	0.13

Tabla 6.2: Parámetros  $S$  (eficiencia) y  $k$  (parámetro de quenching) obtenidos experimentalmente [23].

Si consideramos que  $S$  y  $k$  son constantes con la energía de incidencia, podremos hacer uso del modelo de Birks para calcular  $L_{teo}$  y compararlo con los resultados experimentales.

En la figura 6.6 podemos ver como varía  $dL/dE$  para el TG Green y el P46. Hemos hecho uso de la ecuación 3.4 y del programa SRIM para el cálculo de  $dE/dr$  en el rango de energías de integración. Dado que para cada muestra  $L_{teo}$  es el área bajo la curva de la función  $dL/dE$ , hemos realizado un ajuste de los datos para cada muestra con gnuplot, encontrando en cada caso la función que mejor reproduce los datos para su integración. Junto a las figuras se presentan las formas de cada una de estas funciones. Es importante destacar que estas no se han calculado con el fin de dar significado físico, sino para servir como herramienta matemática. Por último se ha implementado un programa en C++ para aplicar el método de integración numérica de Simpson [35] a la ecuación 3.5 y obtener los resultados, que se muestran en la tabla 6.3.

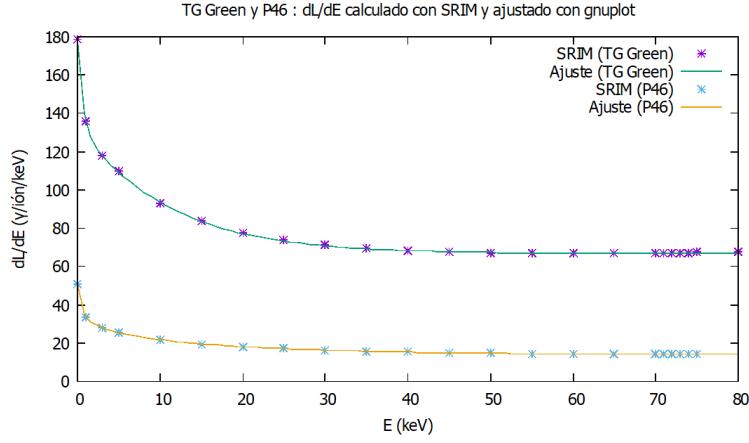


Figura 6.6:  $dL/dE(E)$  para el TG Green y el P46 calculado con la ecuación 3.4 y presentado junto a sus ajustes:

$$dL/dE(E)|_{TG} = \frac{S + E/A_1}{1 + kA_2E \cdot \exp(-A_3E) + kA_4 \log(A_5E + 1)} (\gamma/ion/keV) \quad \left\{ \begin{array}{l} A_1 = 2.1(1) \text{ ion} \cdot \text{keV}^2/\gamma \\ A_2 = -0.00288(8) \text{ (cm}^2/10^{15}\text{at)} \\ A_3 = 0.143(4) \text{ 1/keV} \\ A_4 = 0.0091(2) \text{ (keV} \cdot \text{cm}^2/10^{15}\text{at)} \\ A_5 = 1.66(7) \text{ 1/keV} \end{array} \right. \quad (6.1)$$

$$dL/dE(E)|_{P46} = \frac{S}{1 + kC_1E \cdot \exp(-C_2E) + kC_3 \log(C_4E + 1)} (\gamma/ion/keV) \quad \left\{ \begin{array}{l} C_1 = 0.000395(5) \text{ (cm}^2/10^{15}\text{at)} \\ C_2 = 0.01414(9) \text{ 1/keV} \\ C_3 = 0.00148(2) \text{ (keV} \cdot \text{cm}^2/10^{15}\text{at)} \\ C_4 = 10.8(5) \text{ 1/keV} \end{array} \right. \quad (6.2)$$

Medida	$L_{exp}(\gamma/ion)$	$L_{teo}(\gamma/ion)$	$F_{1/2}(10^{14}\text{iones/cm}^2)$
TG <sub>1</sub>	123.8±0.7	5557.4	4.8±0.3
TG <sub>2</sub>	122.2±0.6		5.8±0.4
TG <sub>3</sub>	128.2±0.6		6.6±0.4
P46 <sub>1</sub>	36.5±1.1	577.7	1.4±0.2
P46 <sub>2</sub>	21.5±0.6		3.5±2.4
P46 <sub>3</sub>	30.5±0.7		2.8±1.0
CIEMAT	64.2±1.0	–	10.7±3.8

Tabla 6.3: Rendimiento experimental  $L_{exp}$  y parámetro  $F_{1/2}$  obtenidos para cada muestra centelleadora. El error mostrado es el correspondiente al ajuste de los datos.

## 6.2.2 Discusión de los resultados

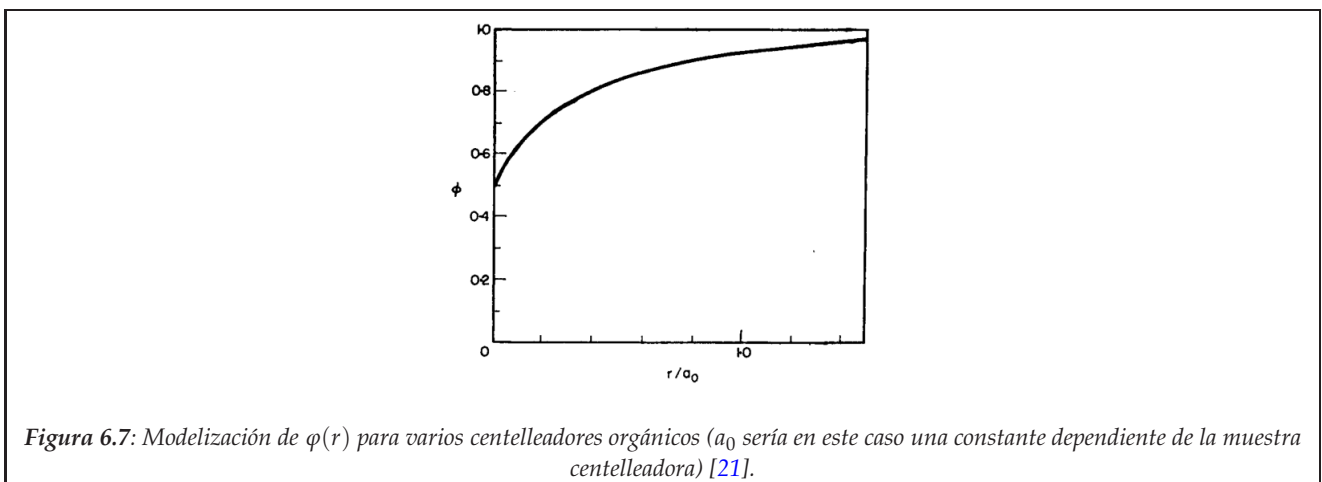
Es directo comprobar que nuestros resultados experimentales difieren bastante de los teóricos hallados con el modelo de Birks. Esto puede deberse a diversos factores.

**A) El modelo de Birks no es válido para energías del orden de decenas de keV:** Nuestras medidas confirman que  $L_{teo} > L_{exp}$ . Esto ya se observó en diversos experimentos realizados con diferentes centelleadores orgánicos bombardeados con partículas alfa cuyos rangos eran del orden del  $\mu m$  [36, 37, 38, 39, 40]. Birks asumió que esto se debe a que cuando el rango de los iones en el centelleador tiene un valor tan bajo, existen efectos de superficie que hacen que la eficiencia de centelleo disminuya. Tras los resultados de estos experimentos, se propuso un modelo en la forma [41, 42]:

$$L_{exp} = \varphi(r)L_{teo} = \varphi(r) \frac{S \frac{dE}{dr}}{1 + k \frac{dE}{dr}} \quad (6.3)$$

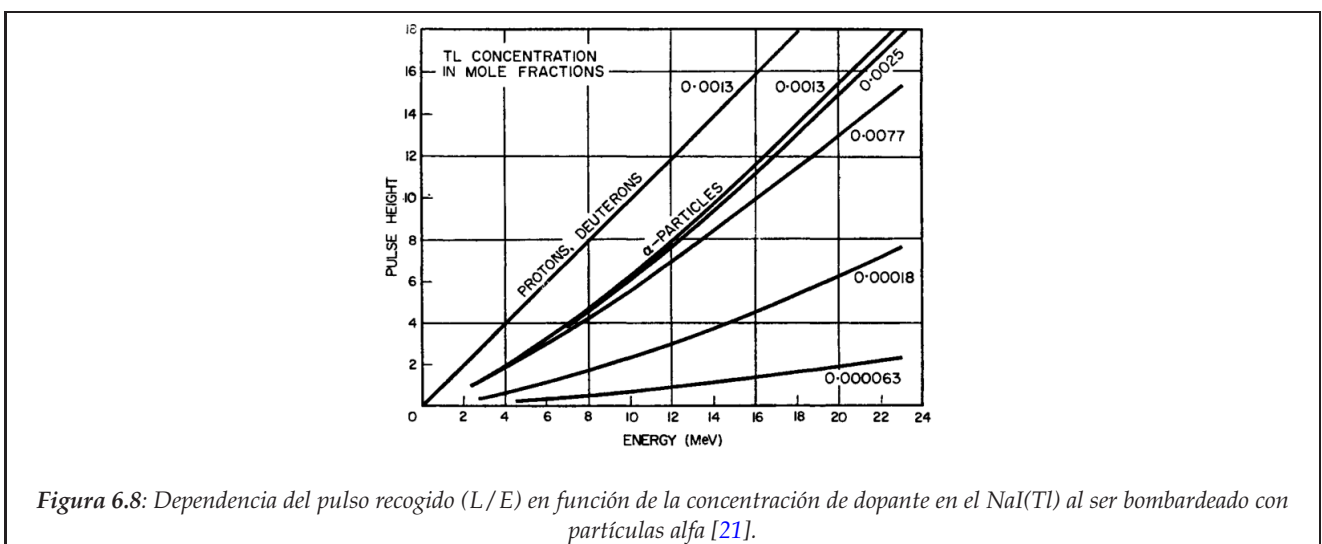
donde  $\varphi(r)$  es una función dependiente de la probabilidad de que un excitón (electrón-hueco) generado por ioluminiscencia a una distancia  $r$  de la superficie del centelleador escape de la muestra o se disipe sin producir fotones de centelleo. Dado que en los experimentos se encontró que  $L_{exp}/L_{teo} \rightarrow 1/2$  para valores muy bajos del rango de iones,  $\varphi(r)$  se modeló de forma que  $\varphi(r \rightarrow 0) = 1/2$  y  $\varphi(r \gg a_0) = 1$ , siendo  $a_0$  el recorrido libre medio de los excitones antes de producirse el fenómeno de centelleo. El modelo se usó para explicar los resultados de otras medidas del rendimiento de centelleadores orgánicos con electrones [43], rayos X y protones (170-570keV) [44] de baja energía, dando buenos resultados.

Es importante notar que todos los resultados hasta ahora comentados se obtuvieron con centelleadores orgánicos, y en nuestro caso hemos usado inorgánicos. Además, en estos casos el límite se encontraba en  $L_{exp}/L_{teo} \simeq 1/2$ , razón por la cual  $\varphi(r)$  se modeló en el rango  $\varphi(r) \in [1/2 - 1]$ . En nuestras medidas tenemos que  $L_{exp}/L_{teo} \sim 1/40$  (TG Green) y  $L_{exp}/L_{teo} \sim 1/20$  (P46). Si fuera posible realizar una corrección al modelo de Birks como en la ecuación 6.3, habría que estudiar por qué  $\varphi(r \rightarrow 0)$  es mucho menor para centelleadores inorgánicos que para orgánicos. No obstante, el modelo de Birks se ha testado en centelleadores inorgánicos para energías del orden del MeV [15, 23, 45, 46], por lo que es posible que pueda realizarse una corrección similar a la planteada aquí. Para ello necesitaríamos realizar más experimentos con estas muestras a diferentes energías de incidencia del orden de decenas de keV.



Además del escape de los excitones o de la disipación de su energía, se propusieron y estudiaron otros efectos de superficie que disminuyen el rendimiento de centelleo. Diversos experimentos mostraron que el deterioro de la superficie externa del centelleador con el tiempo por contacto con la atmósfera o por el simple uso de las mismas (e.g. impurezas en la superficie tras muchos usos) reducen la eficiencia de centelleo [47, 48].

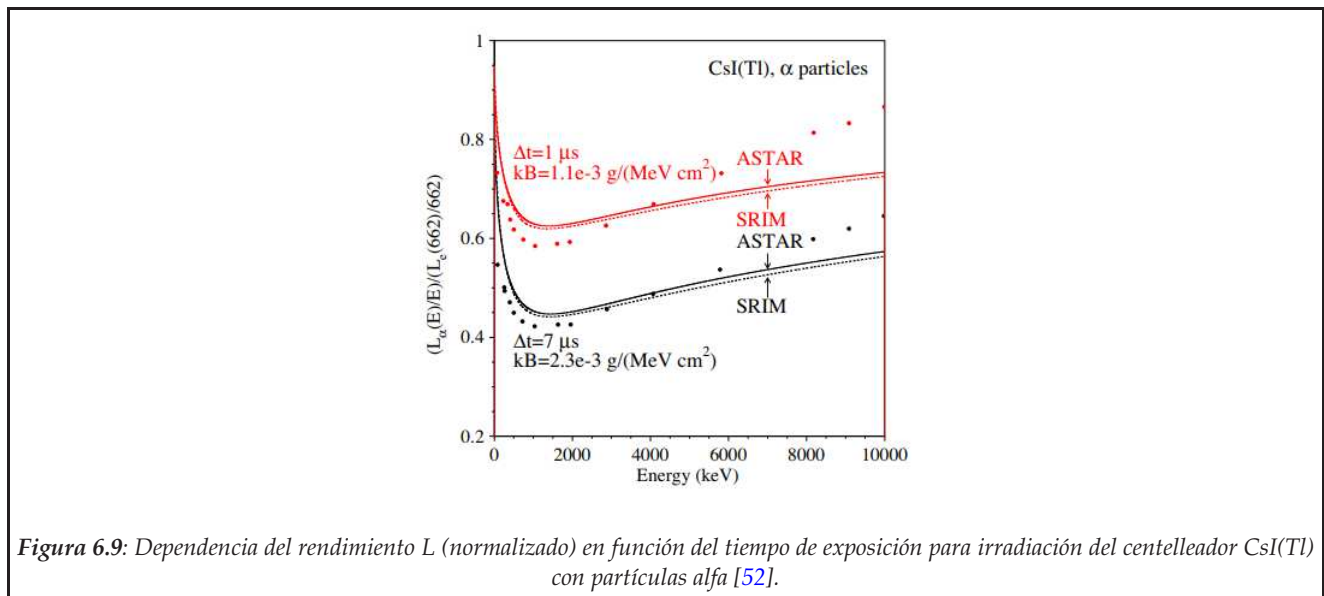
Para iones del orden de 1-100keV la probabilidad de producir sputtering (erosión) en la muestra es muy elevada, lo que hace que tras muchos usos el rendimiento del centelleador en torno a la superficie de la muestra disminuya debido a la baja concentración de dopante en la misma. Este efecto se observó y estudió en los centelleadores NaI(Tl) y CsI(Tl) al ser bombardeados con partículas alfa [49, 50]. Como puede apreciarse en la figura 6.8, una reducción significativa en la concentración local de dopante en la muestra se traduce en una disminución apreciable del rendimiento.



Dado que las muestras de nuestros experimentos eran nuevas y fueron usadas por primera vez en estas medidas, el daño superficial y la pérdida de material activador en la superficie de la muestra por el uso no nos permite explicar el bajo rendimiento medido. Sin embargo, la dependencia de  $L$  con la concentración de dopante nos abre la puerta a otra posible explicación.

**B) El modelo de Birks es válido para energías del orden de 1-100keV, pero la eficiencia de centelleo  $S$  y el parámetro de quenching  $k$  no son constantes características del centelleador:** El rendimiento de un centelleador inorgánico no depende únicamente de la concentración de activador en la muestra [49, 50], sino también de qué tipo de dopante se use [51]. V.I. Tretyak propone en 2010 [52] que este hecho pone de manifiesto que la probabilidad de que ocurran fenómenos de quenching durante el proceso de centelleo no es una constante del material, sino que depende de la concentración ( $C$ ) y tipo de activador ( $x$ ). De esta forma, el parámetro  $k$  del modelo de Birks debe modelarse en la forma  $k = k(C_x)$ . En [51] se encuentra que el rendimiento del centelleador inorgánico  $PbWO_4$  varía con la concentración y tipo de dopante manteniendo constante el tipo de partícula ( $\alpha$ ) y su energía de incidencia (5.25MeV). Basándose en estos resultados, Tretyak calcula el parámetro de quenching  $k$  para este centelleador en función de  $C_x$  [52]. Otra interpretación análoga de la dependencia del rendimiento con la concentración y tipo de dopante es suponer una modificación en la estructura de bandas con la irradiación de partículas cargadas. Esto se discutirá en el apartado 6.3.

Por otro lado, experimentos demostraron que  $L$  varía con el tiempo de recogida  $\Delta t$  de los espectros. Esto fue observado primeramente en experimentos con protones y partículas  $\alpha$  bombardeando al centelleador inorgánico CsI(Tl) [53]. Tretyak calcula el parámetro  $k$  con estos resultados [52], obteniendo una fuerte dependencia del mismo con  $\Delta t$ . En particular, se encontró que el parámetro  $k$  calculado mediante ajuste de los resultados experimentales de irradiación del CsI(Tl) con partículas  $\alpha$  era aproximadamente el doble para  $\Delta t = 7\mu s$  que para  $\Delta t = 1\mu s$  (figura 6.9).



Por último, Tretyak propone que  $k$  sea una función dependiente de la energía de incidencia del haz de iones [52], apoyándose (entre otros) en medidas del rendimiento de los centelleadores NaI(Tl) y LXe (Xenon líquido) para diferentes intervalos de energía del haz manteniendo fijo el tipo de ion [54, 55, 56, 57]. El resultado general es que el valor del parámetro  $k$  que mejor reproduce los datos experimentales aumenta cuando la energía de los iones del haz disminuye (y por ende lo hace el rango de los mismos en el material) [52].

**C) La corriente  $i$  o la tasa de fotones  $\Gamma$  a la cual se ha calculado el rendimiento experimental  $L_{exp}$  no es correcta:** El modelo de Birks se probó exitoso al aplicarse a haces de iones de energías del orden del MeV, por lo que las discordancias entre experimento y teoría pueden deberse a que la corriente de iones no está bien medida para el cálculo de  $L_{exp}$ . Como comentábamos en la sección 4, el montaje experimental no permite monitorear la corriente de iones durante la irradiación de la muestra, sino sólo antes y después de la misma. Así, la incertidumbre en el valor de la corriente durante el proceso de centelleo puede estar relacionada con las discrepancias entre  $L_{exp}$  y  $L_{teo}$ . Sin embargo, el sólo hecho de dicha imprecisión sólo podría explicar las diferencias entre teoría y experimento de forma parcial. Si asumimos que las fluctuaciones de la corriente son las únicas responsables de obtener  $L_{exp}/L_{teo} \sim 10^{-2}$ , tenemos que asumir que el error relativo asociado a  $i$  durante la irradiación es del orden de  $10^4\%$ . Una explicación más razonable se consigue al argumentar que desde el borde del colimador se

emiten electrones secundarios por impacto de algunos iones de  $H^-$  con el mismo. Dichos electrones llegarían a la Faraday Cup, obteniéndose una medida errónea de la corriente de iones (mayor a la real).

Por otro lado, también puede pensarse que la tasa de fotones  $\Gamma$  calculada con la ecuación 5.8 no es absoluta sino parcial. Este argumento se basa en el hecho de que los iones de  $H^-$  tienen una sección eficaz de fotoneutralización  $\sigma_{fn}$  muy alta al interactuar con fotones de prácticamente todo el espectro visible [58]. En particular, para el TG Green y el P46, que emiten fotones con una energía de  $E_\gamma \simeq 2.3eV$ , se tiene que  $\sigma_{fn}(E_\gamma \simeq 2.3eV) \simeq 3 \cdot 10^{-17}cm^2 = 3 \cdot 10^7barn$  [59]. Si tenemos en cuenta que la respuesta de estos centelleadores es del orden del  $\mu s$ , tenemos un flujo de fotones casi instantáneo (en comparación con el tiempo de recogida de los primeros espectros:  $\Delta t = 0.5/1s$ ) en todas direcciones. Aquellos fotones que tras abandonar la superficie del centelleador atraviesen el haz incidente podrán ser absorbidos por los iones de  $H^-$  antes de llegar a la entrada de la fibra. Así, la medida de  $\Gamma(t)$  será menor que la tasa real (absoluta):  $\Gamma_{abs} > \Gamma$ .

Cabe destacar que, aunque algunos de los iones de  $H^-$  sean neutralizados antes de penetrar en el material, esto no modificaría el valor de  $i$  usado en la ecuación 5.10 y medido con la Faraday Cup. Como comentamos, esto se debe a que tanto los iones de  $H^-$  como los posibles átomos neutros de  $H$  fotoneutralizados pierden sus electrones al impactar con la muestra, convirtiéndose en iones de  $H^+$  que se frenan en la misma.

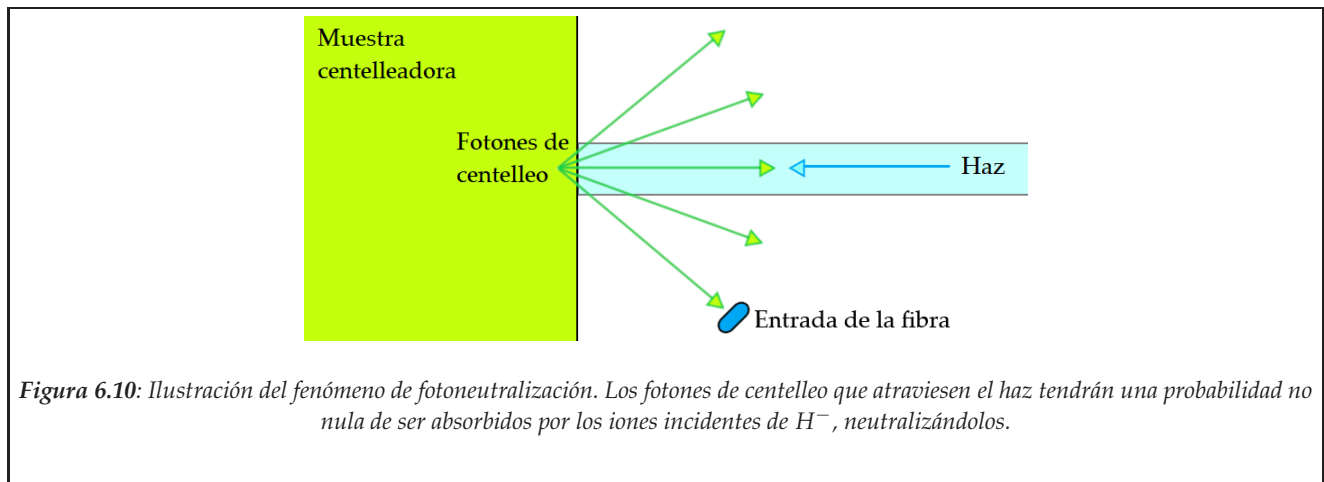


Figura 6.10: Ilustración del fenómeno de fotoneutralización. Los fotones de centelleo que atraviesen el haz tendrán una probabilidad no nula de ser absorbidos por los iones incidentes de  $H^-$ , neutralizándolos.

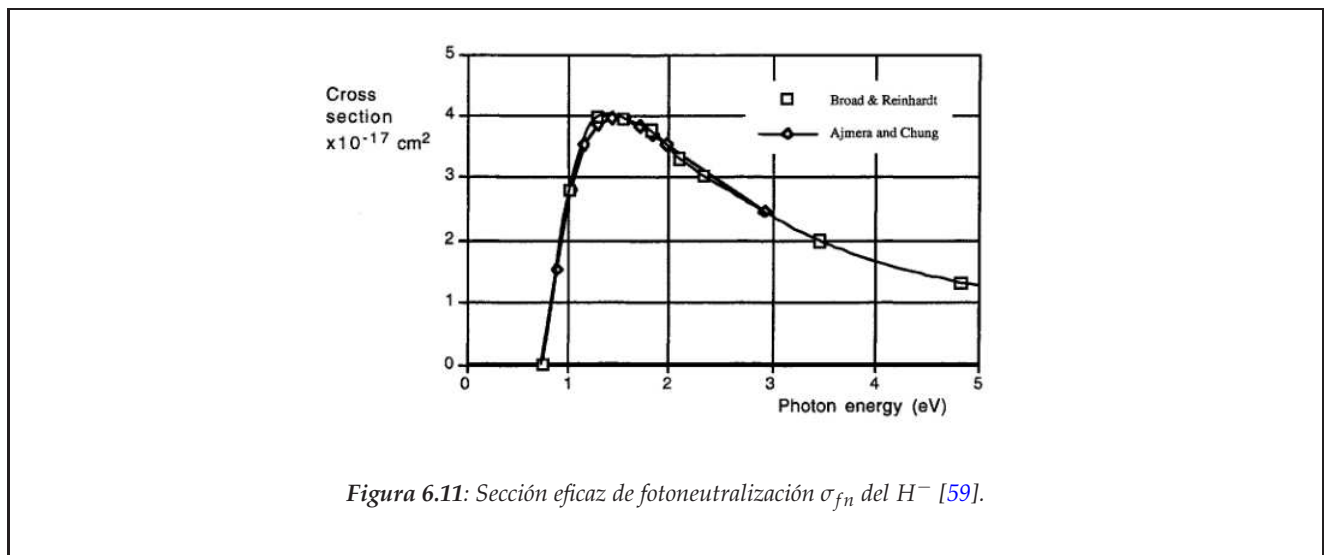


Figura 6.11: Sección eficaz de fotoneutralización  $\sigma_{fn}$  del  $H^-$  [59].

Así, la casi inmediata emisión de fotones de centelleo con la irradiación puede operar como un sistema natural de stripping en el que se desencadena en el haz la reacción



que hace que la tasa de fotones calculada con la ecuación 5.8 sea menor que la real (absoluta), pues estamos obviando la atenuación de la luz por fotoneutralización antes de su llegada al sistema óptico de detección. Con todo ello, los valores de  $L_{exp}$  de la tabla 6.3 serían menores que los reales. La probabilidad de que un fotón de centelleo sea absorbido por un ion de  $H^-$  en un tiempo  $t$  tras el comienzo de la irradiación viene dada por [60]:



$$P(t) = 1 - e^{-\sigma_{fn} \int_{t_0}^{t_0+t} \Phi(t) dt} \quad (6.5)$$

donde  $\Phi(t)$  es el flujo de fotones que atraviesa el ion y  $t_0$  es el tiempo de respuesta del centelleador (tiempo al cual comienza la emisión de fotones). El flujo puede expresarse en función de la tasa absoluta de fotones  $\Gamma_{abs}(t)$  en la forma  $\Phi(t) = \Gamma_{abs}(t)/S_h$ , donde  $S_h = \pi(D/2)^2 = cte$  es el área de la sección transversal del haz. De esta forma la ecuación 6.5 se transforma en

$$P(t) = 1 - e^{-(\sigma_{fn}/S_h) \int_{t_0}^{t_0+t} \Gamma_{abs}(t) dt} \quad (6.6)$$

El valor de la tasa absoluta puede relacionarse con la tasa relativa calculada con la ecuación 5.8 en la forma:

$$\Gamma(t) = [1 - P(t)] \Gamma_{abs}(t) \quad (6.7)$$

lo que nos lleva a que la corrección de la ecuación 5.10 para el cálculo del rendimiento absoluto experimental es:

$$L_{exp}^{real} = \Gamma_{abs}(t)/i = \frac{L_{exp}}{[1 - P(t)]} = L_{exp} e^{(\sigma_{fn}/S_h) \int_{t_0}^{t_0+t} \Gamma_{abs}(t) dt} > L_{exp} \quad (6.8)$$

Es importante notar que los valores de los parámetros  $S$  y  $k$  usados para el cálculo de  $L_{teo}$  se obtuvieron en experimentos con iones de  $H^+$  (entre otros) de energías del orden del MeV [23], mientras que en nuestro caso los iones tenían una energía de 72keV.

Las figuras 6.12 y 6.13 ilustran la gran diferencia existente entre la potencia de frenado y el rango de los iones de H para  $E \sim MeV$  y  $E \simeq 72keV$  al atravesar los materiales analizados. Así, si llevamos la discusión de todos los resultados expuestos en A), B) y C) a nuestras medidas, podemos argumentar lo siguiente.

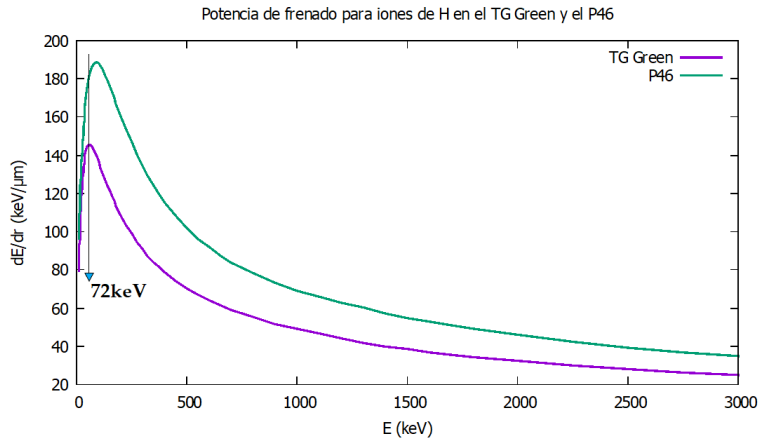


Figura 6.12: Potencia de frenado  $dE/dr$  para iones de hidrógeno en el TG Green y el P46 (fuente: SRIM).

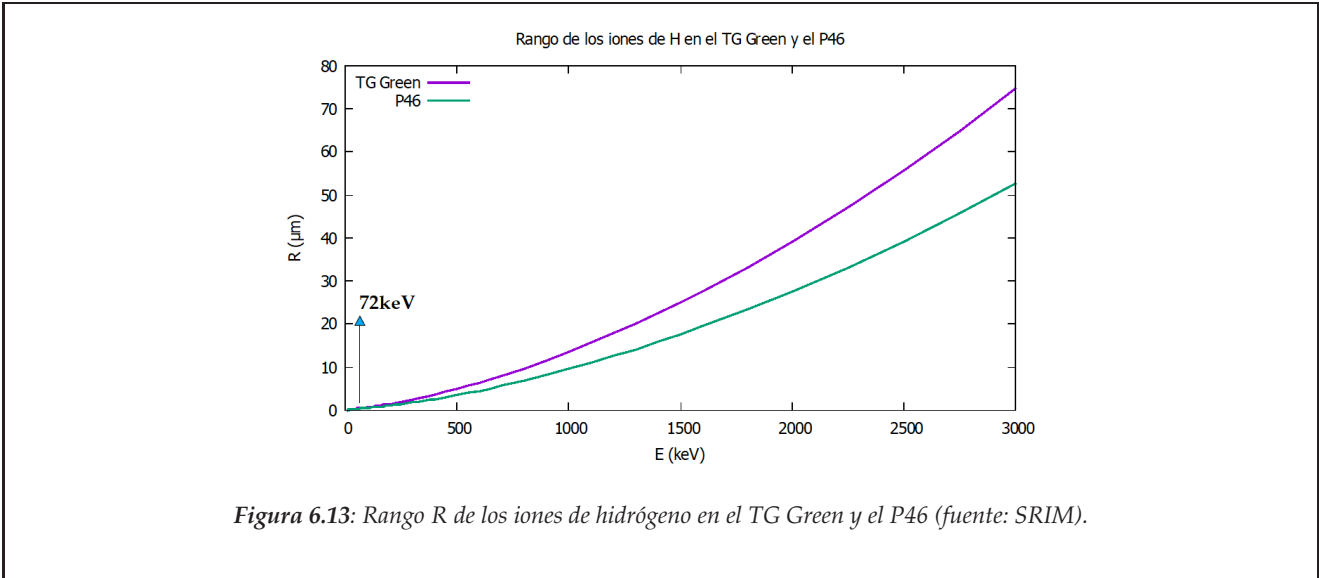


Figura 6.13: Rango  $R$  de los iones de hidrógeno en el TG Green y el P46 (fuente: SRIM).

En primer lugar, es directo deducir de las figuras que iones de hidrógeno a 72keV depositan una gran cantidad de energía en un espacio muy pequeño del material ( $R \sim 0.5\mu m$ ). En contraposición, iones a  $E \sim MeV$  depositan su energía de forma mucho más espaciada a lo largo de su trayectoria por el centelleador. Esto significa que a 72keV, el daño iónico está concentrado en un pequeño volumen de la muestra en torno a la superficie irradiada. El parámetro  $F_{1/2}$  es un indicador de este hecho, pues su cálculo para iones del orden del MeV [15] arrojaba valores que eran de entre 10 y 100 veces mayores que los hallados en nuestros experimentos a 72keV.

Si asumimos que dicho daño se produce incluso en los primeros instantes de comenzar la irradiación (i.e. sputtering del activador, daño molecular, etc), y teniendo en cuenta que la probabilidad de quenching aumenta con el deterioro de la muestra, es posible argumentar que el haber usado los parámetros  $S$  y  $k$  hallados a  $E \sim MeV$  para el cálculo de  $L_{teo}$  ha sido una asunción incorrecta. Otro posible argumento sería el testar un modelo empírico de Birks de acuerdo a la ecuación 6.3 y aceptando la constancia de  $S$  y  $k$  (modelo que reproduciría muy bien los resultados para  $E \sim MeV$ ). En cualquiera de los casos, para ello se necesitarían realizar muchas más medidas variando la energía de los iones del haz en el intervalo 1-100keV.

Por otro lado, el primer espectro para cada una de las medidas se recogió en tiempos del orden de  $\Delta t \sim s$ . Si el daño iónico es prácticamente instantáneo con la irradiación y atendemos a la dependencia decreciente de  $L$  con el aumento de  $\Delta t$  estudiada por Tretyak [52], es válido discutir que el bajo rendimiento observado se debe parcialmente a los altos valores de  $\Delta t$  fijados en los experimentos. La validez de este argumento puede ser testada si, manteniendo fijos el resto de condiciones experimentales, se realizan diversas medidas del rendimiento variando el tiempo de exposición  $\Delta t$ .

Con respecto a la medida de la corriente, es también posible que esta sea menor que la real por la emisión de electrones secundarios desde el borde del colimador. Esto haría que el rendimiento calculado con la ecuación 5.10 fuera menor que el real. Dado que en general los electrones de baja energía generan menos luz de centelleo que los iones pesados [21], no se esperaría que el impacto de los mismos sobre la muestra alterara de forma drástica el rendimiento.

Por último, debemos tener en cuenta que la tasa de fotones hallada para el cálculo de  $L_{exp}$  puede no ser absoluta por haber obviado la probabilidad de absorción de la luz de centelleo por los iones de  $H^-$ . Esto podría explicar las diferencias entre  $L_{exp}$  y  $L_{teo}$ , aunque para ello debe resolverse la ecuación 6.6 y evaluar si la probabilidad de fotoneutralización tiene un valor significativo como para reducir apreciablemente el rendimiento de centelleo. Una estimación de  $P$  nos lleva a concluir que el efecto de fotoneutralización es despreciable y que no puede explicar el bajo rendimiento experimental observado. De la ecuación 6.6 se deduce que, si el haz de fotones de centelleo incide sobre un blanco estático, la probabilidad de fotoneutralización será del 100% tras haber irradiado durante un tiempo infinito. En nuestro caso, el tiempo  $\tau$  en que los iones de  $H^-$  están expuestos al haz es finito. Teniendo en cuenta que las dimensiones de la cámara son del orden de decenas de  $cm$  y que la velocidad de los iones es  $v = \left(\sqrt{2E_i/m_{H^-}^2}\right) c \simeq 1.21 \cdot 10^7 cm/s$ , el tiempo de vuelo  $\tau$  de los iones antes de impactar sobre el centelleador es del orden de

$$\tau \sim \frac{10cm}{v} \sim 1\mu s \quad (6.9)$$

Dado que no se espera que la tasa absoluta de fotones sufra un cambio brusco en un tiempo tan pequeño, la

ecuación 6.6 puede aproximarse como

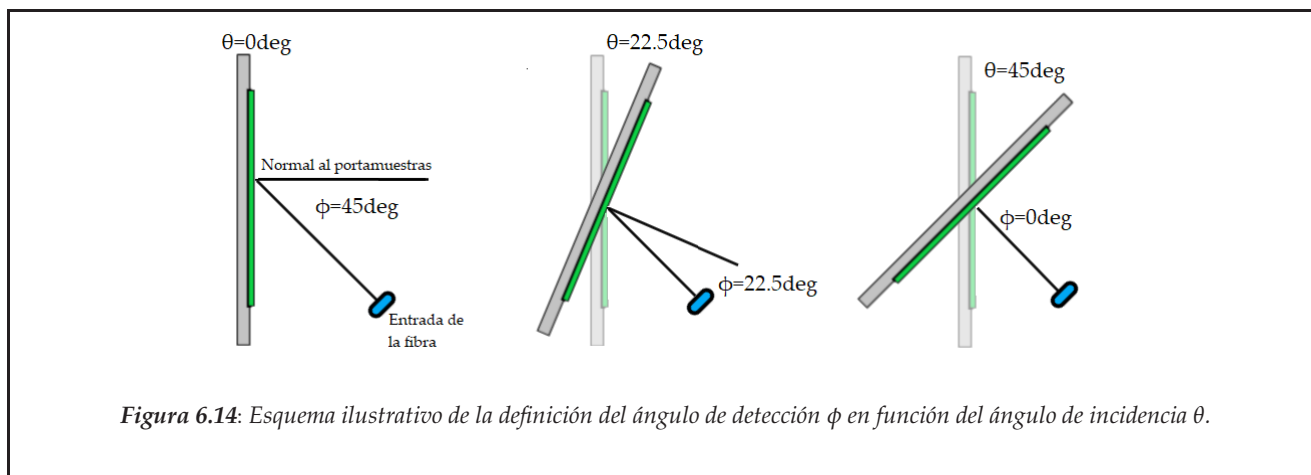
$$P \sim 1 - e^{-(\sigma_{fn}/S_h)\Gamma_{abs}(t_0)\tau} = 1 - e^{-(\sigma_{fn}/S_h)iL_{exp}^{real}(t_0)\tau} \sim 1 - e^{-10^{-11}(ion/\gamma) \cdot L_{exp}^{real}(t_0)} \quad (6.10)$$

De la ecuación anterior se deduce que la probabilidad de que un ion de  $H^-$  en vuelo absorba un fotón será apreciable si el rendimiento del centelleador es enorme, de órdenes de al menos  $10^9 \gamma/ion$ . Si además tenemos en cuenta que la entrada de la fibra óptica se encuentra a 45deg con respecto al haz incidente, tendremos que los fotones detectados atraviesan el haz sólo de forma parcial (figura 6.10), por lo que la probabilidad de ser absorbidos será aún menor que la predicha por la ecuación 6.10 (o equivalentemente, el valor de  $L_{exp}^{real}(t_0)$  para tener un valor de  $P$  apreciable será aún mayor). Esta incongruencia nos hace descartar la fotoneutralización como posible candidato a explicar por qué el rendimiento observado es menor al predicho por el modelo de Birks.

### 6.3 Rendimiento del TG Green en función de la dirección de detección

En esta sección se presentan los resultados experimentales del rendimiento absoluto para el set de medidas  $TG_3$ ,  $TG_4$ ,  $TG_5$  y  $TG_6$  de la tabla 6.1. La intensidad de corriente se fijó a  $3nA$ , así como la dirección y sentido del haz y la posición de la entrada de la fibra. La variación en el ángulo de incidencia  $\theta$  se consiguió girando la muestra centelleadora mediante unos brazos rotatorios, como se describió en la sección 4.

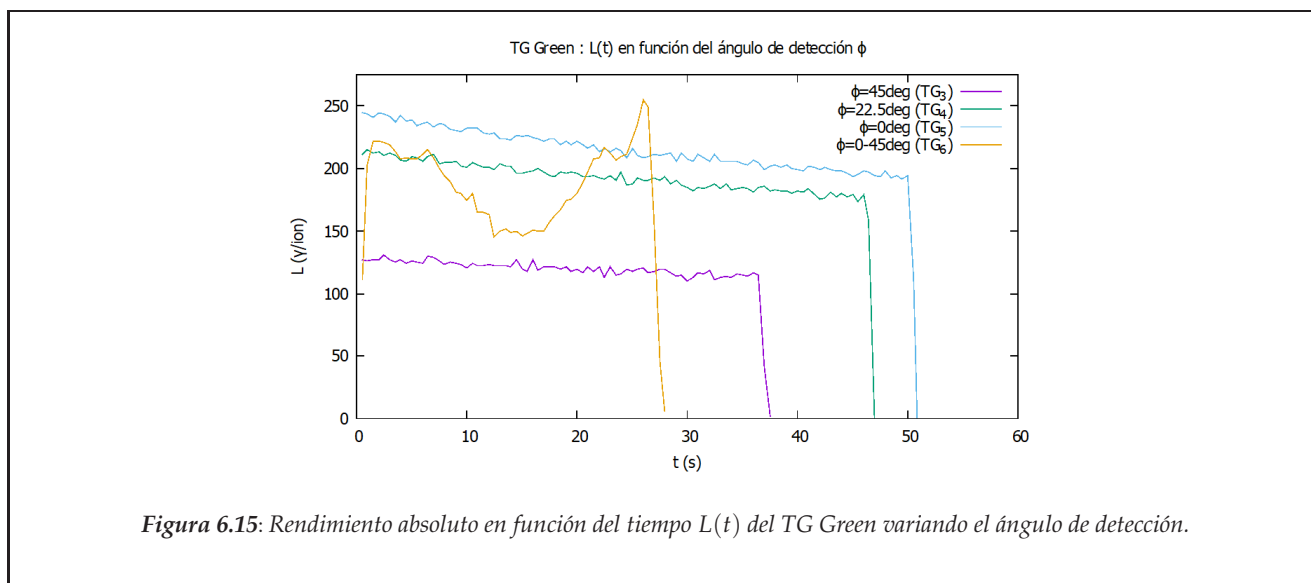
Los resultados se mostrarán tanto en función del ángulo de incidencia  $\theta$  como en función del ángulo de detección  $\phi$ , que se define como aquel entre la normal a la entrada de la fibra y la normal al portamuestras:  $\phi(\theta) = |45deg - \theta|$  (figura 6.14). Es directo comprobar que el movimiento del portamuestras en la dirección  $\phi$  es equivalente a girar la entrada de la fibra y por lo tanto a desplazar la dirección de detección de los fotones de centelleo. La introducción de esta variable se justificará al discutir la interpretación de los resultados.



El rendimiento absoluto experimental  $L_{exp}$  se ha calculado ajustando los datos experimentales con el modelo de Black-Birks (ecuación 5.14), al igual que en el apartado anterior.

#### 6.3.1 Resultados

En la figura 6.15 se ilustra el rendimiento absoluto en función del tiempo  $L(t)$  y en la tabla 6.4 se recogen los valores de  $L_{exp}$  para cada medida. Contra todo pronóstico, lo que se observa es que el valor de  $L_{exp}$  disminuye al aumentar el ángulo de detección  $\phi$  desde 0 hasta 45deg.



Medida	$\theta(deg)$	$\phi(deg)$	$L_{exp}(\gamma/ion)$	$F_{1/2}(10^{14}iones/cm^2)$
$TG_3$	0	45	$128.2 \pm 0.6$	$6.6 \pm 0.4$
$TG_4$	22.5	22.5	$212.7 \pm 0.5$	$5.8 \pm 0.1$
$TG_5$	45	0	$243.5 \pm 0.5$	$6.3 \pm 0.1$
$TG_5$	0-90	0-45	–	–

**Tabla 6.4:** Rendimiento absoluto experimental del TG Green para diferentes ángulos de incidencia/detección

### 6.3.2 Interpretación de los resultados

Teniendo en cuenta la asunción original de isotropía de emisión de luz de centelleo, la variación del rendimiento absoluto con el ángulo de incidencia/detección es un resultado inesperado en nuestras medidas. De la definición de  $\phi$  se tiene implícitamente que  $L_{exp}(\phi) = L_{exp}(-\phi)$  y de la figura 6.15 y la tabla 6.4 se deduce que  $L_{exp}$  es máximo cuando  $\phi = 0deg$  (esto es, cuando los planos que contienen al portamuestras y a la entrada de la fibra son paralelos) y mínimo cuando  $\phi = 45deg$  (valor máximo de  $\phi$  alcanzable al girar el portamuestras). A su vez,  $L_{exp}$  aumenta con el ángulo de incidencia  $\theta$  desde  $\theta = 0$  hasta  $\theta = 45deg$ . En una primera aproximación, este comportamiento puede modelarse de acuerdo a la ley del coseno de Lambert [61], que establece que la superficie de un material emite en función de la dirección de detección en la forma  $I(\phi) = I(0) \cos\phi$ . Teniendo en cuenta la relación de proporcionalidad entre  $I$  y  $L$  (ecuación 5.10) podemos escribir

$$L_{exp}(\phi) = L_{exp}(0) \cos\phi \quad (6.11)$$

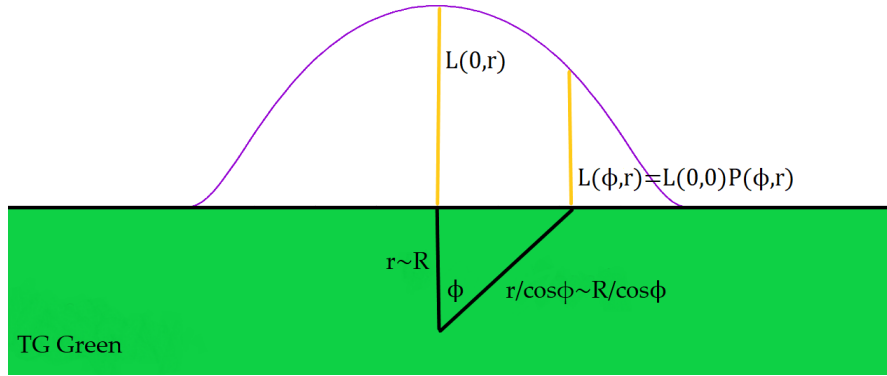
Un rápido cálculo nos lleva a concluir que la distribución lambertiana 6.11 no reproduce correctamente los valores experimentales. La misma divergencia de la ley del coseno de Lambert obtenida en nuestros resultados se observó en otros experimentos con diversos centelleadores inorgánicos irradiados con rayos X [62]. La interpretación de este hecho se basa en que la atenuación de los fotones en su paso por la muestra no se tiene en cuenta al aplicar la ley del coseno de Lambert, por lo que esta debe ser aplicable únicamente cuando el espesor del material tiende a cero. En [62] se modelan los resultados en base no sólo a la atenuación del haz de fotones de centelleo, sino también a la atenuación del propio haz de rayos X que bombardea la muestra. Esto último supone el grueso de la dependencia de la intensidad de emisión con la dirección de detección  $\phi$  y la profundidad en la muestra  $r$  en la forma

$$L_{exp}(\phi, r) = L_{exp}(0, 0)P(\phi, r) \quad (6.12)$$

donde  $P(\phi, r)$  es la probabilidad de absorción/dispersión de fotones por el material. Como en nuestro caso estamos usando iones, la dependencia de  $L_{exp}$  con  $\phi$  y  $r$  siguiendo el modelo aplicado en [62] sólo puede deberse a la atenuación de fotones de centelleo. Dichos fotones se generan dentro del material en un entorno de  $r \approx R$  medido desde la superficie radiada, siendo  $R \approx 0.5\mu m$  el rango de los iones de hidrógeno de 72keV en el TG Green (fuente: SRIM). Es directo comprobar que la distancia recorrida por los fotones aumenta con la dirección de detección  $\phi$ , por lo que la probabilidad de ser absorbidos en su camino hacia el sistema óptico es mayor (figura 6.16). Con todo lo expuesto y de acuerdo a la ley exponencial de atenuación y la ley de Lambert del coseno [62, 63] tendríamos que

$$P(\phi, r) \sim \cos\phi e^{-\mu r / \cos\phi} \quad (6.13)$$

donde  $\mu$  es el coeficiente de atenuación lineal, que es directamente proporcional a la sección eficaz de absorción/dispersión de los fotones de centelleo en su paso por la muestra.



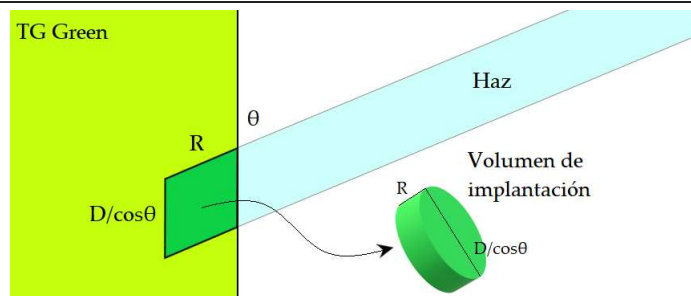
**Figura 6.16:** Esquema de la dependencia angular  $L_{exp}(\phi, r)$  (ecuaciones 6.12 y 6.13). Cuando los fotones se detectan tras recorrer una distancia  $r \sim R$  dentro del material, el rendimiento observado ( $L(0, R)$ ) es mayor que cuando se detectan tras recorrer una distancia  $R/\cos\phi$  ( $L(\phi, R)$ ).

Como comentábamos en la sección 3, una de las razones de la elección de centelleadores inorgánicos para el diseño de detectores tipo FILD radica en que estos suelen ser transparentes a su propia emisión. De esta forma, se esperaría que  $e^{-\mu r/\cos\phi} \approx 1$  para  $r \in [0, R]$  (o equivalentemente que  $\mu \approx 0$  en dicho intervalo), lo que nos llevaría de vuelta a la distribución lambertiana. Sin embargo, un intento de ajuste de los datos experimentales de  $L_{exp}$  con las ecuaciones 6.12 y 6.13 nos lleva a determinar un valor apreciable del coeficiente de atenuación  $\mu$  (del orden de  $\sim 1/R$ ), y por ende a concluir que el centelleador está lejos de ser transparente a su propia emisión, lo que está en total desacuerdo con el diseño del TG Green.

Una posible explicación para este hecho sería argumentar que el casi inmediato daño producido en el material con la irradiación conlleva a la transformación de la zona irradiada en un centro de alta absorción de los fotones de centelleo. De esta forma, el coeficiente de atenuación tendría un valor elevado sólo localmente dentro del TG Green en torno a la zona iluminada. Este efecto ha sido estudiado en los centelleadores inorgánicos CsI(Tl), PbWO<sub>4</sub> y CeF<sub>3</sub> [64, 65, 66, 67] y en centelleadores orgánicos plásticos [68] irradiados con rayos X y rayos  $\gamma$ .

Si tenemos en cuenta que el rango de los iones de  $H^-$  en el TG Green es mucho menor que el diámetro del haz  $R \approx 0.5\mu m \ll D = 1000\mu m$ , podemos despreciar el straggling lateral y longitudinal y aproximar la trayectoria de los iones como rectilínea. Esto nos permite definir un volumen de la muestra en el cual se frenan prácticamente el 100 % de los iones y que por tanto recibe casi todo el daño iónico. Este volumen de implantación se esquematiza en la figura 6.17 y sería un disco de radio  $D/2\cos\theta$  y espesor  $R$ .

$$V_i \simeq \pi(D/2)^2 R / \cos\theta = \frac{3.93 \cdot 10^{-7}}{\cos\theta} \text{cm}^3 \quad (6.14)$$



**Figura 6.17:** Esquema de la definición del volumen de implantación. La escala del espesor del disco se ha aumentado para mayor visibilidad.

Como comentábamos anteriormente, es válido argumentar que los fotones de centelleo se generan en su mayoría en un entorno de la zona irradiada y a una profundidad  $r \sim R$ . Así, podemos asumir que una gran fracción de estos fotones pasará a través del volumen de implantación antes de dirigirse hacia el sistema de detección.

En [64, 65, 66, 67, 68] se observó que, al aumentar la dosis de radiación absorbida por el material, aparecía un coeficiente de atenuación apreciable para ciertos intervalos del espectro de emisión de las muestras. En el

caso de los centelleadores inorgánicos, este hecho es consecuencia de la creación de nuevos estados electrónicos permitidos por encima de la banda de valencia. Así, un elevado daño por radiación se traduce en una alteración de la estructura de bandas de la red cristalina. Es directo comprobar que la dosis absorbida por el TG Green disminuye con  $\theta$ :  $H = \frac{E_{depositada}}{M_{zona\ irradiada}} = \frac{E_{depositada}}{\rho V_i} \propto \cos\theta$ , siendo máxima para incidencia normal. Así, es posible que el coeficiente de atenuación inducido por irradiación en  $V_i$  sea parcialmente responsable tanto del bajo valor de  $L_{exp}$  observado como de su dependencia con  $\theta$ .

Por otro lado, es importante notar que en nuestro caso la irradiación se ha llevado a cabo con partículas cargadas. Cuando irradiamos con fotones, estos *desaparecen* tras haber cedido su energía al cristal. Sin embargo, cuando irradiamos con iones de bajo rango, estos no sólo ceden su energía a la red sino que también se frenan e implantan en la muestra, alterando su composición. Esto es, irradiar con iones de  $H^-$  a  $E_i = 72keV$  supone tanto dañar el TG Green por absorción de dosis como doparlo con hidrógeno. Esta última contribución no existe cuando los iones tienen un rango superior al espesor de la muestra.

Como se discutió en el apartado 6.2, la concentración y tipo de dopante altera el rendimiento de centelleo [49, 50, 51, 52, 53]. Una estimación de la concentración relativa de partículas de hidrógeno en el TG Green puede obtenerse si de nuevo asumimos que el dopaje ocurre en un entorno del volumen de implantación. Dado que la densidad de átomos de la muestra es  $n_{TG} \simeq 4 \cdot 10^{22}/cm^3$  (fuente: SRIM) tenemos que:

$$n_{H,R} = \frac{n_H}{n_{TG}} \simeq \frac{i/|e|}{n_{TG}V_i} \simeq 1.2 \cdot 10^{-4} \cos\theta \left( \frac{\%}{s} \right) \quad (6.15)$$

De la ecuación anterior se deduce que tras la recogida del primer espectro en un tiempo  $\Delta t = 0.5s$ , tenemos una concentración relativa del orden de  $n_{H,R} \sim 10^{-4}\%$ . Si bien este valor es muy pequeño, puede no ser despreciable. En los centelleadores NaI(Tl) [49] y CsI(Tl) [53] se observó un rendimiento de centelleo no nulo teniendo una concentración relativa de activador de órdenes de  $10^{-3}\%$  y  $10^{-4}\%$ , respectivamente. Esto significa que incluso una adición muy pequeña de dopante puede modificar la estructura de bandas de una red cristalina. Sería interesante estudiar la modificación de dicha estructura para el caso del TG Green dopado con pequeñas concentraciones de hidrógeno. Así se podría validar o descartar una posible disminución del rendimiento de centelleo por acción de dicho dopaje.

---

Si bien los argumentos presentados y discutidos podrían explicar la dependencia de  $L_{exp}$  con el ángulo de incidencia/detección, es importante destacar algunos aspectos cuantitativos sobre los mismos para poder discernir hasta que punto cada uno de ellos puede verificar dicha dependencia.

En primer lugar, los valores encontrados para el coeficiente de atenuación inducido en [64, 65, 66, 67] eran del orden de  $1 - 10/cm$  para dosis de  $\sim 10^3 - 10^4 rad$  o más. Este resultado fue general independientemente del centelleador inorgánico analizado. Usando la definición de volumen de implantación (ecuación 6.14), podemos estimar la dosis absorbida en el tiempo de irradiación como

$$H = \frac{E_{depositada}}{M_{zona\ irradiada}} \simeq \frac{E_i i/|e| \Delta t}{\rho V_i} \simeq 750 \cos(45 - \phi) \text{ (rad)}$$

donde  $E_i = 72keV$ . Es directo notar que  $H \sim 10^2 rad$  independientemente del valor de  $\phi$  en el intervalo  $\phi \in [0, 45] deg$ . Como mencionamos, un ajuste de  $L_{exp}$  con las ecuaciones 6.12 y 6.13 nos lleva a estimar un valor del coeficiente de atenuación del orden de  $\mu \sim 1/R \sim 10^6/cm$ . Sería inesperado encontrar dicho valor en el TG Green tras absorber una dosis de  $\sim 10^2 rad$  sin asumir que este es extremadamente sensible a la irradiación en comparación con otros centelleadores inorgánicos, especialmente si tenemos en cuenta que  $L(t)$  (figura 6.15) no varía drásticamente. Más inesperado sería que una variación del ángulo de detección de 45deg (que supone una variación de  $H$  de unos 200rad) causara que el rendimiento se duplicara (tabla 6.4). Con todo ello, podemos razonar que es poco probable que el coeficiente de atenuación inducido por irradiación sea el principal responsable tanto de las discrepancias entre  $L_{teo}$  y  $L_{exp}$  como de la dependencia de este último con  $\phi$ .

El mismo argumento puede usarse si analizamos la variación de la concentración relativa de hidrógeno en la muestra. De la ecuación 6.15 se deduce que al girar  $\phi$  entre 0 y 45deg  $n_{H,R}$  cambia apenas un  $\sim 10^{-5}\%$  para la recogida del primer espectro. Si bien la implantación de hidrógeno en la muestra podría explicar parcialmente la reducción del rendimiento absoluto por modificación en la estructura de bandas, para explicar la dependencia de  $L_{exp}$  con el ángulo de detección debe de nuevo asumirse una enorme sensibilidad del TG Green a la adición de pequeñas concentraciones de hidrógeno.

## 7 Conclusiones

Se encontró que el rendimiento absoluto para el TG Green y el P46 al ser bombardeados con iones de  $H^-$  a  $E_i = 72keV$  en incidencia normal era mucho menor que el predicho por el modelo de Birks (ecuación 3.2). La explicación más natural a este hecho tiene su origen en asumir que en la metodología de análisis de los resultados no se han tenido en cuenta todos los fenómenos físicos involucrados en el proceso de centelleo. Esto se debe a que la ecuación 3.5 usada en el cálculo del rendimiento teórico está ajustada a experimentos de bombardeo de las muestras con iones de  $H^+$  a energías del orden del MeV [23]. Esto es, hemos intentado reproducir los mismos resultados experimentales para iones de la misma especie pero diferente estado de carga y diferente energía, lo que ha podido dar lugar a discrepancias.

Cuando se midió el rendimiento del TG Green variando el ángulo de incidencia/detección, se observó además un comportamiento de emisión no isótropo. Esto fue bastante inesperado, pues de la transparencia de las muestras a su propia emisión se deduce que los fotones de centelleo pueden ser emitidos con igual probabilidad en cualquier dirección. Este hecho se acentúa aún más teniendo en cuenta que dichos fotones se generan en un entorno de la superficie de la muestra debido al bajo rango de los iones a 72keV. Aunque se intentó asociar la anisotropía de emisión a coeficientes de atenuación inducidos por degradación del material o a la alteración de la estructura de bandas por implantación de hidrógeno, un análisis cuantitativo de estos argumentos nos lleva a concluir incongruentemente que el TG Green es extremadamente sensible a la irradiación.

Así, podemos concluir que este novedoso experimento nos ha arrojado más interrogantes que respuestas. Para encontrar tanto unos resultados concluyentes como un modelo para el rendimiento de centelleo aplicable a iones de energías del orden de los usados en el método NBI, se deben realizar más experimentos y/o optimizar el expuesto en este trabajo.

En primer lugar, debe hacerse hincapié en el hecho de que el rango de los iones en las muestras disminuye considerablemente al disminuir la energía de incidencia desde  $\sim 1MeV$  hasta  $72keV$ , por lo que los fenómenos de quenching (e.g. fenómenos que reducen el rendimiento ioluminiscente) asociados al daño iónico son más pronunciados en este último caso. Sería interesante repetir las medidas con iones de H, He y D para diferentes energías en el rango de las decenas de keV. Así, si se encontrasen valores similares de  $L_{exp}/L_{teo}$  en todos los casos, tendríamos indicios de que los fenómenos de quenching (y por ende el valor de el parámetro  $k$  del modelo de Birks) tienen mayor relevancia para iones de bajo rango en la materia. Intentar replicar el comportamiento anisótropo de  $L_{exp}$  observado en el TG Green sería otro buen punto de comienzo. Así se podría confirmar si dicho comportamiento es general a los centelleadores inorgánicos irradiados con iones de energías del orden de decenas de keV. A su vez, medidas del rendimiento para iones de energías de  $\sim 0.5-3MeV$  variando el ángulo de incidencia/detección podría también arrojar algo de luz sobre la inesperada anisotropía de emisión y su posible relación con el daño iónico superficial.

Por otro lado, el bajo rendimiento observado puede deberse a que la corriente medida con la Faraday Cup sea mayor que la que realmente incide sobre las muestras. Esto se explica si asumimos que desde el borde del colimador se emiten electrones secundarios en colisiones de los iones de  $H^-$  con el mismo. La energía de estos electrones es del orden del 1-10eV, por lo que la implementación de un imán permanente tras el colimador podría ayudarnos a retirarlos del haz. El valor del campo del imán debería tener un valor suficiente como para atraer a todos estos electrones secundarios pero sin alterar apreciablemente a los iones del haz.

Por último, se barajó la posibilidad de que el haz de fotones de centelleo fuera parcialmente absorbido por los propios iones de  $H^-$  antes de su llegada al sistema óptico de detección. Este argumento fue descartado al analizar cuantitativamente la probabilidad de ocurrencia de la reacción  $H^- + \gamma \rightarrow H + e^-$ , encontrándose que era demasiado pequeña como para alterar apreciablemente los resultados. No obstante, existe un experimento simple que puede ayudarnos a refutar definitivamente (o no) la efectividad de este fenómeno fotoneutralizador en las medidas. Este se realizaría mientras medimos con la Faraday Cup. Una vez alcanzado un valor estable de la corriente, podríamos iluminar el haz desde el exterior a través de la ventana de cuarzo (figura 4.6), preferiblemente con una fuente cuya intensidad de emisión fuera ajustable. Si no se observaran cambios significativos en la lectura de la corriente al iluminar desde el exterior, tendríamos que las reacciones de fotoneutralización no juegan un papel importante en el experimento.



## Referencias

- [1] British Petroleum Company. (2018). *BP statistical review of world energy*. Londres: BP Co.
- [2] IEA (2018). *World Energy Investment 2018*. París: IEA.
- [3] E. Watts et al. (2019). Climate science can't be trumped: a look at how to translate empirical data into political action. *Vestnik of Saint Petersburg University: Philosophy and Conflict Studies* 35(1), 145-158.
- [4] V. Masson-Delmotte et al. (2018). *Global warming of 1.5°C. An IPCC Special Report on the impacts of global warming of 1.5°C above pre-industrial levels and related global greenhouse gas emission pathways, in the context of strengthening the global response to the threat of climate change, sustainable development, and efforts to eradicate poverty*. Génova: IPCC.
- [5] R. Douglas-Bohi & Michael A. Toman. *The Economics of Energy Security*. Boston: Kluwer Academic Publishers.
- [6] IEA (2018). *World Energy Outlook 2018*. París: IEA.
- [7] D. Clery (2013). *The quest for fusion energy: a piece of the sun*. London: Duckworth Overlook.
- [8] F. Mandl et al. (1994). *The physics of stars*. Chichester: John Wiley & Sons.
- [9] O. N. Jarvis. *Nuclear fusion*. Recuperado de la página web del National Physical Laboratory (UK): <http://www.kayelaby.npl.co.uk/atomic.and.nuclear.physics/4.7/4.7.4.html>.
- [10] D. Cano Ott. *Nuclear Fusion: Basic principles, current progress and ITER plans*. Ciemat. Recuperado de <https://cernbox.cern.ch/index.php/s/F7dW6qOS0Pj3MJje>.
- [11] *Advantages of Fusion*. Recuperado de la página web del proyecto ITER: <https://www.iter.org/sci/Fusion>.
- [12] J. Freidberg (2007). *Plasma physics and fusion energy*. Massachusetts: Cambridge University Press.
- [13] V. D. Shafranov et al. (2001). On the history of the research into controlled thermonuclear fusion. *Physics Uspekhi* 44 (8) 835-865.
- [14] J. Wesson et al. (2011). *Tokamaks*. New York: Oxford University Press.
- [15] M. Rodríguez Ramos (2017). *Calibración absoluta y aplicación de los detectores de pérdidas de iones rápidos basados en materiales centelleadores para dispositivos de fusión nuclear*. (Tesis Doctoral no publicada). Sevilla: Departamento de física atómica, molecular y nuclear, Universidad de Sevilla.
- [16] *Magnetic Field of Toroid*. Recuperado de <http://hyperphysics.phy-astr.gsu.edu/hbase/magnetic/toroid.html>.
- [17] D. Twarog et al. (2011). *Test of the European Transport Solver in the frame of Integrated Tokamak Modelling*. Report number 2051/AP, The Henryk Niewodniczański Institute of Nuclear Physics.
- [18] P. Agostinetti et al. (2012). Recent improvements to the ITER neutral beam system design. *Fusion Engineering and Design* 87, 1805-1815.
- [19] M. Rodríguez Ramos et al. (2017). First absolute measurements of fast-ion losses in the ASDEX Upgrade tokamak. *Plasma Physics and Controlled Fusion* 59(10).
- [20] M. García Muñoz et al. (2011). Characterization of scintillator screens for suprathreshold ion detection in fusion devices. *Journal of Instrumentation* 6.
- [21] J.B. Birks (1967). *The Theory and Practice of Scintillation Counting*. Oxford: Pergamon Press.
- [22] G.F. Knoll (2000). *Radiation Detection and Measurement (3rd edition)*. Chichester: John Wiley & Sons.
- [23] M.C. Jimenez Ramos (2014) et al. Characterization of scintillator materials for fast-ion loss detectors in nuclear fusion reactors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 332, 216-219.
- [24] M. García Muñoz et al. (2009). Scintillator based detector for fast-ion losses induced by magnetohydrodynamic instabilities in the ASDEX upgrade tokamak. *Review of Scientific Instruments* 80, 053503.
- [25] S. Baccaro (1995). Scintillation properties of YAP : Ce. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 361, 209-215.
- [26] M. Martínez et al. (2016). The response of a fast scintillator screen (YAP:Ce) to low energy ions (0-40 keV) and its use to detect fast-ion-loss in stellarator TJ-II. *Review of Scientific Instruments* 87, 11D809
- [27] *Source of Negative Ions by Cesium Sputtering (SNICS)*. Recuperado de la página web de la IUAC (Interuniversity Accelerator Centre, Nueva Delhi): [www.iuac.res.in/atmol/~safvan/mridulathesis/node14.html](http://www.iuac.res.in/atmol/~safvan/mridulathesis/node14.html).
- [28] R. García-Molina et al. (2014). A study of the energy deposition profile of proton beams in materials of hadron therapeutic interest. *Applied Radiation and Isotopes* 83 B, 109-114.
- [29] L.H. Toburen et al. (1968). Measurement of High-Energy Charge-Transfer Cross Sections for Incident Protons and Atomic Hydrogen in Various Gases. *Physical Review* 171, 114-122.
- [30] R. García-Molina et al. (2009). Cálculo de la pérdida de energía de haces de protones en agua líquida a partir de modelos ópticos realistas. *Comunicación presentada en el XVII Congreso de la Sociedad Española de Física Médica y XII de la Sociedad Española de Protección Radiológica, Alicante, 2-5 junio 2009*.
- [31] M. Miyakawa et al. (1999). Formation of Hydrogen Tungsten Bronze by proton implantation. *Materials Research Bulletin*, 34(1),115-121.

- [32] *What is a CCD Detector?* Recuperado de: [horiba.com/en-en/technology/measurement-and-control-techniques/optical-spectroscopy/detectors/what](http://horiba.com/en-en/technology/measurement-and-control-techniques/optical-spectroscopy/detectors/what)
- [33] N. Markovic et al. (2015). Ion beam induced luminescence (IBIL) system for imaging of radiation induced changes in materials. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 343, 167-172.
- [34] W.A. Hollerman et al. (1991). Proton damage measurements of rare earth oxide scintillators. *IEEE Transactions on Nuclear Science* 38(2), 184-187.
- [35] F. James (2013). *An introduction to numerical methods and analysis*. New Jersey: John Wiley & Sons.
- [36] J.B. Birks (1950). Scintillation efficiency of anthracene crystals. *Proceedings of the Physical Society A* 63, 1294.
- [37] J.B. Birks & J.W. King (1952). Scintillation *Review* 86, 568.
- [38] G.T. Reynolds (1952). Solid and liquid scintillation counters. *Nucleonics* 10.
- [39] F. Boreli & B. Grimeland (1955). Energy measurements with a plastic scintillator. *Il Nuovo Cimento* 2, 336-339.
- [40] J. R. Prescott & A.S. Rupaal (1961). The specific fluorescence of plastic scintillator NE102. *Canadian Journal of Physics* 39, 221-227.
- [41] J.B. Birks (1952). Theory of the response of organic scintillation crystals to short-range particles. *Physical Review* 86, 569
- [42] J.B. Birks (1953). *Scintillation Counters*. Londres: Pergamon Press.
- [43] C.J. Taylor et al. (1951). Response of some scintillation crystals to charged particles. *Physical Review* 84, 1034.
- [44] J.M. Fowler & C.E. Roos (1955). Response of anthracene and stilbene to low-energy protons and X-rays. *Physical Review* 98, 996.
- [45] S. Bashkin et al. (1958). Response of CsI(Tl) crystals to energetic particles. *Physical Review* 109, 434.
- [46] A. Galonsky et al. (1956). Energy response of CsI to protons. *Review of Scientific Instruments* 27, 58
- [47] G.T. Wright (1955). Absolute scintillation efficiency of anthracene crystals. *Proceedings of the Physical Society B* 68.
- [48] G.T. Wright (1955). Fluorescence excitation spectrum of anthracene. *Physical Review* 100, 587.
- [49] F. S. Eby & W. K. Jentschke (1954). Fluorescent response of NaI(Tl) to nuclear radiations. *Physical Review* 96, 911.
- [50] R.B. Murray y A. Meyer (1961). Scintillation response of activated inorganic crystals to various charged particles. *Physical Review* 122, 815-826.
- [51] L. Bardelli et al. (2008). Pulse-shape discrimination with  $PbWO_4$  crystal scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 584, 129-134.
- [52] V.I. Tretyak (2010). Semi-empirical calculation of quenching factors for ions in scintillators. *Astroparticle Physics* 33, 40-53.
- [53] R. Gwin y R.B. Murray (1962). Studies of the scintillation response of CsI(Tl). *IEEE Transactions on Nuclear Science* 9(3), 28-32.
- [54] D.R. Tovey et al. (1998). Measurement of scintillation efficiencies and pulse-shapes for nuclear recoils in NaI(Tl) and  $CaF_2(Eu)$  at low energies for dark matter experiments. *Physics Letters B* 433, 150-155.
- [55] H. Chagani et al. (2008). Measurement of the quenching factor of Na recoils in NaI(Tl). *Journal of Instrumentation* 3, P06003.
- [56] R. Bernabei et al. (1998). New limits on particle dark matter search with a liquid Xenon target scintillator. *Physics Letters B* 436, 379-388.
- [57] V. Chepel et al. (2006). Scintillation efficiency of liquid Xenon for nuclear recoils with the energy down to 5keV. *Astroparticle Physics* 26, 58-63.
- [58] A.R.P. Rau (1996). The negative ion of hydrogen. *Journal of Astrophysics and Astronomy* 17, 113-145.
- [59] R.E. Shafer (1998). Laser diagnostic for high current  $H^-$  beams. *AIP Conference Proceedings* 451, 191-198.
- [60] M. Bacal & G. W. Hamilton (2014). Laser measurement of the photodetachment cross section of  $H^-$  at the wavelength 1064nm. *Physical Review A* 90, 013411.
- [61] A.N. Matveev (1988). *Optics*. Moscú: Mir Publishers.
- [62] I. Kandarakis et al. (2006). A theoretical model evaluating the angular distribution of luminescence emission in X-ray scintillating screens. *Applied Radiation and Isotopes* 64, 508-519.
- [63] L. Claude & R. Pier-Giorgio (2004). *Principles of radiation interaction in matter and detection*. Singapur: World Scientific.
- [64] C.L. Woody et al. (1992). Radiation damage in undoped CsI and CsI(Tl). *IEEE Transactions on Nuclear Science* 39(4), 524-531.
- [65] M. Nikl. et al (1997). Radiation induced formation of color centers in  $PbWO_4$  single crystals. *Journal of Applied Physics* 82, 5758.
- [66] M. Nikl. et al. (1999). Radiation damage processes in wide-gap scintillating crystals. New scintillation materials. *Nuclear Physics B* 78, 471-478.
- [67] M. Kobayashi (1987). Radiation damage of CsI(Tl) crystals above  $10^3$  rad. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 254, 275-280.
- [68] W. Busjan et al. (1999). Shortlived absorption centers in plastic scintillators and their influence on the fluorescence light yield. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 152, 89-104.