



UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MÉXICO

---

---

FACULTAD DE CIENCIAS

DESARROLLO DE UNA METODOLOGÍA PARA LA  
MEDICIÓN DE LA SECCIÓN EFICAZ DE LA  
REACCIÓN NUCLEAR C-13(d,p)C-14 POR  
ESPECTROMETRÍA DE MASAS CON  
ACELERADORES.

T E S I S

QUE PARA OBTENER EL TÍTULO DE:

F Í S I C A

P R E S E N T A:

SILVIA MURILLO MORALES

DIRECTOR DE TESIS:

DRA. LIBERTAD BARRÓN PALOS



CIUDAD UNIVERSITARIA, CDMX.

2018



Universidad Nacional  
Autónoma de México



**UNAM – Dirección General de Bibliotecas**  
**Tesis Digitales**  
**Restricciones de uso**

**DERECHOS RESERVADOS ©**  
**PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL**

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

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

1. Datos del alumno

Murillo

Morales

Silvia

56 66 64 53

Universidad Nacional Autónoma de México

Facultad de Ciencias

Física

30720456-9

2. Datos del tutor

Dra.

Libertad

Barrón

Palos

3. Datos del sinodal 1

Dr.

Peter Otto

Hess

Bechstedt

4. Datos del sinodal 2

Dr.

Víctor Manuel

Velázquez

Aguilar

5. Datos del sinodal 3

Dr.

Luis Armando

Acosta

Sánchez

6. Datos del sinodal 4

Dr.

Elí Francisco

Aguilera

Reyes

7. Datos del trabajo escrito

Desarrollo de una metodología para la medición de la sección eficaz de la reacción nuclear  $C-13(d,p)C-14$  por espectrometría de masas con aceleradores.

71 p.

2018

*A México, a la UNAM  
y a mis padres.*



Gracias a mis padres por haberme educado de la manera más humana posible; por enseñarme lo más bello y valioso del mundo, para que dentro del arte, la música, la literatura y la ciencia yo tuviese la libertad de elegir la física como mi vocación. Gracias también por enseñarme el valor de la disciplina y el trabajo arduo. Por haberme brindado absolutamente todo lo necesario para poder terminar la primera parte de este largo camino.



# Agradecimientos

A mi tutora, Dra. Libertad Barrón, a quien admiro por su destreza para resolver cualquier enigma, por su calidad humana y por su bello carácter. Gracias por el tiempo, la paciencia, la gentileza, las lecciones y la gran disposición.

Al Dr. Efraín Chávez, por su generosidad, su enorme voluntad y disposición, sus lecciones, su confianza y por haberme dado un lugar desde que busqué exilio.

A mis sinodales, Dr. Peter Otto Hess, Dr. Elí Aguilera, Dr. Luis Acosta y Dr. Víctor Vélázquez por sus críticos comentarios y su disposición. Asimismo, al Dr. Eduardo Andrade por sus enseñanzas, sus sugerencias, por compartir su vasta experiencia y ser siempre tan gentil.

Al Instituto de Física por permitirme el honor de ser su estudiante y por brindarme mi tan preciado rincón en aquel cubículo. Asimismo quiero agradecer al departamento de Física Nuclear y Aplicaciones de la Radiación (FNAR) por otorgarme un lugar en él. Así como al Dr. Daniel Marín, M.C. Eilens López, Guadalupe Reza., M.C Jorge Ramírez. Fis. Juan A. Flores, Benito Góngora y Fis. Gustavo Vega por su apoyo y por convertirse en verdaderos hermanos para mí, gracias por su amistad y su tolerancia. Al M.C.Vladimir Lemus por su apoyo, su espíritu para ayudar y sobre todo por recomendarme el mejor lugar y a la mejor tutora.

A la Dra. Corina Solís, Fis. Arcadio Huerta, Dr. Santiago Padilla, Sergio González, Dra. María Rodríguez y en general a todo el equipo del Laboratorio Nacional de Espectrometría de Masas con Aceleradores (LEMA) por permitirme hacer uso de sus instalaciones, por el apoyo y disposición para la realización de este trabajo.

A la Facultad de Ciencias por permitirme ser dueña absoluta de todo lo que aquí aprendí. Al Dr. Mathieu Hautefeuille por ser el mejor profesor que pude tener, por su gentileza, por incentivar me y por ser el primero en demostrarme que creía en mí en una etapa crucial de mi formación.

Este trabajo fue posible gracias al financiamiento de DGAPAUNAM IG101016, CONACYT UNAM 271802, CONACYT-UNAM 280760.

Al Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares, y en particular al equipo del acelerador 6.0 MeV Tandem van der Graaff, a Fis. Ghiraldo Murillo, Dr. Armando Varela, Fis.. Rafael

Policroniades, Pedro Villaseñor, Fis. Roxana Gutiérrez, Miguel Ángel Sánchez, por el tiempo de haz brindado y por su amabilidad.

Al Dr. Yassid Ayyad por las enseñanzas, la confianza y motivación; por estar al pendiente y sobre todo por ilustrarme con la lista de cosas que he de aprender para lo que resta del camino.

A la Facultad de Música y a la ENALLT (CELE) por ser parte fundamental de mi desarrollo como persona y darme amigos para la vida.

A mis más grandes amigos Alejandra F., Daniela O., Joan Aitor, Andrea M., Alexander, Aldo S., Erandi, Moisés, Sebastián, Eugenio por su paciencia, cariño y por brindarme su apoyo incondicional a lo largo de este camino, sin ustedes todo hubiese sido aún más difícil. A mis grandes amigos y compañeros de la facultad, Damián, Xochitl, F. Ferrari, Carlos Leonardo, Nadxieli, Laura, etc, de quienes pude aprender tanto.

A Tlacuaches Rugby Club por ser un núcleo de amistad, por el apoyo y la paciencia.

Por último, a mi querida UNAM por brindarme la oportunidad de convertirme en profesionista, dándome la mejor instrucción del país.

# Índice general

Agradecimientos	6
<b>1. Introducción</b>	<b>11</b>
<b>2. Principios Físicos</b>	<b>13</b>
2.1. El Núcleo Atómico . . . . .	13
2.2. Reacciones Nucleares . . . . .	14
2.2.1. Generalidades y Nomenclatura de las Reacciones Nucleares . . . . .	15
2.2.2. Barrera de Coulomb . . . . .	16
2.2.3. Sección Eficaz . . . . .	17
2.2.4. Reacciones ( <i>d, p</i> ) y Modelo del Núcleo Compuesto . . . . .	19
<b>3. Reacción nuclear <math>^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})^{14}\text{C}</math></b>	<b>21</b>
3.1. Antecedentes . . . . .	21
3.1.1. Otros estudios sobre la reacción nuclear $^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})^{14}\text{C}$ . . . . .	22
3.1.2. Medición de sección eficaz por AMS . . . . .	24
3.2. Tasa de Reacción . . . . .	24
3.3. Energía de $^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})^{14}\text{C}$ . . . . .	26
3.3.1. Valor $Q$ . . . . .	27
3.3.2. Energía umbral . . . . .	28
<b>4. Desarrollo Experimental</b>	<b>31</b>

4.1. Muestras . . . . .	32
4.2. Arreglo Experimental . . . . .	32
4.2.1. Calibración de Energía . . . . .	33
4.3. Determinación del número de proyectiles incidentes mediante espectrometría por retrodispersión de Rutherford (RBS) . . . . .	34
4.4. Espectrometría de Masas con Aceleradores (AMS) . . . . .	35
4.4.1. Laboratorio de Espectrometría de Masas con Aceleradores (LEMA-UNAM) . . . . .	37
4.4.2. Esquema general de un sistema de AMS . . . . .	37
4.5. Acelerador Tandem Van de Graaff . . . . .	39
<b>5. Resultados: Análisis e Interpretación</b>	<b>43</b>
5.1. Datos . . . . .	43
5.1.1. Análisis RBS por SIMNRA . . . . .	43
5.1.2. Número de proyectiles . . . . .	46
5.1.3. Concentraciones relativas . . . . .	50
5.1.4. Cálculo del Yield . . . . .	54
<b>6. Conclusiones</b>	<b>61</b>
<b>A. Publicación</b>	<b>63</b>
<b>Bibliografía</b>	<b>68</b>

# Capítulo 1

## Introducción

El estudio de reacciones nucleares nos ayuda a entender la estructura y el comportamiento de los núcleos atómicos. Además, el estudio de reacciones nucleares a bajas energías es importante en astrofísica nuclear, pues nos permite entender procesos como la nucleosíntesis del Big Bang, que dio origen a los núcleos atómicos a partir de protones y neutrones preexistentes y la formación de elementos químicos, la evolución estelar y los procesos mediante los cuales las estrellas convierten hidrógeno en helio, como el ciclo CNO.

La sección eficaz de una reacción nuclear nos da información sobre los núcleos en cuestión. Lo que sabemos sobre la sección eficaz de la reacción nuclear  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$  está basado en gran medida en datos experimentales muy limitados. Por ello, uno de nuestros objetivos es ampliar el conocimiento experimental de esta reacción. Asimismo, dentro del estudio de estructura nuclear, esta reacción permite estudiar la formación de núcleo compuesto.

Existe poca información sobre la sección eficaz total de  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$ . El primer y más importante trabajo data de 1956, *Compound Nucleus Effects in Deuteron Reactions:  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$*  [1], realizado por Marion y Weber, que con la motivación de estudiar la formación de núcleo compuesto lleva a cabo la medición de la sección eficaz total de  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$ . El segundo y más reciente fue realizado en 2007 por Colaux *et. al* [2]<sup>1</sup>.

La técnica para medir secciones eficaces de reacciones nucleares por espectrometría de masas por aceleradores (AMS por sus siglas en inglés) es aún muy nueva, pues se implementó por primera vez en 1980 por M. Paul para estudiar la reacción  $^{26}\text{Mg}(p, n)^{26}\text{Al}$  a energías en el rango de  $E_p = [5.2 - 6.9]$  MeV en el acelerador tandem del laboratorio nacional de Argonne [21]. Dicho estudio fue a su vez el primero que introdujo AMS a experimentos de laboratorio en astrofísica nuclear, campo en el cual el estudio del  $^{26}\text{Al}$  ha sido de particular importancia [16] [21].

En el presente trabajo se desarrolla una metodología para estudiar la sección eficaz de la reacción nuclear  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$  a 533 keV en el sistema del centro de masa. En el acelerador Tandem Van de Graaff 6.0 MeV del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares (ININ)

---

<sup>1</sup>Para más detalles ver Sección 3.1.1

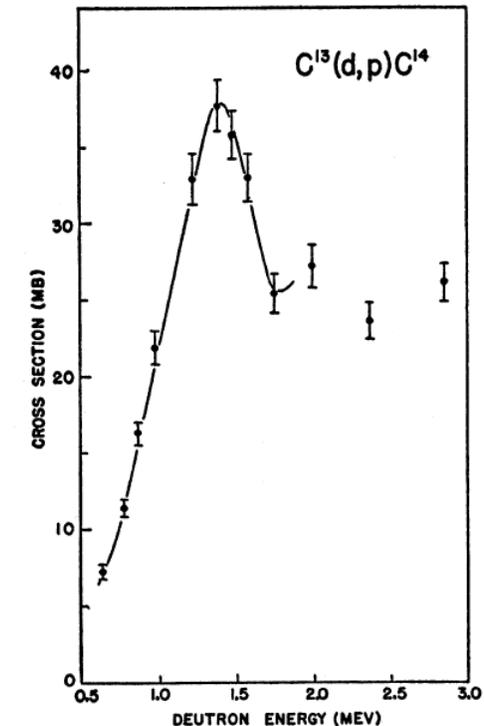


Figura 1.1: Sección eficaz total para los protones en el estado base de la reacción  $^{13}\text{C}(d,p)$  como función de la energía incidente medida por Marion y Weber. Obtenida de integrar las distribuciones angulares de 0.64 a 2.84 MeV.

se irradiaron dos muestras de grafito natural contenidas en cátodos de aluminio. El número de partículas incidentes fue determinado por técnicas de retrodispersión de Rutherford. Asimismo, se estudiaron las muestras como blancos gruesos, tomando en cuenta el poder de frenado de los deuterones sobre el grafito, el alcance y el *yield*. Se discute también la relevancia de  $^{13}\text{C}(d,p)^{14}\text{C}$  en la formación de núcleo compuesto, así como la importancia del desarrollo de la técnica de AMS para medir secciones eficaces de reacciones nucleares.

# Capítulo 2

## Principios Físicos

### 2.1. El Núcleo Atómico

Sabemos por muchas investigaciones, que los núcleos en su descripción más simple, están formados por nucleones, que es el nombre genérico para protones  $Z$ , y neutrones  $N$ , y que el total de nucleones de cada elemento es el número atómico  $A = N + Z$ . Los núcleos con el mismo  $Z$  pero distinto  $A$ , y por consiguiente distinto  $N$ , se llaman isótopos, que al tener la misma carga forman átomos con propiedades químicas muy similares. Por otro lado, a aquellos núcleos con un mismo  $A$  se les conoce como isóbaros. La carga en el núcleo es  $Ze$ , donde  $e$  es la carga del electrón. La masa del electrón es  $m_e = 5.485799 \times 10^{-4} u$ , la cual es mucho menor que las masas tanto del protón como del neutrón, que son aproximadamente iguales ( $m_p = 1.008665 u$  y  $m_n = 1.007276 u$  respectivamente), por lo que su contribución a la masa atómica es mínima y es el núcleo el que concentra casi toda la masa del átomo. La masa del núcleo es aproximadamente  $A$  veces la de un nucleón, que generalmente es expresada en unidades de masa atómica (amu o  $u$ ),

$$1 u \equiv 1 \text{ amu} = 1.66057 \times 10^{-27} \text{ kg} = 931.502 \text{ MeV}/c^2$$

donde 1 amu se define como 1/12 de la masa de un átomo neutro de  $^{12}\text{C}$ .

1 MeV =  $10^6$  eV, donde 1 eV es el cambio en la energía de un electrón al acelerarse a través de una diferencia de potencial electrostático de 1 V.

La masa nuclear es de hecho un poco menor que la suma de la masa de los nucleones que lo constituyen debido a la contribución relativista,  $\delta m = E/c^2$ , de su energía negativa de enlace:

$$m_A = N m_n + Z m_p - B/c^2 \tag{2.1}$$

donde  $B$  es la energía de enlace, que por convención se considera positiva, para que así  $B$

sea el valor de la energía necesaria para separar el núcleo en  $N$  neutrones y  $Z$  protones.  $B$  varía de núcleo a núcleo pero es típicamente de 8 MeV por nucleón para núcleos estables, es decir,  $B \approx 8 \text{ MeV}/u$ .

Para entender la estructura de los núcleos debe estudiarse cómo interaccionan unos con otros, cómo se forman y qué sucede cuando hay una colisión entre dos núcleos, así como la interacción entre nucleones, que es la responsable de mantener la formación de un núcleo.

Es así como sabemos que los núcleos no sólo existen en un estado estable sino también en una serie de estados excitados discretos a mayores energías. Los núcleos en estados excitados tienden a tener vidas cortas y pueden perder energía al emitir partículas o rayos  $\gamma$  hasta alcanzar su estado base. Por ello, nuestro estudio sobre estructura nuclear debe abarcar tanto el estado base como los estados excitados.

El objeto de estudio de la física de la estructura nuclear es determinar las propiedades de estos estados para todos los núcleos y así entender por qué cada núcleo tiene los estados observados.

El tipo de experimento más común para estudiar las propiedades de los núcleos consiste en hacer incidir un haz de partículas sobre un blanco, y con la instrumentación adecuada analizar las energías de las partículas emitidas en sus distintas direcciones como resultado de la colisión. En la interpretación de los datos, se requiere tener conocimiento previo de la teoría de reacciones nucleares, lo cual a su vez depende de conocer la estructura de los núcleos en cuestión. Así pues, entre más conocimiento haya sobre reacciones nucleares más se conocerá de estructura nuclear y viceversa [3] [4].

## 2.2. Reacciones Nucleares

Cuando hay interacción entre partículas energéticas provenientes de un reactor, un acelerador o una fuente radioactiva, y materia, existe la posibilidad de que se lleve a cabo una reacción nuclear.

Fue Ernest Rutherford en 1919 el primero en estudiar reacciones nucleares, utilizando partículas  $\alpha$  de una fuente radioactiva dirigidas a un blanco de  $^{14}\text{N}$  para producir  $^{17}\text{O}$  [5].

Distinto a las reacciones químicas, los productos resultantes de una reacción nuclear no están determinados unívocamente. Generalmente, las reacciones nucleares se llevan a cabo entre proyectiles ligeros que inciden sobre blancos más pesados, aunque también se pueden estudiar reacciones en la llamada “cinemática inversa”, donde el proyectil es más pesado que el blanco. De dos o más reactantes pueden haber docenas de posibilidades de composición de los productos finales con un amplio número de estados cuánticos disponibles.

A cada rama de la reacción que puede ocurrir, con estados cuánticos bien definidos se le llama *canal*. La probabilidad de que una reacción nuclear se lleve a cabo a través de un canal de salida determinado depende de la energía de la partícula incidente y es medida

por la sección eficaz para ese canal [7].

La teoría de reacciones nucleares, además de explicar los mecanismos que determinan la ocurrencia de diferentes procesos debe también evaluar las secciones eficaces correspondientes a todos los canales de salida.

Además de los componentes iniciales y finales, también es importante discutir los procesos a través de los cuales se puede llevar a cabo una reacción nuclear. Existen en principio, dos mecanismos de acción diferentes de interacción. En las reacciones *directas*, el proyectil y el blanco tienen una interacción de corta duración, con posible intercambio de energía o partículas entre ellas. El otro tipo de proceso es la fusión del proyectil con el blanco, en el que la energía disponible es distribuida a todos los nucleones y se forma un núcleo compuesto altamente excitado .

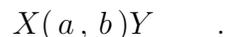
### 2.2.1. Generalidades y Nomenclatura de las Reacciones Nucleares

Una reacción nuclear típica puede escribirse como:



donde  $a$  es un proyectil acelerado,  $X$  es el blanco, generalmente estacionario en el sistema del laboratorio;  $Y$  es el producto pesado de la reacción, el cual por lo general no se observa directamente, y  $b$  una partícula ligera, que a diferencia de  $Y$ , puede ser detectada y medida. En general,  $a$  y  $b$  son nucleones o núcleos ligeros, pero en ocasiones el producto puede ser un rayo  $\gamma$  (captura radiativa).

Otra manera de escribir lo anterior de forma compacta es



Clasificamos las reacciones nucleares de distintas maneras. Si para  $X(a, b)Y$  la partícula incidente y las partículas producidas son las mismas, es decir, cuando  $X = Y$  y  $a = b$ , se dice que es un proceso de *dispersión*, de tipo *elástica* si  $Y$  y  $b$  están en sus estados base, e *inelástica* si  $Y$  o  $b$  está en un estado excitado. En una reacción de *transferencia*, uno o dos nucleones son transferidos entre el proyectil y el blanco, como un deuterón convirtiéndose en un protón o un neutrón sumando un nucleón al blanco  $X$  para formar  $Y$ . A las reacciones nucleares también las podemos clasificar por el mecanismo que rige dicho proceso. En las reacciones directas (al cual pertenecen las reacciones de transferencia), sólo toman parte pocos nucleones en la reacción. Dichas reacciones pueden agregar o eliminar un nucleón individual de un estado del modelo de capas y pueden entonces servir como formas de explorar la estructura de los núcleos. Otro mecanismo es el del *núcleo compuesto*,

en el cual el núcleo entrante y el blanco se unen brevemente antes de que el rayo  $\gamma$ , nucleón o núcleo ligero producido sea eyectado [6] [7].

## Leyes de Conservación

Existe un conjunto de leyes de conservación que contribuyen a restringir procesos que se llevan a cabo cuando un blanco es bombardeado con un proyectil dado:

- Número bariónico.
- Carga.
- Energía y momento lineal
- Momento angular total
- Paridad
- Isospin

### 2.2.2. Barrera de Coulomb

Excepto por los neutrones, todas las partículas involucradas en una reacción nuclear común tienen carga positiva y se repelen. Una vez estando suficientemente cerca dos núcleos  $a + X$  para que la interacción fuerte actúe, el potencial alcanza su máximo y luego se vuelve negativo (atractivo). Debido al potencial de Coulomb, la parte repulsiva representa una barrera que tiende a mantener a los núcleos aparte, es decir, que inhibe reacciones nucleares y es de la forma:

$$V_C(r) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_X Z_a e^2}{r_X + r_a} \quad , \quad (2.2)$$

donde  $Z_X$  y  $Z_a$  son los números atómicos correspondientes a los núcleos que interaccionan en la reacción,  $r_X$  el radio del núcleo  $X$ ,  $r_a$  el radio del núcleo  $a$ , cuya suma es la distancia entre ellos en el momento de la colisión, y  $e$  la carga del electrón.

Un proyectil incidente con energía  $E < E_C$  tiene que penetrar la barrera coulombiana para alcanzar el dominio nuclear. Clásicamente, la distancia más corta a la que el proyectil podría acercarse al núcleo es  $R_c$  (ver Figura 2.1).

Para las reacciones inducidas por partículas cargadas que ocurren en escenarios astrofísicos, las energías del proyectil van muy por debajo de la barrera coulombiana del sistema. La parte sombreada de la Figura 2.1 representa dicha barrera.

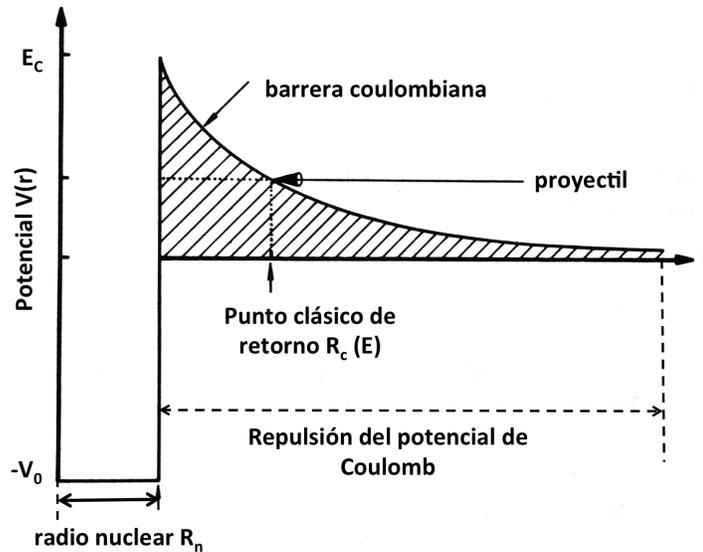


Figura 2.1: Esquema de la barrera coulombiana de dos núcleos  $X + a$ . Conforme el potencial nuclear de atracción empieza a actuar, el potencial total alcanza un máximo para luego volverse negativo.

Entre mayor sea la energía del proyectil, más se acercarán los núcleos o más cerca se estará de alcanzar el máximo de la barrera o incluso superarlo.

La barrera coulombiana para  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$  es de 2.23 MeV en el sistema de laboratorio.

### 2.2.3. Sección Eficaz

La interacción entre dos partículas se describe generalmente en términos de la sección eficaz, la cual da una medida cuantitativa de la probabilidad de que se lleve a cabo una reacción nuclear y puede ser calculada si se conoce la forma en que interactúan las dos partículas en cuestión. La definición formal de la sección eficaz la podemos desarrollar de la siguiente forma:

Consideramos un haz de partículas que inciden sobre una partícula blanco. Asumimos que el área que abarca el haz es mucho mayor que la del blanco y que las partículas del haz están uniformemente distribuidas espacial y temporalmente, tal que podemos verlo como el flujo  $\phi$  de partículas a incidentes por unidad de área y unidad de tiempo. En otros términos, considerando una reacción nuclear típica,  $X(a, b)Y$ , si hay un flujo  $\phi$  incidiendo sobre un blanco con  $N$  núcleos  $X$ , entonces el número de partículas  $b$  emitidas por unidad de tiempo es proporcional tanto a  $\phi$  como a  $N$ . La constante de proporcionalidad es la sección eficaz  $\sigma$ , la cual tiene dimensiones de área, cuya unidad más común en física nuclear es el *barn* [b], ( $1 \text{ b} = 10^{-28} \text{ m}^2$ ).

Si queremos conocer el número de partículas  $b$  emitidas por unidad de tiempo dentro de un elemento de ángulo sólido  $d\Omega$  en la dirección de ángulos polares  $(\theta, \xi)$  con respecto al haz incidente, entonces es proporcional a  $d\Omega$ ,  $\phi$  y  $N$ . La constante de proporcionalidad en

este caso es la sección eficaz diferencial  $d\sigma/d\Omega$ . Para ello a través de cierto canal de salida depende de la energía de la partícula incidente y se mide por medio de la sección eficaz de ese canal [4][7] [10] .

En general, la probabilidad de emisión de  $b$ , y por consiguiente la sección eficaz diferencial depende de los ángulos  $\theta$  y  $\xi$  y  $d\sigma/d\Omega$  depende de la energía de la reacción y del ángulo hacia el que se dispersaron las partículas, y como el proceso de dispersión es prácticamente simétrico respecto a la dirección del haz incidente, la sección eficaz diferencial no depende de la componente azimutal  $\xi$ .

A una energía dada de incidencia, podremos definir una sección eficaz para cada conjunto de estados de cada conjunto posible de núcleos residuales, es decir, para cada canal abierto. Cada canal corresponde a distintos núcleos en diferentes estados de determinada energía, por lo que no hay interferencia cuántica entre las amplitudes de probabilidad correspondientes. Dado que las secciones eficaces son medidas probabilísticas entonces pueden simplemente sumarse las secciones eficaces de los distintos canales de reacción. La suma de las secciones eficaces para los procesos no elásticos, se llama sección eficaz de reacción o de absorción para el par de partículas a esa energía. Cuando además se suma el canal elástico, es decir, la contribución de la dispersión elástica, obtenemos la sección eficaz total.

Desde otro punto de vista, si consideramos la colisión de dos núcleos, vistos clásicamente como esferas de radios  $r$  y  $R$ ,  $r$  se impactará sobre  $R$ , que está en reposo (Figura 2.2). Las dos esferas no colisionarán a menos que su distancia de impacto  $b$  sea menor que la suma de los radios,  $b \leq R + r$ , lo cual es lo mismo que una partícula puntual sobre una esfera, cuyo radio es  $R + r$

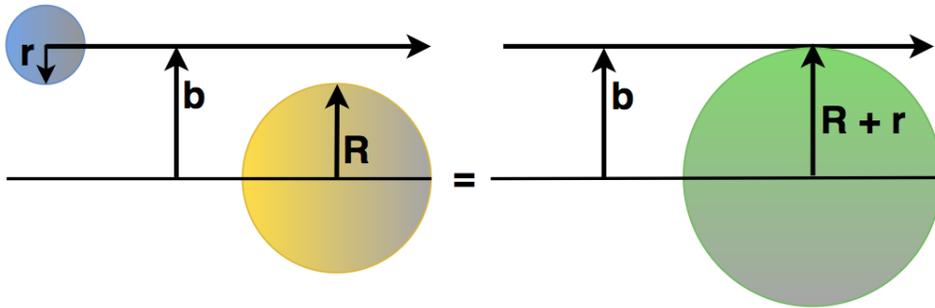


Figura 2.2: La sección eficaz de la colisión de dos núcleos es igual a la sección eficaz de una partícula cuyo radio es igual a la suma  $R + r$

Ahora, para calcular la sección eficaz total para cualquier dispersión a una energía  $E$  definida como la integral de  $d\sigma/d\Omega$  sobre todos los ángulos sólidos, tenemos:

$$\sigma(E) = \int d\Omega \frac{d\sigma}{d\Omega} . \quad (2.3)$$

### 2.2.4. Reacciones $(d, p)$ y Modelo del Núcleo Compuesto

Después de la dispersión inelástica, las reacciones nucleares más simples son aquellas que involucran la transferencia de un nucleón. De entre éstas, las que se han estudiado más extensivamente han sido las reacciones tipo  $(d, p)$ , deuterio-protón.

El *deuterio* es un átomo neutro cuyo núcleo es un deuterón,  ${}^2H$ , el cual está compuesto por un protón y un neutrón, que es el estado ligado más simple de nucleones y es por esto un sistema ideal para estudiar las interacciones de nucleón-nucleón. En física nuclear un deuterón es lo que para la física atómica es un átomo de hidrógeno. Una de las propiedades que caracterizan al deuterón es que éste no tiene estados excitados pues su estado ligado es bastante débil, por lo que un “estado excitado” consistiría de un protón y un neutrón libres. La energía de enlace del deuterón es una cantidad medida con mucha precisión y su valor es  $B_E = 2.224$  MeV.

Si la distribución de energía de los protones de una reacción  $(d, p)$  es estudiada, se encuentra que en general consiste de un número de picos discretos a energías altas, los cuales se van haciendo cada vez más cercanos entre sí hasta hacerse un continuo a bajas energías. Estudios sobre distribución angular de estos protones muestran que, cuando promediadas por encima de un intervalo adecuado de energías, la distribución continua es simétrica alrededor de los  $90^\circ$ , y usualmente casi isotrópica. La distribución continua a bajas energías se debe a los protones emitidos del núcleo compuesto y al rompimiento del deuterón. Los picos discretos a energías más altas corresponden a los protones emitidos en reacciones de stripping. Las secciones eficaces de núcleo compuesto pueden ser calculadas por la teoría de Hauser-Feshbach. Sin embargo, los protones más energéticos, en particular aquellos con resolución de picos discretos, no muestran a menudo la simetría alrededor de los  $90^\circ$  característica de las reacciones que atraviesan el núcleo compuesto sino que se forman hacia atrás a altas energías incidentes. Además, la magnitud absoluta de la sección eficaz es a menudo mucho más grande que la que proporciona la teoría estadística, lo que indica que hay otro proceso físico que contribuye a la amplitud de la reacción  $(d, p)$  [3].

En 1950, S. T. Butler reportó que las reacciones  $(d, p)$  y  $(d, n)$  se llevaban a cabo, al menos en parte, por *stripping* en el que uno de los nucleones del deuterón es absorbido en el núcleo, mientras que el otro logra el balance de energía y momento debido a la baja energía de enlace y el largo radio que tiene el deuterón [9].

A diferencia de las reacciones nucleares directas, que implican sólo una etapa desde el estado inicial del canal de entrada al estado final del canal de salida, las reacciones de núcleo compuesto conllevan varias etapas.

El problema del núcleo compuesto puede dividirse en dos partes:

- La formación del núcleo compuesto
- El decaimiento del sistema compuesto en sus productos.

Un núcleo compuesto es formado después de la colisión, y la partícula incidente forma parte de éste aunque es indistinguible del resto de los nucleones. La energía cinética y el momentum lineal de la partícula incidente son rápidamente distribuidos sobre el sistema completo y por ello, las propiedades del núcleo compuesto no dependen de su formación [12].

El modelo del núcleo compuesto es bastante apto para describir reacciones nucleares inducidas por partículas incidentes de energías relativamente bajas (proyectiles de energías  $< 50 \text{ MeV}$ ) [7].

# Capítulo 3

## Reacción nuclear $^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})^{14}\text{C}$

Debido a que la reacción que estamos estudiando involucra grafito natural (98.9%  $^{12}\text{C}$ , 1.1%  $^{13}\text{C}$ ), los canales de reacción que nos interesan son  $^{12}\text{C} + \text{d}$  y  $^{13}\text{C} + \text{d}$  y los canales de salida posibles en el rango de energías de interés para este estudio ( $E_{lab} = [1 - 10]$  MeV en el sistema del laboratorio) se enlistan en la Tabla 3.1 y la sección eficaz calculada de la librería Tendl se muestra en la Figura 3.1.

Tabla 3.1: Canales de reacción para  $^{12}\text{C}(\text{d}, \text{p})$  y  $^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})$

$^{12}\text{C} + \text{d}$	$^{13}\text{C} + \text{d}$
$^{13}\text{C} + \text{p}$	$^{14}\text{C} + \text{p}$
$^{13}\text{N} + \text{n}$	$^{14}\text{N} + \text{n}$
$^{14}\text{N} + \gamma$	$^{15}\text{N} + \gamma$
$^{10}\text{B} + \alpha$	$^{11}\text{B} + \alpha$
	$^{12}\text{C} + \text{t}$

### 3.1. Antecedentes

Para poder conocer y entender mejor tanto la reacción de nuestro interés,  $^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})^{14}\text{C}$ , como el método experimental y de análisis, estudiamos los trabajos anteriores sobre esta reacción y aquellos en que se involucrara el uso de la técnica de AMS para medir sección eficaz.

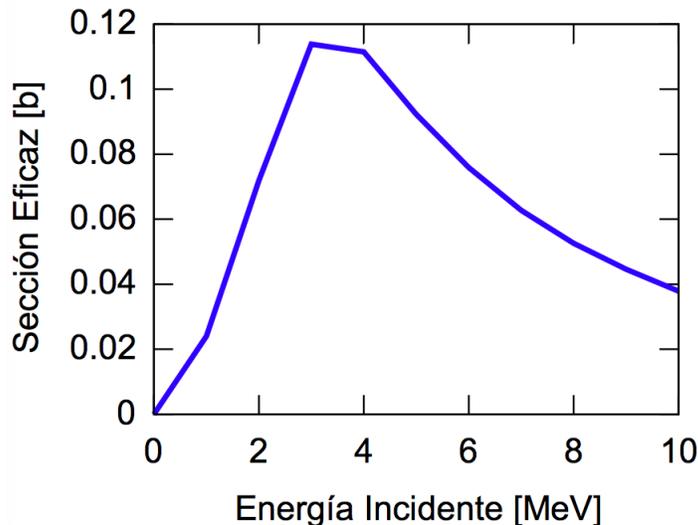


Figura 3.1: Sección eficaz de la reacción nuclear  $^{13}\text{C}(d, p)$  para bajas energías como función de la energía incidente. Datos obtenidos de la librería Tendl (2014)

### 3.1.1. Otros estudios sobre la reacción nuclear $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$

Como se mencionó en la introducción de esta tesis, existen pocos datos experimentales en torno a la reacción nuclear  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$ . En 1952, Bromley y Goldman de la Universidad de Rochester, investigaron las paridades de los estados base de  $^{14}\text{C}$  y  $^{14}\text{N}$  por medio de estudiar la distribución angular de los protones de la reacción  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$  y la distribución de neutrones de  $^{13}\text{C}(d, n)^{14}\text{N}$  utilizando deuterones de 4 MeV [24]. En 1953, Koudijs, Valckx y Endt midieron las distribuciones angulares de los protones de largo alcance producidos por esta reacción a seis distintas energías entre 0.3 MeV y 0.65 MeV concluyendo que a este nivel de energías estudiadas no se puede esperar que esta reacción se lleve a cabo principalmente por *stripping* (ver sección 2.2), ni que la teoría sobre *stripping* sea válida para energías que estén considerablemente por debajo de la barrera coulombiana [25]. Pocos años después, en 1964, se hicieron medidas de correlación angular protón-gamma para la reacción  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$  a través de los estados excitados (1, 3 y 6) del  $^{14}\text{C}$  [29]. Otras investigaciones más recientes se han enfocado en su función de excitación [26] y en 1984 se utilizó esta reacción para estudiar las tasas de transición isoescalar y probabilidades de stripping de neutrones a  $^{14}\text{C}$  [27].

En la investigación de Marion y Weber, de la que se habló en la introducción se obtienen las curvas de excitación a ángulos de  $20^\circ$  y  $135^\circ$  y se miden distribuciones angulares a energías de incidencia  $E_d = [0.64 - 2.84]$  MeV, obteniendo las secciones eficaces diferenciales para dichas energías (Figura 1.1). La medición de la sección eficaz total de  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$  es obtenida a partir de integrar las secciones eficaces diferenciales previamente obtenidas. Se concluye que la sección eficaz para bajas energías de bombardeo depende de la formación del núcleo compuesto.

Los dos trabajos más recientes que involucran a la reacción  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$  se publicaron en

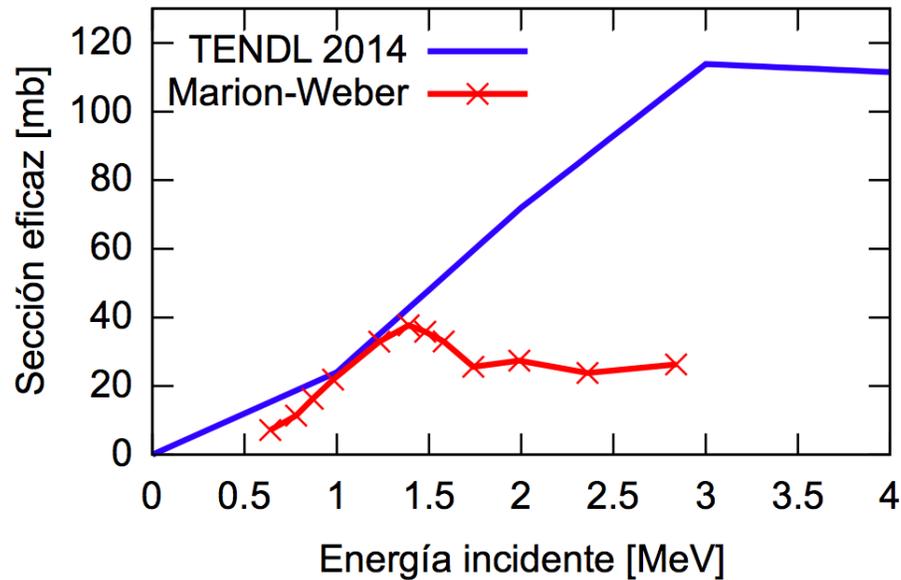


Figura 3.2: La curva azul muestra la sección eficaz de la reacción nuclear  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$  datos calculados librería Tendl (2014). La curva roja corresponde a los datos obtenidos experimentalmente por Marion y Weber

2006 y 2007 respectivamente. El primero, mencionado en la introducción de esta tesis, se realizó en Bélgica con la motivación de aplicar las reacciones inducidas por deuterones sobre  $^{13}\text{C}$  como herramienta de análisis de perfil de profundidad de superficies de elementos ligeros [2]. En éste se midieron las secciones eficaces diferenciales de distintas reacciones, en su estado base,  $^{13}\text{C}(d, p_0)^{14}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}(d, \alpha_0)^{11}\text{B}$  y  $^{13}\text{C}(d, t_0)^{12}\text{C}$ , y para el primer estado excitado,  $^{13}\text{C}(d, \alpha_1)^{11}\text{B}$ ; cuyos resultados fueron comparados con los obtenidos por Marion y Weber, que resultan en buena concordancia, como se puede ver en la Figura 3.3. En el segundo, en el Instituto de Energía Atómica de China, con la motivación en astrofísica de estudiar los factores  $S$  de  $^{13}\text{N}(p, \gamma)^{14}\text{O}$ , se reanalizó la distribución angular de  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$  utilizando la aproximación de Johnson-Soper y comparándola con los datos experimentales de [28] y se derivó el coeficiente de normalización asintótica cuadrática (ANC) de decaimiento virtual  $^{14}\text{C} \rightarrow ^{13}\text{C} + n$  [30].

Existe información sobre otras reacciones nucleares que resulta útil para entender  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$ , la cual corresponde en gran medida a datos sobre otras reacciones que involucran carbono y que son inducidas por deuterio a bajas energías.

La investigación realizada por Jaszczak *et al.* en 1969 sobre  $^{12}\text{C}(d, n)^{13}\text{N}$  [31], que sin ser la reacción nuclear en la que se centra la presente tesis, resulta útil para la comprensión de  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$ , pues es uno de los canales de reacción del carbono a energías de deuterones de nuestro interés y, en particular, estudia tanto la medición de sección eficaz total como la formación de núcleo compuesto.

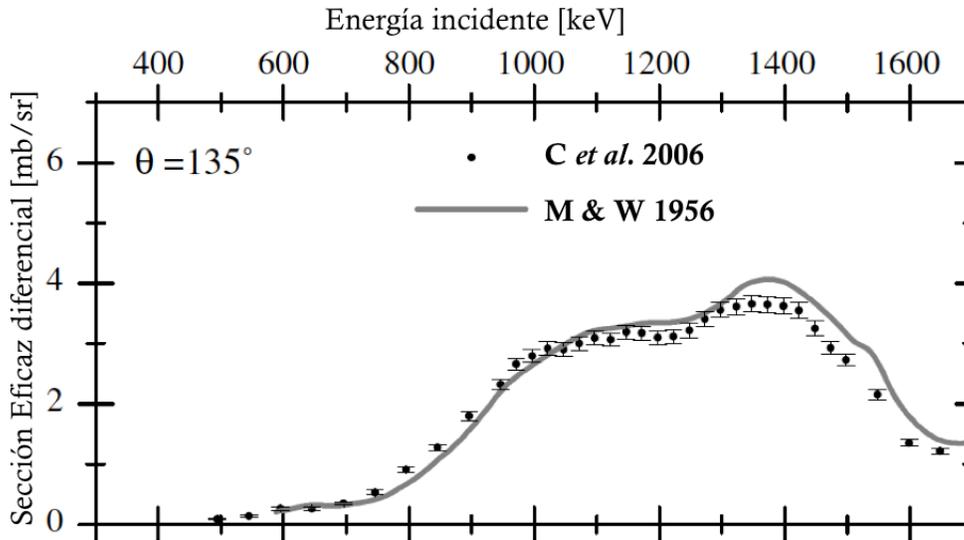


Figura 3.3: Comparación de los datos de Marion y Weber con los de Colaux *et al.*

### 3.1.2. Medición de sección eficaz por AMS

El primer trabajo publicado que implementó la espectrometría de masas con aceleradores para medir secciones eficaces fue realizado por M. Paul en 1980 para la reacción  $^{26}\text{Mg}(p, n)^{26}\text{Al}$  a energías en el rango de  $E_p = [5.2 - 6.9]$  MeV en el acelerador tandem del laboratorio nacional de Argonne [21]. Dicho estudio fue a su vez el primero que introdujo AMS a experimentos de laboratorio en astrofísica nuclear, campo en el cual el estudio del  $^{26}\text{Al}$  ha sido de particular importancia. Un ejemplo de ello es la colaboración de M. He *et al.* (China-Japón) en el 2007 [16], en la cual se midió la producción de  $^{26}\text{Al}$  por medio de la reacción nuclear  $^{14}\text{N}(^{16}\text{O}, \alpha)^{26}\text{Al}^g$  y se deducen las secciones eficaces alrededor de energías de barrera utilizando AMS.

Existen otros experimentos importantes y más recientes en el campo de astrofísica nuclear en el que se ha implementado la técnica de AMS para medir secciones eficaces con la motivación de estudiar la nucleosíntesis, tal es el caso de  $^9\text{Be}(n, \gamma)^{10}\text{Be}$  y  $^{14}\text{N}(n, \gamma)^{14}\text{C}$  y  $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$  [17][18].

## 3.2. Tasa de Reacción

Para conocer la variación temporal de las concentraciones de  $^{12}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}$  y  $^{14}\text{C}$  al irradiar un blanco de grafito natural con un haz de deuterones, se calcula la tasa de reacción, descrita por las ecuaciones (3.1), (3.2) y (3.3) respectivamente, donde las secciones eficaces de los canales de salida relevantes fueron consideradas.

$$\frac{dN_{12}}{dt} = -N_{12} \Sigma_{12} \phi \quad , \quad (3.1)$$

$$\frac{dN_{13}}{dt} = N_{12} \sigma_{13} \phi - N_{13} \Sigma_{13} \phi \quad , \quad (3.2)$$

$$\frac{dN_{14}}{dt} = N_{13} \sigma_{14} \phi - N_{14} \Sigma_{14} \phi \quad . \quad (3.3)$$

$N_{12,13,14}$  corresponde a las concentraciones de  $^{12}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}$  y  $^{14}\text{C}$  a un tiempo dado  $t$ ,  $\Sigma_{12,13,14}$  son las sumas de las secciones eficaces de los distintos canales de reacción  $^{12,13,14}\text{C}((d, p), (d, \beta), (d, n), (d, \gamma) \text{ y } (d, \alpha))$ ;  $\sigma_{13,14}$  son las secciones eficaces de las reacciones nucleares que producen  $^{13}\text{C}$  y  $^{14}\text{C}$ , *i.e.*  $^{12}\text{C}(\text{d}, \text{p})^{13}\text{C}$  y  $^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})^{14}\text{C}$ , respectivamente;  $\phi$  (partículas/s  $\cdot \text{cm}^2$ ) es el flujo de deuterones incidiendo sobre la superficie del grafito del cátodo, (que corresponde típicamente a un haz de deuterio después de ser colimado) y sus soluciones están dadas por:

$$N_{12}(t) = N_{12}^0 e^{-\Sigma_{12} \phi t} \quad , \quad (3.4)$$

$$N_{13}(t) = \left( N_{13}^0 - \frac{N_{12}^0 \sigma_{13}}{\Sigma_{13} - \Sigma_{12}} \right) e^{-\Sigma_{13} \phi t} + \frac{N_{12}^0 \Sigma_{13}}{\Sigma_{13} - \Sigma_{12}} e^{-\Sigma_{13} \phi t} \quad , \quad (3.5)$$

$$\begin{aligned} N_{14}(t) = & \left( \frac{N_{12}^0 \sigma_{14}}{\Sigma_{14} - \Sigma_{13}} \right) \cdot \left[ \left( - \left( \frac{N_{13}^0}{N_{12}^0} - \frac{\sigma_{13}}{\Sigma_{13} - \Sigma_{12}} \right) - \left( \frac{\Sigma_{14} - \Sigma_{13}}{\Sigma_{14} - \Sigma_{12}} \right) \right. \right. \\ & \cdot \left. \left( \frac{\sigma_{13}}{\Sigma_{13} - \Sigma_{12}} \right) \right) e^{-\Sigma_{14} \phi t} + \left( \frac{N_{13}^0}{N_{12}^0} - \frac{\sigma_{13}}{\Sigma_{13} - \Sigma_{12}} \right) e^{-\Sigma_{13} \phi t} \\ & \left. + \left( \frac{\Sigma_{14} - \Sigma_{13}}{\Sigma_{14} - \Sigma_{12}} \right) \left( \frac{\sigma_{13}}{\Sigma_{13} - \Sigma_{12}} \right) e^{-\Sigma_{12} \phi t} \right] \end{aligned} \quad (3.6)$$

A partir de lo anterior graficamos la variación temporal de las concentraciones relativas del  $^{14}\text{C}$  respecto al  $^{12}\text{C}$ ,  $N_{14}/N_{12}$  para distintas energías de irradiación (Figura 3.2), para ello se consideró una corriente típica de deuterones de 500 nA y los valores de las secciones eficaces enlistados en la Tabla 3.2.

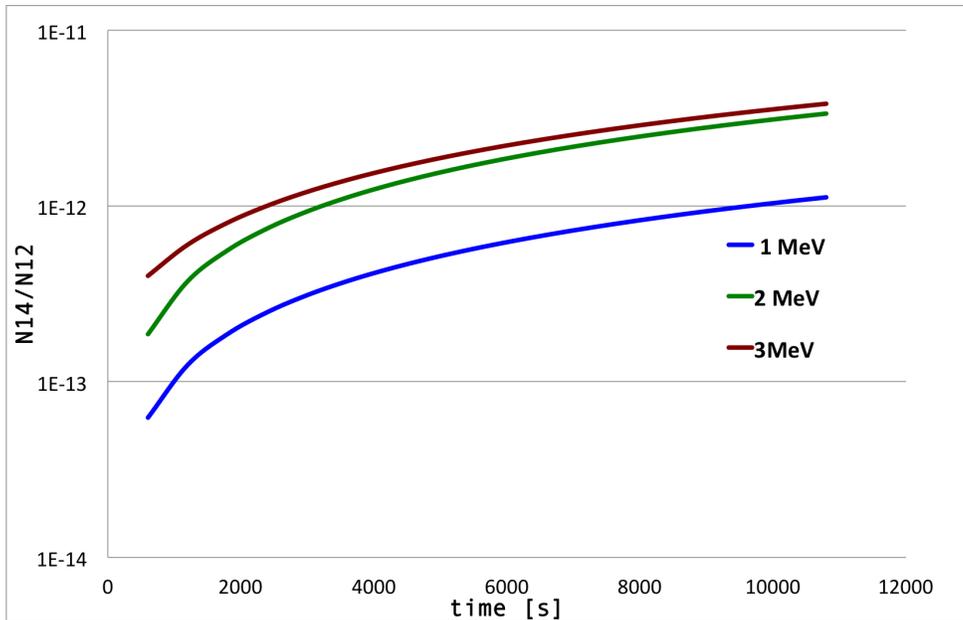


Figura 3.4: Gráfica de la variación de las concentraciones relativas con el tiempo.

Tabla 3.2: Valores teóricos de las secciones eficaces  $\sigma_{12,13,14}$  y  $\Sigma_{12,13,14}$  dadas en milibarns [mb] obtenidos de la biblioteca Tendl 2014 a distintas energías utilizados para el cálculo de tasa de reacción

Energía	$\sigma_{12}$ [mb]	$\sigma_{13}$ [mb]	$\sigma_{14}$ [mb]	$\Sigma_{12}$ [mb]	$\Sigma_{13}$ [mb]	$\Sigma_{14}$ [mb]
	$^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$	$^{13}\text{C}(d,p)^{14}\text{C}$	$^{14}\text{C}(d,p)^{15}\text{C}$			
1 MeV	133.10	24.03	0	357.18	123.30	3.21E-24
2 MeV	330.84	71.98	3.80	530.85	335.07	37.49
3 MeV	440.25	113.84	11.80	589.99	426.82	63.21

### 3.3. Energía de $^{13}\text{C}(d,p)^{14}\text{C}$

Las dos cantidades más importantes en cuanto a las consideraciones energéticas al evaluar una reacción nuclear son:

- Energía umbral  $E_{thr}$
- Energía de excitación  $E_{ex}$

Asimismo, como se enunció en la sección 2.2.1, al analizar una reacción nuclear deben cumplirse algunas leyes de conservación, en particular, la ley de la conservación de la energía y momento lineal, es útil para relacionar la energía medible de los productos de

una reacción con la energía conocida y controlada del proyectil. Por ello, podemos utilizar la energía medida de la partícula eyectada  $b$  para deducir la energía de excitación de los estados de  $Y$  o de la diferencia de masa entre  $X$  y  $Y$ .

La conservación de la energía relativista total en una reacción nuclear básica se escribe

$$m_X c^2 + K_X + m_a c^2 + K_a = m_Y c^2 + K_Y + m_b c^2 + K_b \quad (3.7)$$

donde  $K_{X,a,b,Y}$  y  $m_{X,a,b,Y}$  son la energía cinética y la masa de  $X, a, b$  y  $Y$ , respectivamente.

Para la energía cinética, podemos utilizar la aproximación no relativista,  $\frac{1}{2}mv^2$ , a bajas energías, reescribiendo la ecuación anterior (3.7) como:

$$m_X c^2 + \frac{1}{2}m_X v_X^2 + m_a c^2 + \frac{1}{2}m_a v_a^2 = m_Y c^2 + \frac{1}{2}m_Y v_Y^2 + m_b c^2 + \frac{1}{2}m_b v_b^2 \quad (3.8)$$

donde  $\frac{1}{2}m_X v_X^2 = 0$  pues el blanco  $X$  se encuentra en reposo en el sistema de laboratorio.

### 3.3.1. Valor $Q$

Para definir la energía umbral, debemos antes hablar del valor  $Q$  de una reacción nuclear, que se define como la diferencia entre la suma de las masas de los reactivos iniciales,  $m_0$ , y la suma de las masas de los productos finales,  $m_f$ , en unidades de energía (generalmente MeV), como se describe en la Ecuación 3.9, que a su vez corresponde también a la diferencia entre las energías de enlace de los núcleos, debido a la conservación de nucleones en una reacción nuclear. [6]

$$\begin{aligned} Q &= (m_0 - m_f)c^2 \\ &= (m_X + m_a) - (m_Y + m_b)c^2 \end{aligned} \quad (3.9)$$

$$\begin{aligned} Q &= (K_f - K_0) \\ &= K_Y + K_b - K_X - K_a \end{aligned} \quad (3.10)$$

El valor  $Q$  puede ser positivo, negativo o cero:

- Si  $Q > 0$  ( $m_0 > m_f$  o  $K_f > K_0$ ) la reacción es exoérgica o exotérmica, caso en el que la masa nuclear o la energía de enlace es liberada como energía cinética de los productos finales.
- Cuando  $Q < 0$  ( $m_0 < m_f$  o  $K_f < K_0$ ) la reacción es endoérgica o endotérmica, y la energía cinética inicial es convertida a masa nuclear o energía de enlace.

### 3.3.2. Energía umbral

Para las reacciones endotérmicas ( $Q < 0$ ), hay una energía mínima necesaria, llamada energía umbral (*threshold*),  $K_{thr}$ , que debe tener el proyectil para satisfacer la conservación de masa, energía y momento en una reacción nuclear para que pueda llevarse a cabo y así poder formar productos en su estado base, con energía cinética  $K_{thr} = 0$  (Ecuación ??).

Para encontrar el valor de  $K_{thr}$  debemos tomar la velocidad del sistema en el centro de masa,  $v_{cm}$ , que para el sistema de dos partículas, con el blanco en reposo, resulta:

$$v_{cm} = \frac{m_a}{m_a + m_X} v_a \quad (3.11)$$

Y entonces, en el sistema del centro de masa, tenemos que la energía umbral es:

$$K_{thr} = K_{b,cm} + K_{Y,cm} = 0 \quad (3.12)$$

$$\Rightarrow Q = -(K_{a,cm} + K_{X,cm}) \quad (3.13)$$

$$= - \left[ \frac{1}{2} m_a (v_a - v_{cm})^2 + \frac{1}{2} m_X v_{cm}^2 \right] \quad (3.14)$$

que utilizando la ecuación (3.11), (3.13) puede verse como

$$\begin{aligned} -Q &= \frac{1}{2} m_a \left( 1 - \frac{m_a}{m_a + m_X} \right)^2 v_a^2 + \frac{1}{2} m_X \left( \frac{m_a}{m_a + m_X} \right)^2 v_a^2 \\ &= \frac{1}{2} m_a \left( \frac{m_a}{m_a + m_X} \right)^2 v_a^2 + \frac{1}{2} m_X \left( \frac{m_a}{m_a + m_X} \right)^2 v_a^2 \\ &= \frac{1}{2} m_a v_a^2 \left[ \frac{m_X^2}{(m_a + m_X)^2} + \frac{m_a m_X}{(m_a + m_X)^2} \right] \end{aligned}$$

donde  $\frac{1}{2} m_a v_a^2 = K_{th}$

La energía umbral resulta

$$\begin{aligned}
 K_{th} &= -Q \left[ \frac{(m_a + m_A)^2}{m_X^2 + m_X m_a} \right] \\
 &= -Q \left( \frac{m_X + m_a}{m_X} \right) \\
 &= -Q \left( 1 + \frac{m_a}{m_X} \right)
 \end{aligned} \tag{3.15}$$

Para conocer la energía del centro de masa en términos del sistema del laboratorio:

$$\begin{aligned}
 K_{cm} &= \frac{1}{2}(m_a + m_X)v_{cm}^2 \\
 &= \frac{1}{2}(m_a + m_X) \left( \frac{m_a}{m_X + m_a} \right)^2 v_a^2 \\
 &= \frac{1}{2}(m_a v_a^2) \left( \frac{m_a}{m_X + m_a} \right) \\
 &= K_{lab} \left( \frac{m_a}{m_X + m_a} \right)
 \end{aligned} \tag{3.16}$$

Los valores  $Q$  de los canales de reacción para  $^{12}\text{C}(\text{d}, \text{p})$  y  $^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})$  se muestran en la Tabla 3.3 y visto de otra forma, en la Figura (3.5)

Tabla 3.3: Valores  $Q$  para los canales de reacción de  $^{12}\text{C}(\text{d}, \text{p})$  y  $^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})$

Canal de salida para $^{12}\text{C} + \text{d}$	Valor $Q$ [MeV]	$K_{thr}$ [1 MeV] <sub>1MeV</sub>	Canal de salida para $^{13}\text{C} + \text{d}$	Valor $Q$ [MeV]	$K_{thr}$ [MeV] <sub>1MeV</sub>
$^{13}\text{C} + \text{p}$	2.7217441	-2.8646012	$^{14}\text{C} + \text{p}$	5.9518643	-6.0851976
$^{13}\text{N} + \text{n}$	-0.281076	0.1382188	$^{14}\text{N} + \text{n}$	5.325994	-5.4593273
$^{14}\text{N} + \gamma$	10.272308	-10.415165	$^{15}\text{N} + \gamma$	16.159287	-16.292620
$^{10}\text{B} + \alpha$	-1.33988	1.1970228	$^{11}\text{B} + \alpha$	5.16793	-5.3012633
			$^{12}\text{C} + \text{t}$	1.3109229	-1.4442562

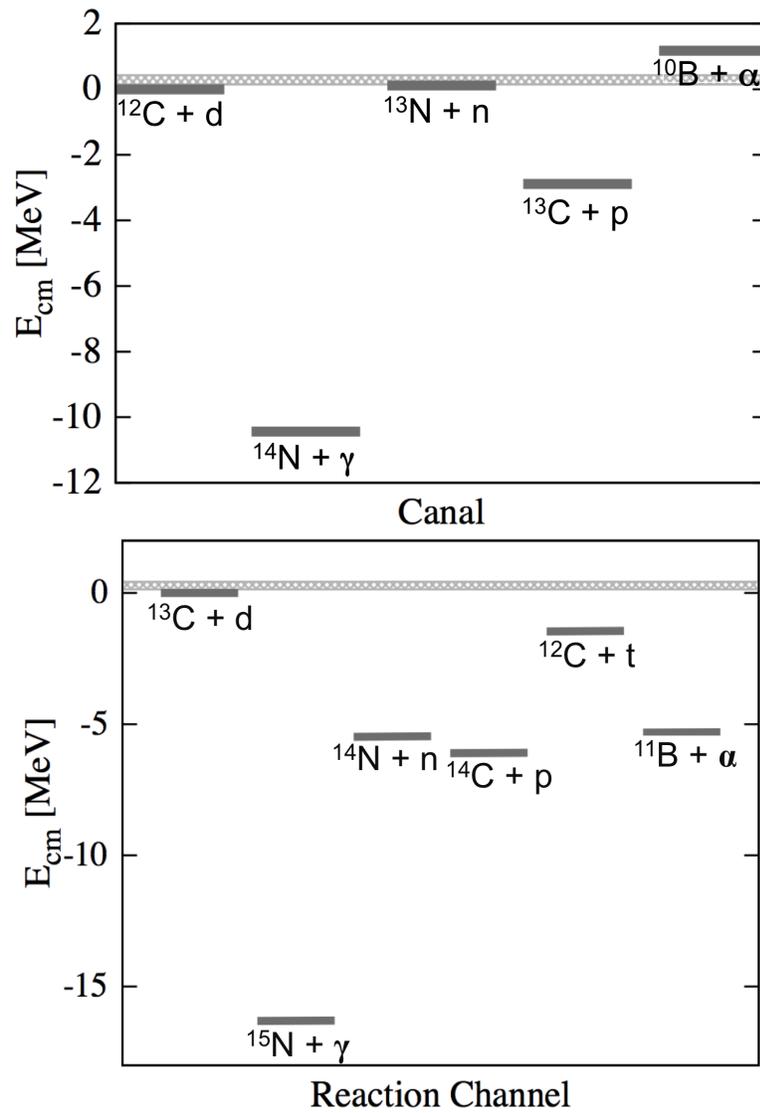


Figura 3.5: Energía umbral en el centro de masa para los canales  $^{12}\text{C} + d$  y  $^{13}\text{C} + d$  a bajas energías.

## Capítulo 4

# Desarrollo Experimental

El propósito inicial de este trabajo era irradiar muestras de grafito natural a energías de deuterio de entre 1 y 3 MeV en el acelerador Van de Graaff de 5.5 MV del Instituto de Física de la UNAM (Figura 4.1) y posteriormente analizarlas en el LEMA por la técnica de AMS [50]. Sin embargo, la irradiación en el acelerador Van de Graaff de 5.5 MV del IFUNAM no fue posible debido a que el acelerador estuvo fuera de servicio, por lo que tuvimos que replantear el experimento de tal manera que pudiese adecuarse a las condiciones de tiempo de haz disponible, corriente y energía del acelerador Tandem Van de Graaff de 6 MV del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares (ININ) (Figura 4.1); como campaña inicial, sólo se irradiaron dos muestras. Dichas irradiaciones se llevaron a cabo a una energía de deuterones de 4 MeV durante 3 horas cada una en tomas de 30 minutos para ambas muestras. El tiempo de irradiación para producir concentraciones óptimas de  $^{14}\text{C}$  fue estimado mediante cálculos de tasa de reacción (ver sección 3.2)



Figura 4.1: Izquierda: Acelerador Van de Graaff de 5.5 MV del Instituto de Física de la UNAM. Derecha: Acelerador Tandem Van de Graaff de 6 MV del ININ, México.

## 4.1. Muestras

Las muestras consistían en cátodos cilíndricos de aluminio como recipientes en cuyo interior se prensó 3.6 mg de grafito pulverizado (Sigma-Aldrich) en el laboratorio de grafitización y preparación de muestras del LEMA-IFUNAM. Dichos cátodos tienen en su base un hueco de 1.3 mm de diámetro (Figura 4.2); que al compactar el grafito permite ser irradiado directamente desde el exterior del cátodo. La geometría de estas muestras es la que requiere el espectrómetro de masas del LEMA, por lo que el utilizarla *ab initio* permite que las muestras sean analizadas directamente después de haber sido irradiadas.

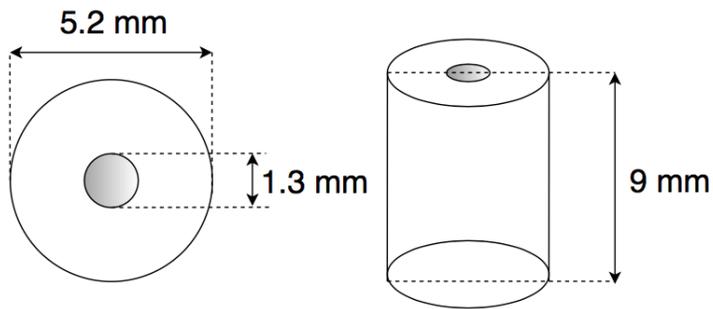


Figura 4.2: Geometría de las muestras. Cátodo de aluminio con centro de grafito.

## 4.2. Arreglo Experimental

En el centro de una cámara de reacción se coloca un portacátodos de nylon (Figura 4.3) con la muestra a irradiar alineada a  $0^\circ$  respecto a la línea de incidencia del haz, el cual pasa por un colimador de 1.85 mm de diámetro que se encuentra a 3.3 cm del blanco. Se ajusta la configuración experimental de retrodispersión (RBS), donde se colocaron dos detectores de estado sólido ( $1000 \mu\text{m}$ ) a  $150^\circ$  hacia atrás, como se muestra en la Figura 4.4, Por la geometría del portacátodos, el blanco queda a 1.3 cm del centro de la cámara, resultando en ángulos efectivos de  $146.5^\circ$  y  $148.6^\circ$  para los detectores 1 y 2 (D1 (175 V) y D2 (80 V)), respectivamente. Dicha cámara se somete a vacío para posteriormente hacer pasar el haz de deuterio por la entrada de la cámara hasta el blanco.

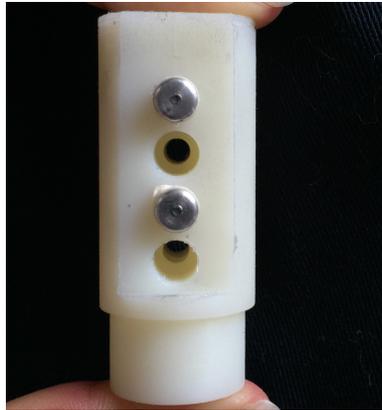


Figura 4.3: Portacátodos de nylon. Desde el exterior de la cámara de dispersión es posible ajustar la altura del portacátodos de tal manera que la muestra a irradiar quede alineada con el haz incidente. La geometría de este portacátodos tiene el propósito de agilizar las irradiaciones, de forma que no se tenga que romper el vacío de la cámara entre muestra y muestra.

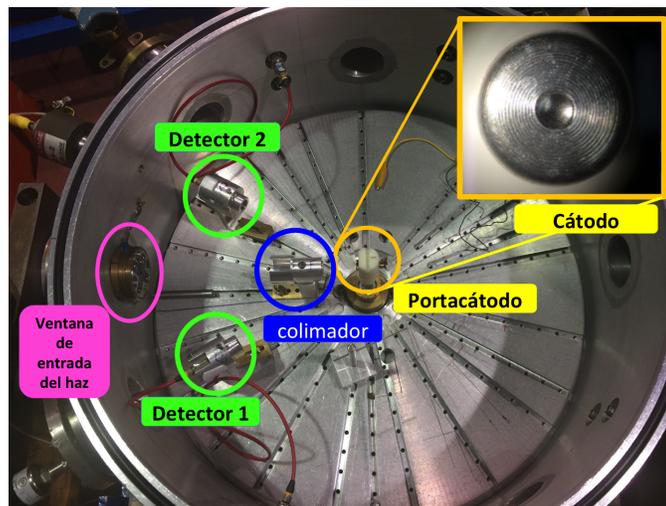


Figura 4.4: Configuración del setup para la irradiación de las muestras y adquisición por RBS

### 4.2.1. Calibración de Energía

La calibración de los detectores se realizó utilizando una fuente triple de alfas (Plutonio-239, Americio-241, Curio-244), cuyas energías son bien conocidas (Tabla 4.1), las cuales se grafican en función de los canales a los cuales se obtuvieron experimentalmente los pulsos correspondientes y se calcula la ecuación general de la recta,  $y = mx + b$ , para obtener el valor de la energía por canal (keV/ch) y el offset de calibración (keV), como se muestra en las Figuras 4.5 y 4.6. Teniendo esto, los datos obtenidos en el experimento pueden ser interpretados y analizados.

Tabla 4.1: Fuente triple de Alfas

Isótopo	Energía [MeV]
$^{239}\text{Pu}$	5.1566
$^{241}\text{Am}$	5.4856
$^{244}\text{Cm}$	5.8048

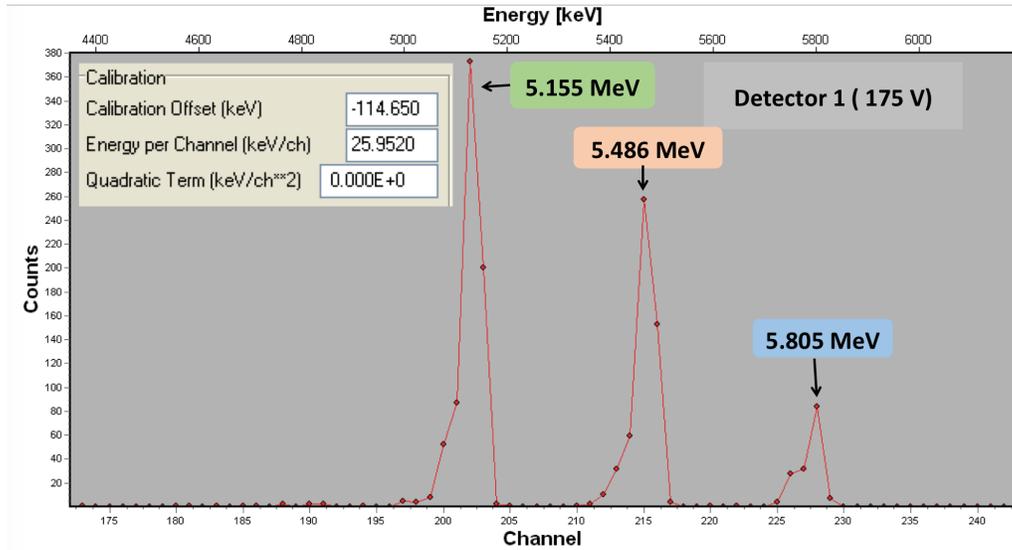


Figura 4.5: Calibración del detector D1 (175 V) utilizando una fuente triple de alfas.

### 4.3. Determinación del número de proyectiles incidentes mediante espectrometría por retrodispersión de Rutherford (RBS)

Como se describió en la sección anterior, se utilizó una configuración de espectrometría por retrodispersión de Rutherford (RBS), que es un método de análisis nuclear de superficies sólidas, el cual consiste en bombardear un blanco con iones en un rango de energía típico entre 0.5 y 4 MeV, y con un detector de estado sólido registrar la energía de los proyectiles retrodispersados. Esta técnica permite determinar cuantitativamente la composición elemental de un material y el perfil de profundidad de elementos individuales sin necesidad de muestras de referencia, además de que es no destructiva, tiene una buena resolución de profundidad (en particular, de 20  $\mu\text{m}$  para protones incidentes) y una sensibilidad del orden de partes por millón para elementos pesados [13].

RBS incluye todos los tipos de dispersión elástica con energías de iones incidentes en el rango de 500 keV hasta varios MeV. Usualmente, protones,  $^4\text{He}$ , y en ocasiones iones de litio son utilizados como proyectiles a ángulos típicos entre 150 y 170 grados (Figura 4.8).

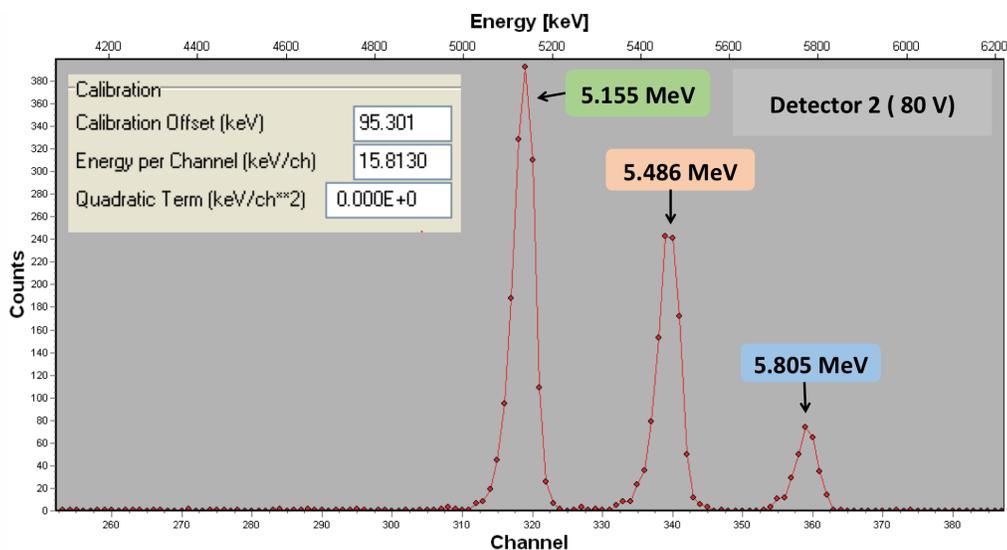


Figura 4.6: Calibración del detector D2 (80 V) utilizando una fuente triple de alfas.



Figura 4.7: Fotografías de las muestras C2 (izquierda) y C3 (derecha) irradiadas vistas con el microscopio.

Mediante esta técnica es posible cuantificar proyectiles incidentes en el blanco por unidad de tiempo.

#### 4.4. Espectrometría de Masas con Aceleradores (AMS)

Después de las irradiaciones con deuterio en el acelerador del ININ, las muestras son llevadas al LEMA para el análisis por AMS donde se determinan las concentraciones relativas de  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  ( $N_{14}/N_{12}$ ). Las muestras fueron observadas en el microscopio (ver Figura 4.7) y posteriormente etiquetadas y colocadas en el carrousel de muestras (Figura 4.9).

La técnica de espectrometría de masas con aceleradores (AMS) se ha ido desarrollando hasta alcanzar alta sensibilidad haciendo uso de aceleradores de iones pesados. Con esta técnica es posible, por ejemplo, detectar concentraciones isotópicas del orden de  $10^{-16}$  o cantidades de  $10^5$  átomos en muestras de miligramos [21]. Esta técnica es aplicada principalmente para datación por  $^{14}\text{C}$  u otros usos en disciplinas como geología, geofísica,

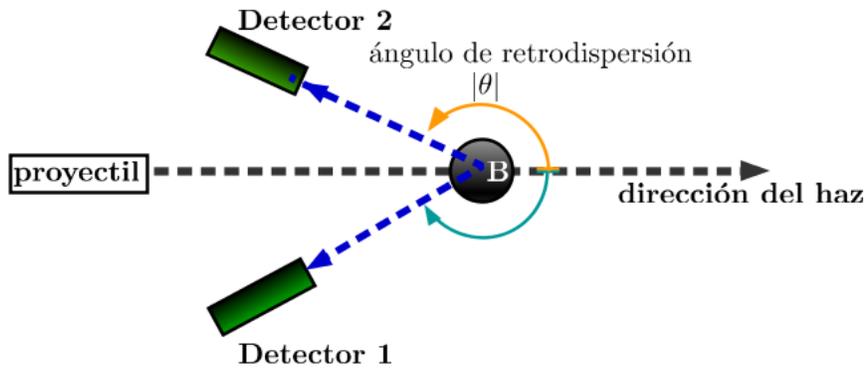


Figura 4.8: Diagrama de cinemática de RBS.

arqueología, arte, ciencias forenses, pero también en astrofísica nuclear y física nuclear. En física nuclear, el uso de AMS resulta altamente útil para la determinación del número de isótopos provenientes de una reacción nuclear cuando es difícil aplicar técnicas más convencionales para medir la sección eficaz.

Los principios iniciales de AMS fueron establecidos en 1939 utilizando un ciclotrón. Fue hasta 1977 que, debido a la inestabilidad del ciclotrón y la dificultad que había para producir ciertos iones, se cambió por un acelerador tandem electrostático pues resultaba particularmente adecuado para las mediciones de espectrometría de masas del  $^{14}\text{C}$  [22].

La ventaja particular que tiene la técnica de AMS es que la sección eficaz es determinada solamente por la medida de las concentraciones relativas de los isótopos, la cual no depende de la masa de la muestra ni de las propiedades de decaimiento del núcleo producido, además de que ésta no sufre de efectos de interferencia molecular porque las moléculas son desintegradas por completo en el *stripper*<sup>1</sup> de gas del acelerador tandem [18]. Otras ventajas son que pueden producir iones negativos en la fuente de iones y que el sistema de análisis puede utilizar técnicas de  $\Delta E \cdot E$  para determinar la carga y la masa del ion, y también puede usar técnicas de rango diferencial para reducir o detener la transmisión de isótopos de número atómico grande. Estas técnicas en combinación con seleccionadores de velocidad o momentum utilizando campos magnéticos y eléctricos, da al AMS una ventaja considerable ante los contadores de decaimiento radioactivo para fechar materiales.

El principio general de la medición de la sección eficaz de una reacción nuclear por la técnica de AMS consiste en el cálculo de la concentración relativa de los isótopos del núcleo producido (sección 3.1.2).

Para el cálculo del tiempo de irradiación necesario, se tomaron en cuenta los valores de las secciones eficaces totales teóricas en ENDF, para todos los canales de salida disponibles en el intervalo de 0 a 10 MeV para el canal  $^{13}\text{C} + \text{d}$ .

Las reacciones nucleares que involucran haces de deuterio generalmente proporcionan

<sup>1</sup>ver sección 4.4.2



Figura 4.9: Carrusel donde se colocan las muestras a analizar por AMS.

buena sensibilidad para análisis de elementos ligeros (NRA), técnica complementaria a RBS, debido a que el deuterio suele producir muchas reacciones nucleares de bajo valor  $Q$  positivo con elementos ligeros [23].

#### 4.4.1. Laboratorio de Espectrometría de Masas con Aceleradores (LEMA-UNAM)

En el año 2013, en el Instituto de Física de la UNAM se concluyó la instalación del Laboratorio de Espectrometría de Masas con Aceleradores (LEMA), el cual además cuenta con un equipo de grafitización computarizada (AGEI II), que en conjunto, conforman el primer laboratorio del tipo AMS en Latinoamérica.

#### 4.4.2. Esquema general de un sistema de AMS

Un sistema de AMS, o bien, un separador isotópico se compone básicamente de cinco partes. La primera es una fuente de aniones (iones negativos) capaz de producir grandes corrientes a partir de una secuencia de muestras y selección isobárica. Después le sigue un sistema de espectrometría de masas de baja energía (varias decenas de keV) para analizar aniones provenientes de la fuente de iones. En la tercera parte, se lleva a cabo el proceso de *stripping*, que consiste en que, mediante el arranque de electrones, los haces de iones negativos extraídos son inyectados al acelerador tandem, ya sea de forma secuencial o simultánea, para cambiarlos por iones positivos mientras los isóbaros son desintegrados a energías de MeV en el canal de extracción o *stripper* en el centro del acelerador. Posteriormente, después de aumentar la energía de los iones positivos, un sistema de espectrometría de masas formado por analizadores eléctricos o magnéticos es añadido con el objetivo de eliminar interferencias de los iones poco abundantes. Y finalmente, un detector gaseoso es usado para contar e identificar los iones de interés de



Figura 4.10: Instalación AMS del Laboratorio de Espectrometría de Masas con Aceleradores (LEMA).

mayor energía. El LEMA-UNAM sigue este mismo esquema y puede especificarse más detalladamente de la siguiente forma (Figura 4.11) [14]:

- La fuente de iones SO110B. Es una fuente compacta de iones blindada; sus paredes metálicas garantizan un entorno virtualmente libre de radiación. Para evitar contaminación, las muestras se almacenan en un carrusel de 50 posiciones y sólo la muestra a ser medida es transportada por una bayoneta hacia la cámara de fuente de iones (ver Figura 4.12), donde el Cs se ioniza en el ionizador esférico, que se calienta por arriba de los  $1000^{\circ}\text{C}$  y es enfocado hacia el cátodo, y se produce la erosión catódica o *sputtering*, proceso que consiste en arrancar las partículas de la muestra y ionizarlas negativamente. Posteriormente, los átomos negativos son atraídos por el cono de extracción, formando el haz de interés.
- El espectrómetro de masas de baja energía cuenta con un analizador electrostático a  $54^{\circ}$  y uno magnético a  $90^{\circ}$  con un amortiguador de 100 Hz para inyección secuencial rápida de isótopos de distintas masas (selector de masas).
- El acelerador electrostático tandem Tandetron de 1 MV fabricado por High Voltage Engineering Europa, B.V. (HVE)
- El espectrómetro de masas de alta energía contiene un imán analizador a  $90^{\circ}$  y cajas de Faraday para la medición de isótopos estables ( $^{12}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}$ ,  $^9\text{Be}$ ,  $^{127}\text{I}$ )
- El sistema de detección está compuesto por un analizador electrostático de  $120^{\circ}$  y una cámara de gas de ionización para identificar ciertos isótopos escasos ( $^{14}\text{C}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{129}\text{I}$  e isótopos de Pu)

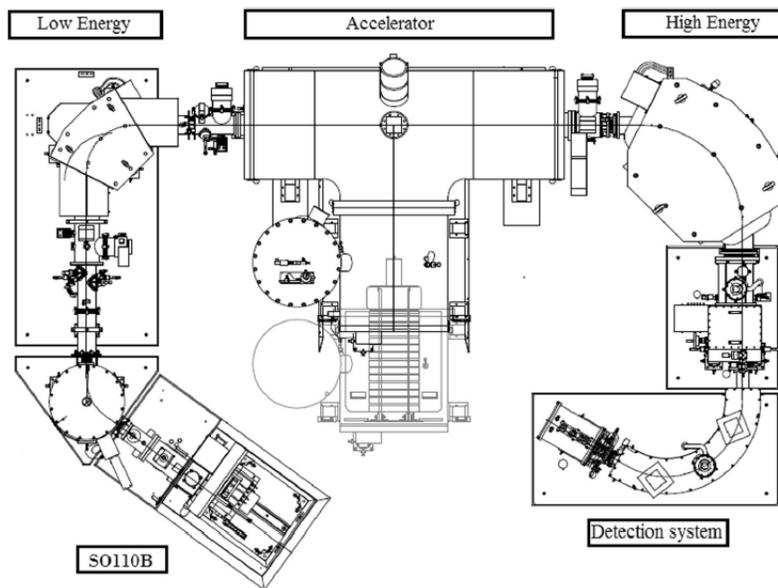


Figura 4.11: Esquema del Laboratorio de Espectrometría de Masas con Aceleradores del Instituto de Física, UNAM.

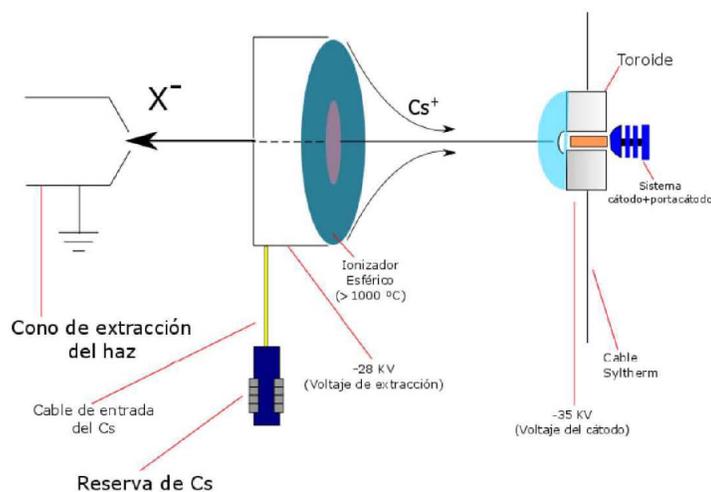


Figura 4.12: Esquema del la fuente de iones. Tomado de [15]

## 4.5. Acelerador Tandem Van de Graaff

Los primeros aceleradores de partículas fueron construidos por los físicos Ernest Walton (1903-1995) y John Cockcroft (1897-1967) utilizando el principio de aceleración electrostática. Los aceleradores electrostáticos son ideales para estudiar reacciones nucleares y estructura nuclear pues proporcionan una amplia variedad de haces estables, desde protones hasta iones muy pesados, con ciclos de empleo largos y de alta intensidad. El primer generador electrostático utilizado para acelerar un haz nuclear fue reportado por su creador, el físico Robert J. Van de Graaff en 1931, pero fue hasta la década de 1950 que se crearon los

primeros aceleradores electrostáticos reales, de tipo tandem y producidos por HVEC [36].

El acelerador Tandem Van de Graaff funciona a partir de acelerar una partícula cargada por medio de una diferencia de potencial constante. Si una partícula de carga  $q$  y masa  $m$  se mueve a través de una diferencia de potencial  $V$ , entonces gana energía cinética, de la forma:

$$\frac{mv^2}{2} = qV \quad (4.1)$$

Para producir los muy altos voltajes necesarios, en el generador de Van de Graaff se transporta la carga  $Q$  a una de las terminales de un condensador  $C$ , y el voltaje resultante:

$$V = \frac{Q}{C} \quad (4.2)$$

es utilizado para acelerar los iones. Los elementos principales de un generador Van de Graaff se muestran en la Figura 4.13. Consiste en una cinta móvil de material aislante que corre entre dos poleas que se encuentran en los extremos de una columna aislada. La polea inferior está aterrizada y conectada a una fuente de DC por medio de un peine metálico, que se mantiene a una diferencia de potencial constante (20-30 kV) con la polea. La cinta transporta la carga hacia una terminal de alto voltaje, la cual es una campana metálica hueca que se encuentra cubriendo la polea superior a la cual está conectada por medio de un segundo peine metálico. La carga eléctrica se acumula en la superficie exterior de la campana. El voltaje resultante está en función del diámetro de la campana, que se comporta como un capacitor, en cuya superficie se acumula carga. Los iones positivos (protones, deuterones, etc) son producidos en la fuente de iones y son acelerados al vacío dentro de la columna. El haz producido en la columna es usualmente deflectado por un imán hacia el blanco [37]. Si el sistema completo se coloca dentro de un tanque a alta presión llenado con un gas inerte, se pueden alcanzar voltajes de hasta 20 millones de volts [38].

En los aceleradores electrostáticos tandem (Figura 4.14), se puede aprovechar el doble del voltaje máximo. En estos sistemas, la terminal se encuentra a la mitad del tanque de alta presión; la fuente de iones se encuentra en uno de los extremos y produce iones negativos, como  $H^-$ , por ejemplo. Estos iones son acelerados hacia la terminal central donde les son arrancados sus dos electrones y posteriormente, son acelerados lejos de la terminal y vuelven a adquirir energía. La ganancia total de energía es entonces el doble que la de un sistema de una sola etapa [37]. La Figura 4.1 muestra el acelerador Tandem Van de Graaff de 6 MV del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares en México.

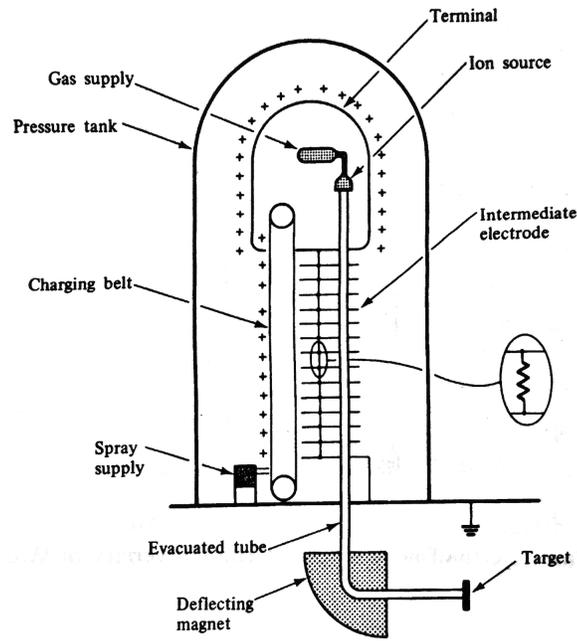


Figura 4.13: Diagrama de un generador de Van de Graaff. Tomado de [37].

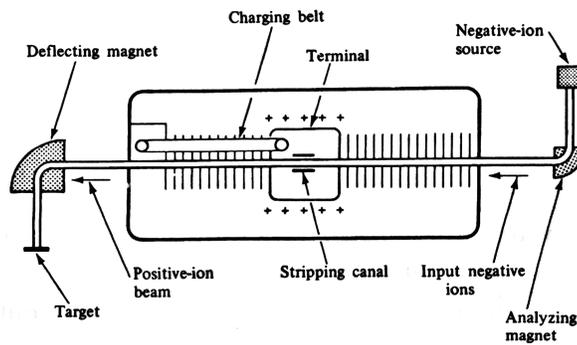


Figura 4.14: Esquema de un acelerador Tandem Van de Graaff. Tomando de [37].



# Capítulo 5

## Resultados: Análisis e Interpretación

### 5.1. Datos

Para las irradiaciones con deuterio de cada muestra se registraron los parámetros que se muestran en la Tabla (5.1), donde el número (No.) de cuentas se refiere al número de partículas detectadas en cada toma (RUN), la corriente corresponde a la del haz de deuterio y la carga a la de los iones del mismo.

#### 5.1.1. Análisis RBS por SIMNRA

Para el análisis de retrodispersión, se utilizó SIMNRA [39], un programa para la simulación de retrodispersión y análisis de reacciones nucleares y de detección de elásticos en retroceso, el cual incluye medidas experimentales de secciones eficaces de distintas reacciones nucleares, tanto de Rutherford como inelásticas, que obtiene directamente de la biblioteca IBANDL [41]. Por medio de SIMNRA se puede calcular cualquier combinación entre blancos e iones, incluyendo iones pesados, así como cualquier geometría.

Uno de los objetivos principales de utilizar SIMNRA, es que al hacer una simulación que se ajuste lo mejor posible a los datos obtenidos, podamos obtener una aproximación del flujo de deuterones  $\phi$ , es decir, el número de partículas incidentes en el blanco. Para ello debe tomarse en cuenta el área irradiada de la superficie de la muestra ( $2.688 \text{ mm}^2$ ), que corresponde al área del colimador del haz (.925 mm de radio). En la Figura 5.1 se muestran en amarillo distintas posibilidades de la zona irradiada de la muestra, en 5.1a) se aprecia el caso ideal, en el que se considera una alineación precisa del haz, mientras que en b), c), d), e) se muestran otros posibles casos en que consideramos que el sistema de alineación no era tan preciso.

Asimismo, se estudia la composición de los blancos, que en principio se conforman por el aluminio del cátodo contenedor y el grafito, sin embargo también deben considerarse los

Tabla 5.1: Datos de las medidas de las muestras C2 y C3 a 4 MeV

Muestra C2				
Toma	tiempo [min]	No. de Cuentas	Corriente [nA]	Carga [ $\mu C$ ]
RUN 0	8	9229	400	184.58
RUN 1	63	146542	650	2930.84
RUN 2	30	65727	700	1314.54
RUN 3	30	75448	700	1508.96
RUN 4	30	72892	800	1457.84
RUN 5	30	55792	700	1115.84
Total	191	425630		8512.60

C3				
Toma	tiempo [min]	No. de Cuentas	Corriente [nA]	Carga [ $\mu C$ ]
RUN 1	30	51929	600	1038.58
RUN 2	30	43446	480	868.92
RUN 3	30	41548	350-640	$\sim 830.96$
RUN 4	31	33617	300-500	$\sim 672.34$
RUN 5	30	36464	400	729.28
RUN 6	32	45001	450	900.02
Total	183	252005		5040.10

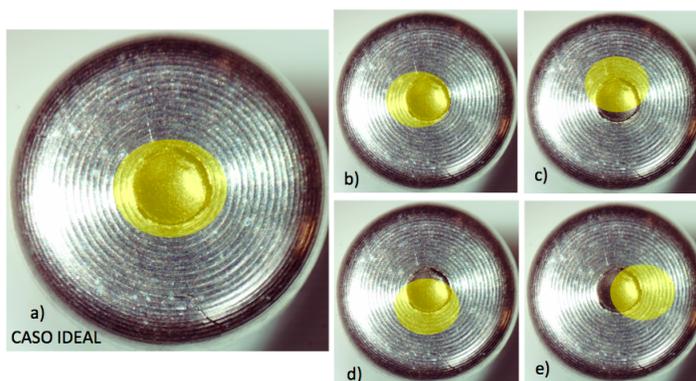


Figura 5.1: Ilustración de la incidencia del haz de deuterio sobre la muestra, donde el círculo amarillo representa el haz de 1.85 mm de diámetro después de ser colimado. a) Muestra el caso ideal. b), c), d) y e) ejemplifican otros posibles casos.

contaminantes, que en el caso del grafito, debido a su propiedad porosa, típicamente el contaminante es el  $H_2O$ , que para el análisis RBS sólo se toma en cuenta la contribución del oxígeno, pues el hidrógeno,  $^1H$  ( $A = 1$ ), es más ligero que el deuterio,  $^2H$  ( $A = 2$ ), por lo que no es posible ver su retrodispersión. El segundo contaminante que se tomó en cuenta fue el nitrógeno. A partir de esto, utilizando distintas bibliotecas y herramientas como

ISONAV [42], ENDF [43] y QCalc [49], se estudiaron las posibles reacciones nucleares que pudiesen llevarse a cabo de forma paralela, es decir, los canales de reacción abiertos a la energía de incidencia (4 MeV) con valores  $Q$  positivos, los cuales se muestran en la Tabla 5.2; posteriormente, se buscaron en IBANDL los datos experimentales de estas reacciones nucleares.

Tabla 5.2: Canales de reacción abiertos a 4 MeV para  $^{12}\text{C} + \text{d}$ ,  $^{13}\text{C} + \text{d}$ ,  $^{27}\text{Al} + \text{d}$ ,  $^{16}\text{O} + \text{d}$  y  $^{14}\text{N} + \text{d}$ .

$^{12}\text{C} + \text{d}$	$^{13}\text{C} + \text{d}$	$^{27}\text{Al} + \text{d}$	$^{16}\text{O} + \text{d}$	$^{14}\text{N} + \text{d}$
$^{14}\text{N} + \gamma$	$^{14}\text{C} + \text{p}$	$^{29}\text{Si} + \gamma$	$^{18}\text{F} + \gamma$	$^{16}\text{O} + \gamma$
$^{13}\text{C} + \text{p}$	$^{14}\text{N} + \text{n}$	$^{28}\text{Si} + \text{n}$	$^{17}\text{O} + \text{p}$	$^{12}\text{C} + \alpha$
$^{10}\text{B} + \alpha$	$^{15}\text{N} + \gamma$	$^{25}\text{Mg} + \alpha$	$^{14}\text{N} + \alpha$	$^{15}\text{N} + \text{p}$
	$^{11}\text{B} + \alpha$	$^{28}\text{Al} + \text{p}$		$^{15}\text{O} + \text{n}$
	$^{12}\text{C} + \text{t}$			

En la Figura (5.2) se muestra uno de los espectros analizados. Se pudieron identificar los canales elásticos  $^{12}\text{C}(\text{d},\text{d})^{12}\text{C}$ ,  $^{27}\text{Al}(\text{d},\text{d})^{27}\text{Al}$ ,  $^{16}\text{O}(\text{d},\text{d})^{16}\text{O}$  y  $^{14}\text{N}(\text{d},\text{d})^{14}\text{N}$ .

La contribución de  $^{12}\text{C}(\text{d},\text{p})^{13}\text{C}$  resultó de gran importancia pues su sección eficaz ha sido ampliamente medida, y pudimos identificarla con las mediciones de Kashy et al. a  $165^\circ$  en el rango de energías de incidencia  $E_d = [802-1956]$  keV [48], Jarjis et al. a  $135^\circ$  [44] en  $E_d = [2700-2960]$  keV y para  $E_d = [3211-4333]$  keV a  $150^\circ$  medidas por Bonner et al. [45].

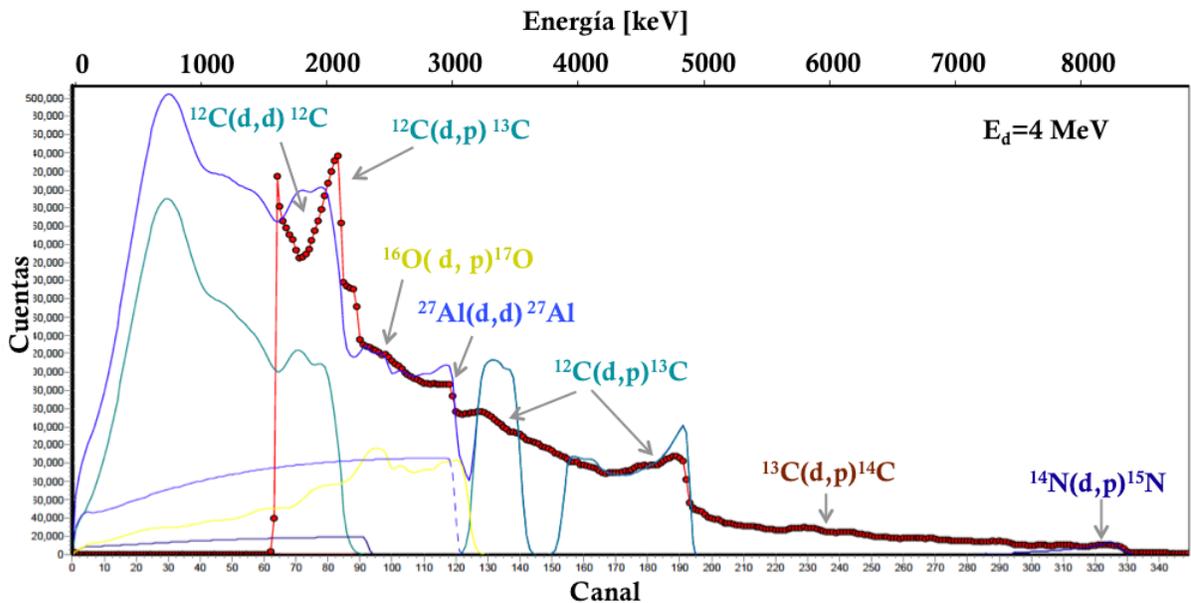


Figura 5.2: Espectro de retrodispersión obtenido a energías de bombardeo de  $E_d = 4\text{MeV}$  donde pueden apreciarse ciertas contribuciones de algunas reacciones nucleares presentes

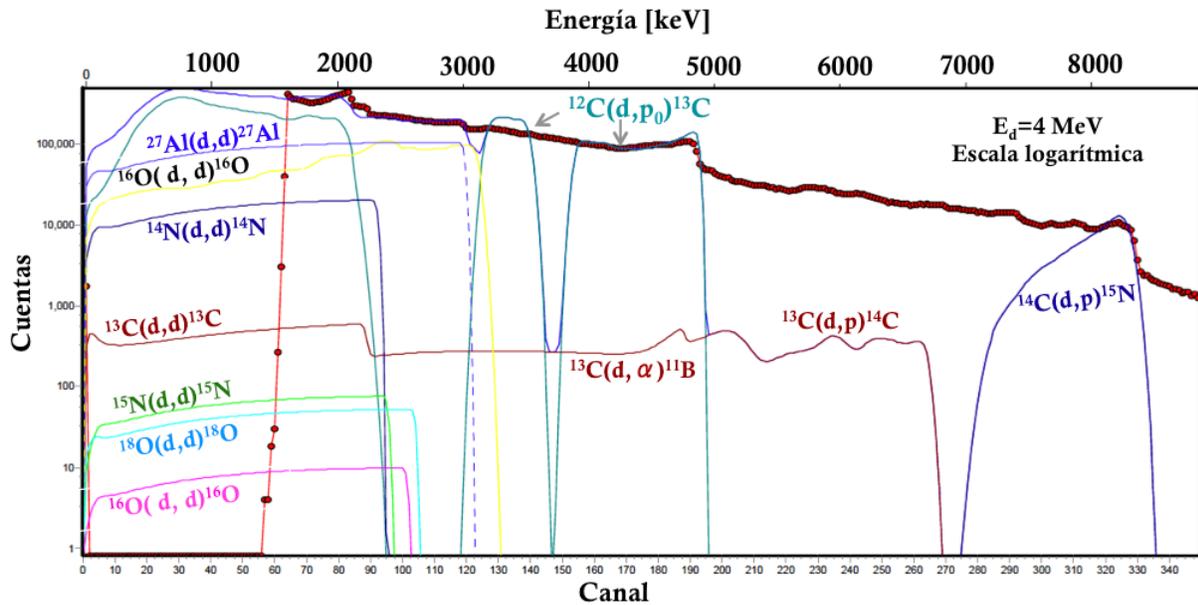


Figura 5.3: Espectro de retrodispersión en escala logarítmica a  $E_d = 4\text{MeV}$  donde pueden observarse otras contribuciones.

La reacción  $^{13}\text{C}(d,p)^{14}\text{C}$  fue identificada en la escala logarítmica (Figura 5.3) con los datos de Marion y Weber, cuyas mediciones son para  $135^\circ$  por lo cual la altura no alcanza ajustarse con la de nuestros datos experimentales. A esta misma escala se identificó  $^{13}\text{C}(d,\alpha)^{11}\text{B}$  con los datos de B. B. Marsh [46].

Debido a que no todas las mediciones de las secciones eficaces utilizadas para nuestra simulación están medidas a  $150^\circ$  o en los rangos de energía de interés, el ajuste de éstas con nuestros datos no resulta preciso, por lo que se ajustó respecto a aquellos canales elásticos claramente identificables, como  $^{27}\text{Al}(d,d)^{27}\text{Al}$ , y respecto a las reacciones nucleares cuyas secciones eficaces totales fueron medidas a  $150^\circ$  o muy próximo a este ángulo, como  $^{14}\text{N}(d,p)^{15}\text{N}$  [47],  $^{13}\text{C}(d,\alpha)^{11}\text{B}$  ( $154^\circ$ ), y la contribución de  $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$  de Bonner et al., donde la resonancia de interés podemos identificar en la Figura (5.2) entre 4000 y 5000 keV.

### 5.1.2. Número de proyectiles

Como se mencionó en la sección anterior (5.1.1), uno de los objetivos es conocer el número de proyectiles incidentes en el blanco. Por lo que teniendo una buena aproximación de la composición elemental del blanco y de las reacciones nucleares presentes, SIMNRA resulta ser una buena herramienta para calcular el número de partículas incidentes pues éste puede calcular el número de partículas detectadas por estereadian (part. \*sr).

Para conocer el número de partículas incidentes en el carbono, primeramente debemos obtener el total de proyectiles incidentes en el blanco a la par de determinar las concen-

tracciones elementales del mismo. Para lo cual necesitamos tener cierta información de los detectores, como el ángulo sólido.

### Ángulo sólido

Para obtener el número neto de proyectiles incidentes, se debe calcular el ángulo sólido ( $\Omega$ ) cubierto por cada detector, que en principio es el ángulo en dos dimensiones en un espacio tridimensional, para lo cual deben medirse las distancias  $d$  del blanco a cada detector, así como las áreas de sus respectivos colimadores de radio  $r$ , ver ecuación (5.1) [40]. En la Tabla 5.3 se muestran los valores medidos.

$$\Omega = 2\pi \left( 1 - \frac{d}{\sqrt{d^2 + r^2}} \right) \quad (5.1)$$

Ecuación para la cual suponemos que el radio de la fuente  $r_{source}$  es mucho menor que el radio  $r$  del detector ( $r_{source} \ll r$ ), *i.e.* que la fuente es puntual.

Tabla 5.3: Ángulos sólidos de los detectores

Detector	Radio [cm]	Área [cm <sup>2</sup> ]	Distancia al blanco [cm]	Distancia al blanco [cm] <sup>2</sup>	$\Omega$ [sr]
<b>D1</b>	.25	0.19	17.8	316.84	<b>6.20E-04</b>
<b>D2</b>	.62	1.20	18.1	327.61	<b>3.69E-03</b>

Como puede observarse en la Tabla (5.3), el área del colimador del detector D2 es 6 veces mayor que el del D1, lo cual en realidad fue un error al montar el dispositivo, pues no nos percatamos de que el detector D2 en sí no tenía colimador, sino que simplemente era la base del mismo, que tenía el radio indicado para el detector D2 en esta misma tabla, como se puede apreciar en la Figura (5.1.2).

Conociendo entonces el ángulo sólido y el número de partículas por esteradian, calculamos el número de partículas para ambas muestras usando la Ecuación (5.2), obteniendo como resultado las Tablas (5.4) y (5.5), en cuyas dos primeras columnas se muestran los valores obtenidos directamente de SIMNRA en  $part * sr$ , y las dos últimas el número de partículas.

$$no. de partículas = \frac{partículas * sr}{\Omega} \quad (5.2)$$

A su vez, al número de partículas se le hizo una corrección por el factor  $t_{real}/t_{vivo}$ , resultados que se muestran en la Tabla (5.6)

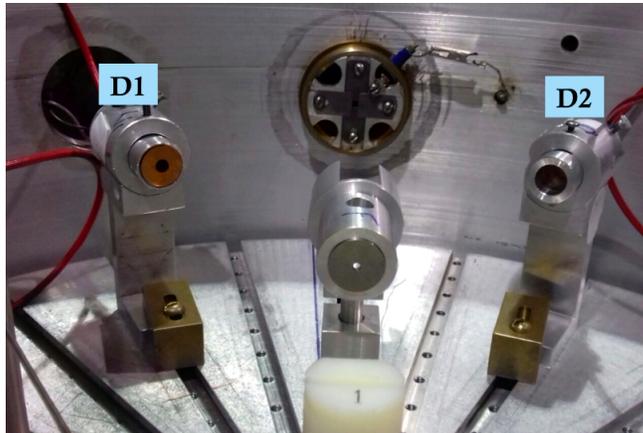


Figura 5.4: Vista del set up, donde puede apreciarse la diferencia en el radio de los colimadores, donde el detector D1 se encuentra del lado izquierdo y el D2 del lado derecho.

Tabla 5.4: Número total de partículas detectadas para la muestra C2 calculado a partir del análisis en SIMNRA

Muestra C2				
Toma	Partículas*sr Detector 1	Partículas*sr Detector 2	Número de partículas D1	Número de partículas D2
RUN 1-C2	3.90E+13	2.80E+13	<b>6.29E+16</b>	<b>7.59E+15</b>
RUN 2-C2	1.77E+13	1.25E+13	<b>2.85E+16</b>	<b>3.39E+15</b>
RUN 3-C2	2.08E+13	1.52E+13	<b>3.35E+16</b>	<b>4.32E+15</b>
RUN 4-C2	2.00E+13	1.43E+13	<b>3.23E+16</b>	<b>3.88E+15</b>
RUN 5-C2	1.70E+13	1.21E+13	<b>2.74E+16</b>	<b>3.28E+15</b>
<b>Total</b>	9.00E+13	7.17E+13	<b>1.46E+17</b>	<b>2.44E+16</b>

### Eficiencia de los detectores

Sabemos que la eficiencia  $\epsilon$  de un detector es, en principio, el cociente del número de partículas detectadas,  $N_{det}$ , entre el número de partículas emitidas,  $N_{em}$ :

$$\epsilon = \frac{N_{det}}{N_{em}} \quad (5.3)$$

El número de partículas emitidas por la fuente,  $N_{em}$ , es simplemente el producto de la carga total del haz  $q$  en Coulombs por su estado de carga por el número de electrones que hay en 1 Coulomb (  $1 \text{ C} = 6.2415 \text{E} + 18 \text{ e}$  ).

Por otro lado,  $N_{det}$  se obtiene calculando el producto del número de cuentas o de partículas detectadas en un pico completo de energía de un espectro (FEP, por sus siglas en inglés, *full energy peak*) por el cociente entre el tiempo real de medición y el tiempo vivo del detector,

Tabla 5.5: Número total de partículas incidentes en el blanco para la muestra C3 calculado a partir del análisis en SIMNRA.

Muestra C3				
Toma	Partículas*sr Detector 1	Partículas*sr Detector 2	Número de partículas D1	N'umero de partículas D2
RUN 1-C3	1.10E+13	1.00E+13	1.77E+16	2.71E+15
RUN 2-C3	1.30E+13	8.40E+12	2.10E+16	2.28E+15
RUN 3-C3	1.25E+13	8.25E+12	2.02E+16	2.24E+15
RUN 4-C3	1.10E+13	6.70E+12	1.77E+16	1.82E+15
RUN 5-C3	1.10E+13	7.30E+12	1.77E+16	1.98E+15
RUN 5-C3	1.38E+13	9.00E+12	2.23E+16	2.44E+15
<b>Total</b>	7.23E+13	5.50E+13	1.17E+17	1.49E+16

Tabla 5.6: Valores del número de partículas para C2 y C3 a partir de las tablas (5.4) y (5.5) corregidos por el factor  $t_{real}/t_{vivo}$

Toma	Total de partículas D1	Total de partículas D2
<b>C2</b>	1.70E+17	2.87E+16
<b>C3</b>	1.27E+17	1.64E+16

sin embargo, como nosotros tenemos dos colimadores distintos, se hizo una corrección del número de cuentas por el ángulo sólido, resultando en la Ecuación (5.4), con la cual, obteniendo  $N_{det}$  para cada detector, puede calcularse la eficiencia relativa  $\epsilon_{rel}$  entre ellos (Ecuación 5.5).

$$N_{det} = \frac{no. \text{ cuentas}_{FEP}}{\Omega} \cdot \frac{t_{real}}{t_{vivo}} \quad (5.4)$$

$$\epsilon_{rel}(\%) = \frac{N_{det D1}}{N_{det D2}} \cdot 100 \quad (5.5)$$

A partir de esto, calculamos que la eficiencia relativa del detector D2 es de 39% respecto al detector D1.

### Incidencia de proyectiles en carbono

Tomando los valores de la Tabla (5.6) y las concentraciones elementales del blanco, calculamos el número de partículas incidentes en cada elemento presente con el objetivo de conocer el número de proyectiles incidentes en el carbono,  $N_d$  (Tabla 5.7 y Tabla 5.8).

Tabla 5.7: Número de partículas de la muestra C2.

Muestra C2	Concentración	Detector 1 No. partículas	Detector 2 No. partículas
C	31 %	5.28E+16	8.89E+15
Al	35 %	5.96E+16	1.00E+16
O	19 %	3.23E+16	5.45E+15
N	15 %	2.55E+16	4.30E+15
<b>Total</b>	100 %	1.70E+17	2.87E+16

Tabla 5.8: Número de partículas de la muestra C3.

Muestra C3	Concentración	Detector 1 No. partículas	Detector 2 No. partículas
C	32 %	4.08E+16	5.24E+15
Al	38 %	4.84E+16	6.22E+15
O	20 %	2.55E+16	3.28E+15
N	10 %	1.27E+16	1.64E+15
<b>Total</b>	100 %	1.27E+17	1.64E+16

### 5.1.3. Concentraciones relativas

El procedimiento para medir las concentraciones relativas de  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  ( $N_{14}/N_{12}$ ) que se realiza en el separador isotópico del LEMA consiste en que a cada muestra se le realiza un análisis por bloques y en cada bloque se analiza una capa de la muestra por 30 s, proceso que se repite para las siguientes capas de cada muestra hasta sumar un total de 7800 cuentas o 15 bloques. A su vez, para cada bloque se mide varias veces el número de cuentas de  $^{14}\text{C}$ , y de carga, corriente y el tiempo vivo de medición para cada isótopo del carbono,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}$  y  $^{12}\text{C}$ , como se puede observar en la Tabla 5.9, que son los datos medidos para la muestra C3, pero que nos sirven para ejemplificar:

Tabla 5.9: Tabla de los datos que midió el LEMA para la muestra C3

RUN	No. Cuentas <sup>14</sup> C	tiempo total por run [s]	tiempo vivo [s] ( <sup>14</sup> C)	Carga <sup>13</sup> C [C]	tiempo vivo [s] ( <sup>13</sup> C)	Carga <sup>12</sup> C [C]	tiempo vivo <sup>12</sup> C [s]
30	3773	489.453	2.23E+02	9.31E-07	4.03587	7.00161E-05	4.03587
67	4484	489.953	1.79E+02	8.14E-07	4.03587	5.48755E-05	4.03587
104	5252	489.844	1.53E+02	8.44E-07	4.03587	5.39244E-05	4.03587
141	6628	490.547	1.93E+02	8.13E-07	4.03587	5.58474E-05	4.03587
178	8455	297.797	1.30E+02	4.44E-07	2.42152	3.45795E-05	2.4215
215	9317	233.969	1.09E+02	3.07E-07	1.88341	2.44502E-05	1.8834
252	8139	105.703	3.65E+01	1.25E-07	0.80718	1.01660E-05	0.8072
289	7803	73.828	2.49E+01	7.78E-08	0.53812	6.37799E-06	0.5381
326	13655	41.922	1.33E+01	3.54E-08	0.26906	2.90221E-06	0.2691

Para obtener el número total de partículas  $N_{12}$  y  $N_{13}$  de una muestra, datos que no proporciona el LEMA directamente, realizamos el cálculo siguiente para cada run:

$$N_{run\ 12,13} = \frac{q_{12,13}}{s_q \cdot e} \cdot \frac{t_{run}}{t_{vivo\ 12,13}} \quad (5.6)$$

donde  $q_{12,13}$  es la carga medida del <sup>12</sup>C y <sup>13</sup>C respectivamente,  $s_q$  el estado de carga del carbono, que es 2+ para las 4 muestras medidas,  $e$  la carga del electrón,  $t_{run}$  es el tiempo total del run,  $t_{vivo\ 12,13}$  el tiempo vivo, que es el tiempo en que se midió la carga del isótopo correspondiente.

Para el caso de  $N_{run\ 14}$  se hizo la misma corrección en el factor del tiempo respecto al del número de cuentas de <sup>14</sup>C medido por el LEMA:

$$N_{run\ 14} = No.\ cuentas\ ^{14}C \cdot \frac{t_{run}}{t_{vivo\ 14}} \quad (5.7)$$

Para el cálculo de la incertidumbre asociada,  $\Delta N$ , se efectúa:

$$\Delta N_{12,13,14} = \frac{1}{\sqrt{N_{run\ 12,13,14}}} \quad (5.8)$$

Después de efectuar lo anterior, se suman las  $N_{run\ 12,13,14}$  para cada isótopo para obtener el total,  $N_{12,13,14}$ , y se obtiene su incertidumbre asociada a partir de:

$$\Delta f = \sqrt{\frac{\partial f^2}{\partial x} (\Delta x)^2 + \frac{\partial f^2}{\partial y} (\Delta y)^2} \quad (5.9)$$

Si  $f = \frac{N_{14}}{N_{12}}$ , resulta:

$$\Delta f = \Delta \frac{N_{14}}{N_{12}} = \frac{N_{14}}{N_{12}} \sqrt{\left(\frac{\partial N_{14}}{N_{14}}\right)^2 + \left(\frac{\partial N_{12}}{N_{12}}\right)^2} \quad (5.10)$$

Asimismo, de forma independiente al cálculo de la desviación estándar que sistemáticamente realiza el LEMA, nosotros lo calculamos de la siguiente forma:

$$\Delta V' = \sqrt{(\Delta \bar{V})^2 + \left(\frac{\sum_{i=1}^N (\bar{V} - V_i)^2}{N - 1}\right)} \quad (5.11)$$

donde  $\Delta \bar{V}$  es el promedio de los valores de las concentraciones relativas  $N_{14}/N_{12}$  medidas y el segundo término corresponde a la desviación estándar de cada bloque:

$$\delta = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (V_i - V_i')^2}{N - 1}} \quad (5.12)$$

siendo  $V_i'$  los valores parciales medidos antes de obtener el valor promedio de cada bloque  $V_i$ .

Los valores totales de las concentraciones relativas con sus incertidumbres asociadas calculadas, así como el valor de la desviación estándar total  $\Delta V'$ , se muestran en la Tabla 5.10, donde podemos observar que sí hubo producción de  $^{14}\text{C}$  por la clara diferencia en los ordenes de magnitud que hay respecto a las concentraciones relativas de los cátodos irradiados (C2 y C3) con los no irradiados (C4 y C6).

Tabla 5.10: Concentraciones relativas de  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  para distintas muestras.

Muestra		Concentración relativa $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$	Desv. Std. Total $\Delta V'$
<b>C2</b>	<b>irradiado</b>	7.76E-12±9.27E-19	7.75E-11
<b>C3</b>	<b>irradiado</b>	1.53E-12 ± 3.10E-19	9.70E-12
<b>C4</b>	<b>no irradiado</b>	1.46E-13 ± 3.35E-19	2.89E-13
<b>C6</b>	<b>no irradiado</b>	1.72E-13 ± 3.73E-19	4.31E-13

En las Figuras 5.5, 5.6 y 5.7 se muestran espectros de energía  $\Delta E \cdot E$ , que proporcionan información de los distintos isótopos y de algunos isóbaros detectados.

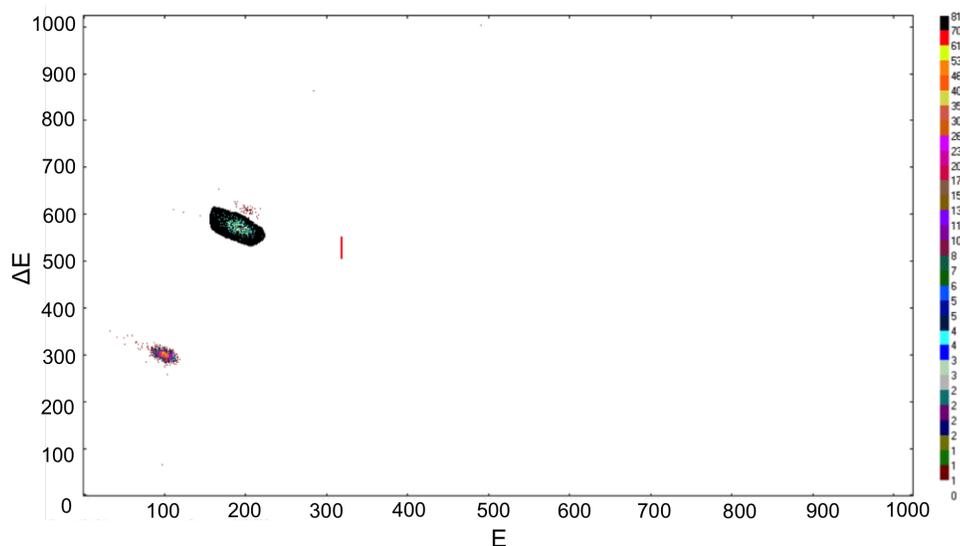


Figura 5.5: Espectro de energías  $\Delta E \cdot E$  de la concentración de  $^{14}\text{C}$  de una muestra de grafito no irradiado (C4).

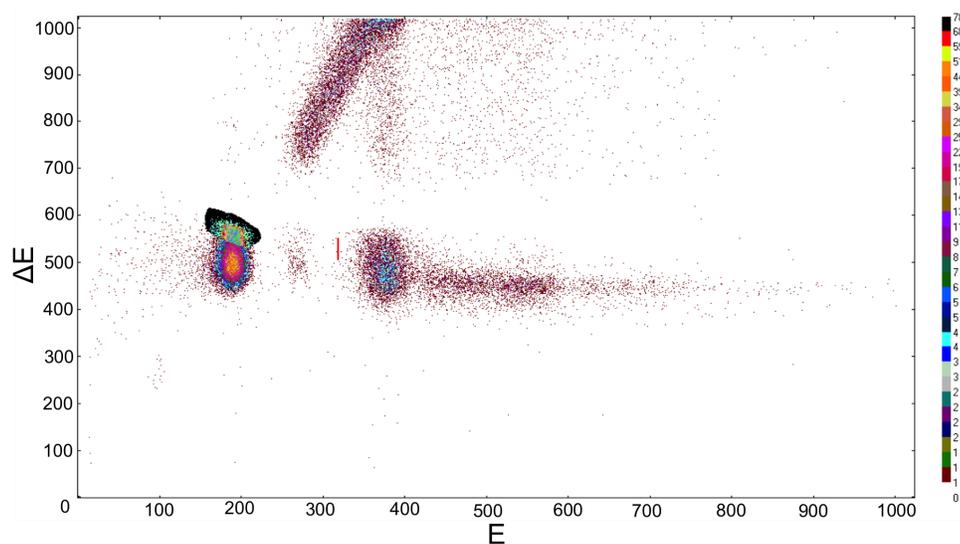


Figura 5.6: Espectro de energías  $\Delta E \cdot E$  de la concentración de  $^{14}\text{C}$  del cátodo C2 a 4 MeV.

La zona marcada en negro en las Figuras 5.5, 5.6 Y 5.7, es la región de interés donde se esperaría que la concentración de  $^{14}\text{C}$  se vería presente en Figuras 5.6, 5.7, sin embargo, en estos mismos hay una clara presencia de contaminación molecular, posiblemente de  $(^{12}\text{C} + ^2\text{H})^{++}$  ya que en las irradiaciones estamos implantando  $^2\text{H}$  en el grafito y es posible que se esté formando dicha molécula, hecho que no estaba previsto. Consideramos debido a esta contaminación que nuestros resultados no son concluyentes.

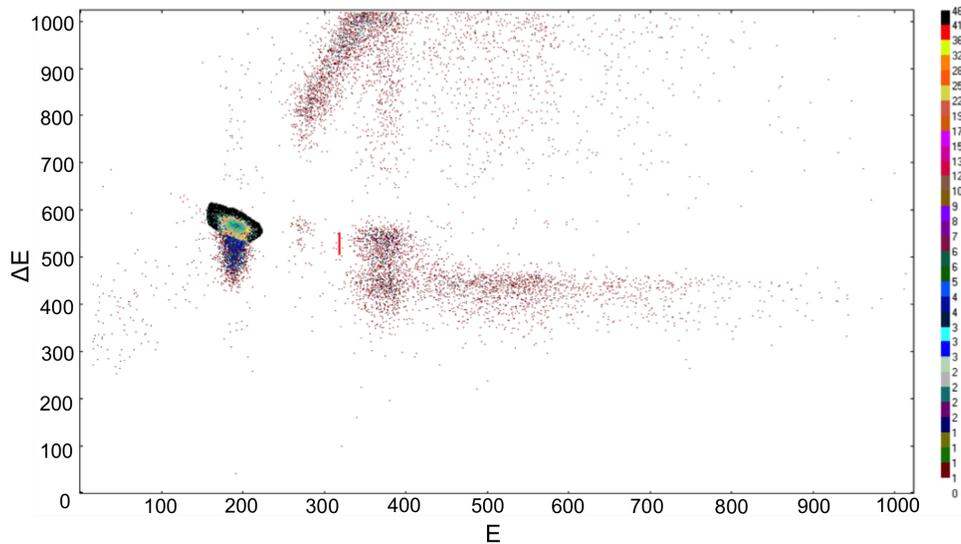


Figura 5.7: Espectro de energías  $\Delta E \cdot E$  de la concentración de  $^{14}\text{C}$  del cátodo C3 a 4 MeV.

#### 5.1.4. Cálculo del Yield

El grosor de la muestra es de 1.6 mm, distancia de un orden mayor que el rango proyectado de los deuterones atravesando el grafito, que a 4 MeV de incidencia es de  $165 \mu\text{m}$  como puede observarse en la Figura 5.9. El poder de frenado para protones y deuterones a la misma velocidad es igual dentro de una incertidumbre estimada de 0.35 % [35], por lo que tomando los datos de poder de frenado para protones sobre grafito ( $\rho = 1.7 \text{ g/cm}^3$ ) del NIST y sabiendo que  $E = \frac{1}{2}mv^2$  graficamos el poder de frenado de deuterones incidiendo sobre grafito, resultando en la Figura (5.10), que respecto al poder de frenado para protones, la energía difiere por un factor de 2.

De forma general, se define el *yield*, o el rendimiento de una reacción nuclear como:

$$y_i(E_0) = \frac{N_A f}{M_B} \int_{E_0}^0 \sigma_i(E) \left[ \frac{dE}{d(\rho x)} \right]^{-1} dE \quad (5.13)$$

donde  $i$  corresponde al canal de la reacción de interés,  $N_A$  es el número de Avogadro,  $f$  la fracción isotópica de núcleos de interés en el blanco,  $M_B$  es el peso atómico del blanco,  $dE/d(\rho x)$  es la tasa de pérdida del haz en el blanco por unidad de grosor másico y  $\sigma_i$  es la sección eficaz para  $i$  [33].

De forma particular, para las reacciones nucleares de interés,  $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$  y  $^{13}\text{C}(d,p)^{14}\text{C}$ , tendremos respectivamente:

$$y_{13}(E_0) = \frac{N_A f_{12}}{M_B} \int_{E_0}^0 \sigma_{13}(E) \left[ \frac{dE}{d(\rho x)} \right]^{-1} dE \quad (5.14)$$

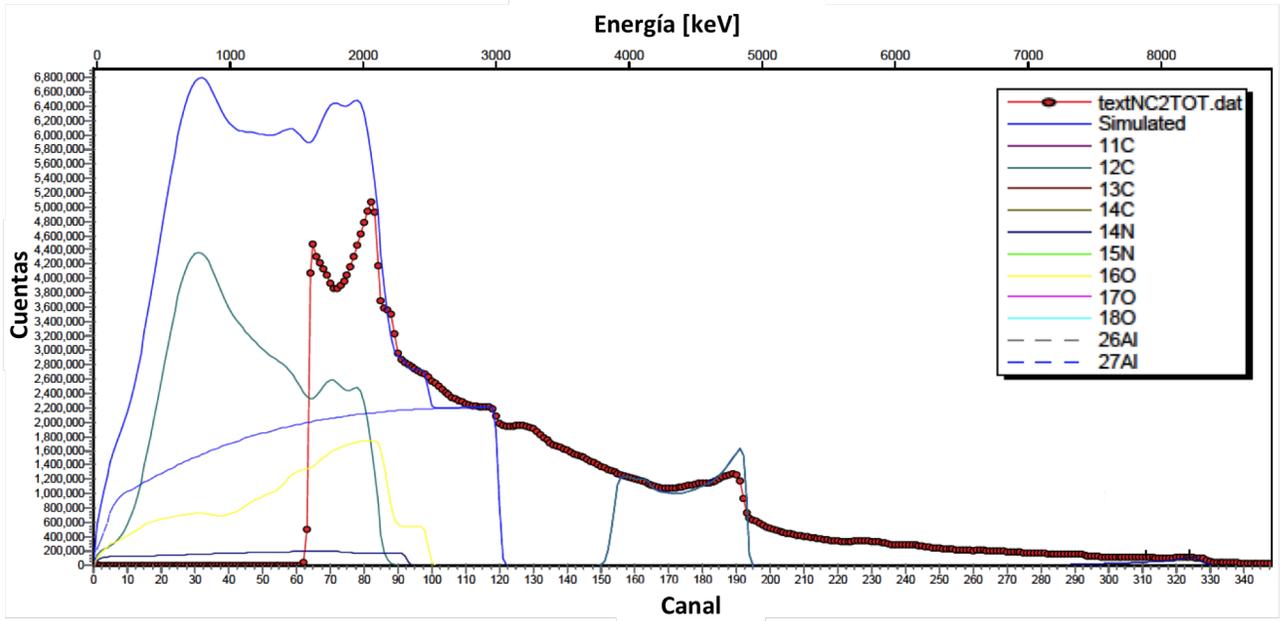


Figura 5.8: Espectro total de la muestra C2 para una energía de bombardeo de deuterio a 4 MeV.

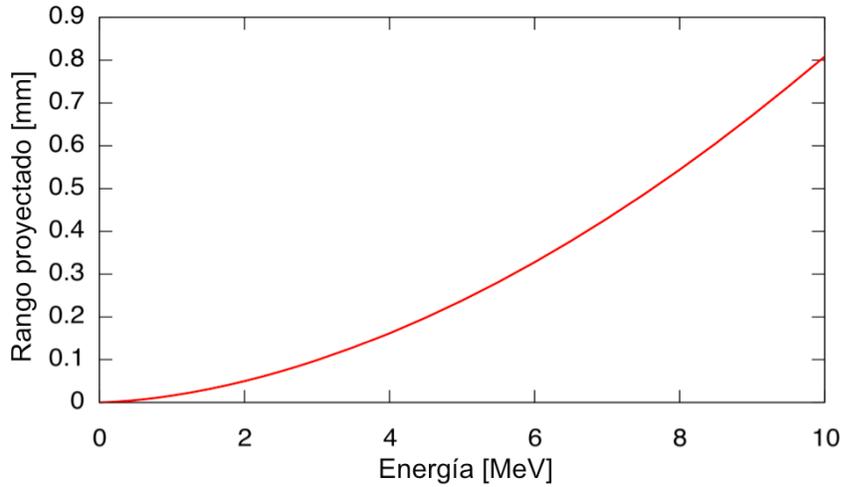


Figura 5.9: Alcance proyectado de los deuterones atravesando el grafito.

y

$$y_{14}(E_0) = \frac{N_A f_{13}}{M_B} \int_{E_0}^0 \sigma_{14}(E) \left[ \frac{dE}{d(\rho x)} \right]^{-1} dE \quad (5.15)$$

siendo  $f_{12}=0.989$  la fracción isotópica correspondiente a  $^{12}\text{C}$  y  $f_{13}=0.11$  a  $^{13}\text{C}$  y  $\sigma_{13}$  y  $\sigma_{14}$  las secciones eficaces para la producción de  $^{13}\text{C}$  y  $^{14}\text{C}$ .

De manera análoga, considerando todos los canales de reacción abiertos para  $^{12}\text{C}+d$  y

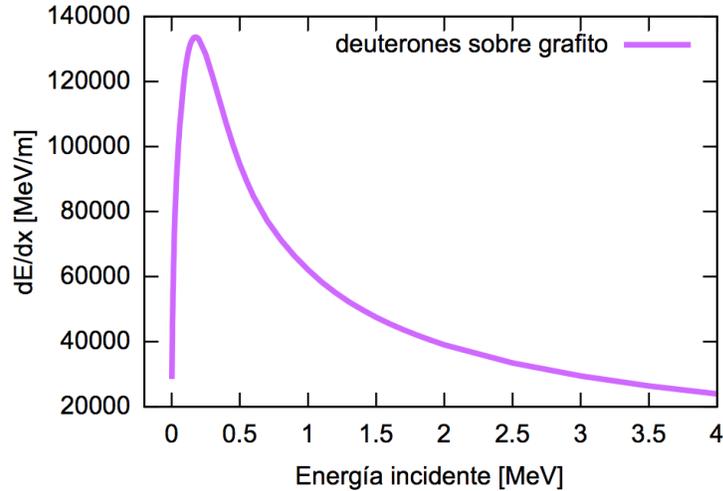


Figura 5.10: Gráfica del poder de frenado del haz de deuterio a través del blanco de grafito donde a partir de los datos obtenidos de la base de datos de NIST para protones sobre grafito ( $\rho = 1.7 \text{ g/cm}^3$ ) se hizo el cálculo para deuterones.

$^{13}\text{C}+d$ , también se tiene

$$Y_{12,13}(E_0) = \frac{N_A f}{M_B} \int_{E_0}^0 \Sigma'_{12,13}(E) \left[ \frac{dE}{d(\rho x)} \right]^{-1} dE \quad (5.16)$$

donde  $\Sigma'_{12}$  y  $\Sigma'_{13}$  son las sumas de las secciones eficaces de todos los canales de reacción abiertos exceptuando

$(d, p)$  a la energía dada  $E$  para  $^{12}\text{C} + d$ ,  $^{13}\text{C} + d$  respectivamente.

Ahora bien, si consideramos el *yield* de  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$  como el cociente:

$$Y_{14} = \frac{\text{no. neto de núcleos de } ^{14}\text{C}}{\text{no. de deuterones incidentes}}$$

donde el número neto de núcleos de  $^{14}\text{C}$  es la diferencia del número de núcleos de  $^{14}\text{C}$  producidos en la reacción ( $N_{14}$ ) menos el número de núcleos de  $^{14}\text{C}$  preexistentes ( $N_{14}^0$ ).

Si hay  $N_d$  proyectiles incidentes, el número total de núcleos producidos en el proceso  $i$  será  $N_i = N_d Y_i$ .

Ahora, como ocurren varias reacciones simultáneamente, el número total de partículas de  $^{12}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}$  y  $^{14}\text{C}$ :

$$N_{12} = N_{12}^0 - N_d \left[ \frac{N_A f}{M_B} \int_{E_0}^0 \Sigma'_{12}(E) \left[ \frac{dE}{d(\rho x)} \right]^{-1} dE \right] \quad (5.17)$$

$$\begin{aligned}
 N_{13} = N_{13}^0 - N_d \left[ \frac{N_A f_{13}}{M_B} \int_{E_0}^0 \Sigma'_{13}(E) \left[ \frac{dE}{d(\rho x)} \right]^{-1} dE \right] + \\
 + N_d \left[ \frac{N_A f_{12}}{M_B} \int_{E_0}^0 \sigma[{}^{12}\text{C}(d,p){}^{13}\text{C}](E) \left[ \frac{dE}{d(\rho x)} \right]^{-1} dE \right]
 \end{aligned} \tag{5.18}$$

$$\begin{aligned}
 N_{14} = N_{14}^0 - N_d \left[ \frac{N_A f_{14}}{M_B} \int_{E_0}^0 \Sigma'_{14}(E) \left[ \frac{dE}{d(\rho x)} \right]^{-1} dE \right] + \\
 + N_d \left[ \frac{N_A f_{12}}{M_B} \int_{E_0}^0 \sigma[{}^{13}\text{C}(d,p){}^{14}\text{C}](E) \left[ \frac{dE}{d(\rho x)} \right]^{-1} dE \right]
 \end{aligned} \tag{5.19}$$

donde  $N_{12}^0$ ,  $N_{13}^0$  y  $N_{14}^0$  son el número inicial de  ${}^{12}\text{C}$ ,  ${}^{13}\text{C}$  y  ${}^{14}\text{C}$  respectivamente y  $\Sigma'_{12}$ ,  $\Sigma_{13}$  y  $\Sigma_{14}$  la suma de las secciones eficaces de los canales de reacción abiertos a la energía dada E para  ${}^{12}\text{C} + d$ ,  ${}^{13}\text{C} + d$  y  ${}^{14}\text{C} + d$  excepto  $(d, p)$ , específicamente  $\Sigma'_{12} = \sigma[{}^{12}\text{C}(d, \gamma){}^{13}\text{C}] + \sigma[{}^{12}\text{C}(d, n){}^{13}\text{N}] + \sigma[{}^{12}\text{C}(d, \alpha){}^{10}\text{B}]$

Simplificando lo anterior

$$N_{12} = N_{12}^0 - N_d y_{13} - N_d \frac{N_A f_{12}}{M_B} \int_{E_0}^0 \Sigma'_{12} \left[ \frac{dE}{d(\rho x)} \right]^{-1} dE \tag{5.20}$$

$$N_{13} = N_{13}^0 + N_d y_{13} - N_d y_{14} - N_d \frac{N_A f_{13}}{M_B} \int_{E_0}^0 \Sigma'_{13} \left[ \frac{dE}{d(\rho x)} \right]^{-1} dE \tag{5.21}$$

$$N_{14} = N_{14}^0 + N_d y_{14} - N_d \frac{N_A f_{14}}{M_B} \int_{E_0}^0 \Sigma'_{14} \left[ \frac{dE}{d(\rho x)} \right]^{-1} dE \tag{5.22}$$

que por ser  $f_{14} = 0$ ,  $N_{14}$  resulta

$$N_{14} = N_{14}^0 + N_d y_{14} \tag{5.23}$$

A partir de esto, desarrollamos las ecuaciones para las concentraciones relativas  $N_{14}/N_{12}$  y  $N_{13}/N_{12}$  :

$$\frac{N_{14}}{N_{12}} \simeq \frac{N_{14}^0}{N_{12}^0} + \frac{N_d}{N_{12}^0} \left[ y_{14} + \frac{N_{14}^0}{N_{12}^0} (y_{13} + Y_{12}) \right] \tag{5.24}$$

$$\frac{N_{13}}{N_{12}} \simeq \frac{N_{13}^0}{N_{12}^0} + \frac{N_d}{N_{12}^0} \left[ y_{13} \left( 1 + \frac{N_{13}^0}{N_{12}^0} \right) - y_{14} - Y_{13} + \frac{N_{13}^0}{N_{12}^0} Y_{12} \right] \tag{5.25}$$

Resolviendo este sistema de ecuaciones para  $y_{13}$  e  $y_{14}$ , obtenemos

$$y_{13} = \left[ 1 + \frac{N_{13}^0}{N_{12}^0} + \frac{N_{14}^0}{N_{12}^0} \right]^{-1} \cdot \left[ \frac{N_{12}^0}{N_d} \left( \frac{N_{13}}{N_{12}} - \frac{N_{13}^0}{N_{12}^0} + \frac{N_{14}}{N_{12}} - \frac{N_{14}^0}{N_{12}^0} \right) + Y_{13} - \frac{N_{13}^0}{N_{12}^0} Y_{12} - \frac{N_{14}^0}{N_{12}^0} Y_{12} \right] \quad (5.26)$$

$$y_{14} = \frac{N_{12}^0}{N_d} \left( \frac{N_{14}}{N_{12}} - \frac{N_{14}^0}{N_{12}^0} \right) - \frac{N_{14}^0}{N_{12}^0} \left( \left[ 1 + \frac{N_{13}^0}{N_{12}^0} + \frac{N_{14}^0}{N_{12}^0} \right]^{-1} \cdot \left[ \frac{N_{12}^0}{N_d} \left( \frac{N_{13}}{N_{12}} - \frac{N_{13}^0}{N_{12}^0} + \frac{N_{14}}{N_{12}} - \frac{N_{14}^0}{N_{12}^0} \right) + Y_{13} - \frac{N_{13}^0}{N_{12}^0} Y_{12} - \frac{N_{14}^0}{N_{12}^0} Y_{12} \right] + Y_{12} \right) \quad (5.27)$$

Los valores de las concentraciones relativas iniciales,  $N_{14}^0/N_{12}^0$  y  $N_{13}^0/N_{12}^0$ , experimentalmente corresponden al promedio de las concentraciones relativas obtenidas en el LEMA para las dos muestras no irradiadas (C4 y C6),  $N_d$  es el número de deuterones incidentes en el grafito, el cual es el valor calculado en SIMNRA. Por otro lado,  $Y_{12}$  e  $Y_{13}$  fueron cálculos numéricos a partir de la Ecuación (5.13), donde los valores de las secciones eficaces  $\sigma$  de los distintos canales de reacción fueron obtenidos de ENDF, de la biblioteca Tendl 2014, los cuales fueron interpolados en pasos de 100 keV usando un programa que construimos en C++, mismo que usamos para calcular  $dE/d(\rho x)$ . El valor de la integral  $\int \sigma_i(E) \cdot [dE/d(\rho x)]^{-1} dE$  se calculó en Origin. En la Tabla 5.11 se muestran los valores utilizados para las concentraciones relativas y en la Tabla 5.12 los valores obtenidos por SIMNRA para el número de deuterones incidentes en el carbono,  $N_d$ , datos a su vez tomados de las Tablas 5.7 y 5.8 para el detector D1. Los resultados del número de partículas para el detector D2 se descartaron por no tener colimador y porque su eficiencia es del 39% respecto a D1.

Tabla 5.11: Valores para el cálculo del *yield*

<b>Resultados Experimentales (LEMA)</b>				
	$N_{14}/N_{12}$	$N_{14}^0/N_{12}^0$	$N_{13}/N_{12}$	$N_{13}^0/N_{12}^0$
<b>C2</b>	7.76E-12±9.27E-19		1.43E-02 ±6.59E-25	
<b>C3</b>	1.53E-12±3.10E-19	1.59E-13±3.54E-19	1.34E-02 ±2.03E-25	1.33E-02±8.29E-26

El hecho de haber irradiado dos muestras a la misma energía era con el objetivo de obtener resultados redundantes, pues se esperaría que hubiera salido el mismo resultado para las dos muestras, pues el *yield* debería ser único para una misma energía, ya que depende de la energía del haz.

Tabla 5.12: Valores del número de deuterones con la corrección de tiempo real/tiempo vivo,  $N_d$ , tomados para las concentraciones elementales de carbono de las Tablas para el calculado usando SIMNRA, para las muestras C2 y C3, para el detector D1.

	$N_d$ (SIMNRA)
<b>C2</b>	5.28E+16
<b>C3</b>	4.08E+16

Tabla 5.13: Cálculo de los *yields* con  $N_d$  corregido

	Yields calculados con datos de librerías	Datos calculados con valores experimentales (este trabajo)	
		<b>C2</b>	<b>C3</b>
$Y_{12}$	2.05E-04	-	-
$Y_{13}$	3.64E-05	-	-
$y_{13}$	4.61E-04	4.67E-03	4.23E-03
$y_{14}$	1.26E-02	3.57E-11	8.33E-12

La diferencia entre el *yield* teórico con el *yield* experimental muestra que la sección eficaz teórica (de la biblioteca Tendl) está sobreestimada, hecho que se reafirma sabiendo que los datos de la sección eficaz a  $135^\circ$  de Colaux *et al.* y de Marion y Weber están en buena concordancia [2] y difieren significativamente de la sección de Tendl (ver Figura 3.2).

Por otro lado, la diferencia en los datos experimentales del *yield* para una misma energía de haz podría estar relacionada con la contaminación de la medida en LEMA por la molécula  $(^{12}\text{C} + ^2\text{H})^{++}$ , cuya presencia podría ser diferente para las dos muestras, además de que podrían haber existido distintas condiciones de irradiación (proporción del haz incidiendo en el grafito) en los dos cátodos.



# Capítulo 6

## Conclusiones

En el presente trabajo de tesis se llevó a cabo, exitosamente, la producción de  $^{14}\text{C}$  a través de la reacción  $^{13}\text{C}(d,p)^{14}\text{C}$ , mediante el bombardeo con un haz de deuterio de 4 MeV de un blanco de grafito natural en el laboratorio del acelerador Tandem Van de Graaff del ININ. El análisis de la concentración relativa del  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ , realizado en el Laboratorio Nacional de Espectrometría de Masas con Aceleradores (LEMA), muestra un claro exceso de  $^{14}\text{C}$  en el material irradiado con respecto a las muestras sin irradiar ( $7.76\text{E-}12$  y  $1.53\text{E-}12$  para las muestras irradiadas;  $1.46\text{E-}13$  y  $1.72\text{E-}13$  para las no irradiadas), indicativo de la ocurrencia de la reacción de interés. Las irradiaciones se realizaron en material contenido en cátodos de aluminio del tipo utilizado en el LEMA, lo que complica por un lado el proceso de irradiación pues el diámetro ocupado por el grafito en el cátodo es de tan solo 1.3 mm. Por otro lado, la preparación del blanco en cátodos de aluminio implica trabajar con un blanco grueso (1.6 mm), por lo que a una energía fija del haz lo que se mide es el *yield*, es decir la integral de la sección eficaz desde la energía incidente hasta que el haz es completamente frenado en el grafito, tomando en cuenta la pérdida de energía del haz en el material. Es posible realizar una desconvolución del *yield* para extraer la sección eficaz como función de la energía, sin embargo, para esto es necesario medir el *yield* a diferentes energías. El presente trabajo ha sentado las bases para estudios futuros, en los que un control fino tanto del enfoque como la posición del haz durante la irradiación será crucial. Otro de los aspectos a mejorar es contar con un portacátodos que esté hecho de un material resistente al calor producido por la corriente del haz. También es necesario realizar más estudios para saber cómo analizar apropiadamente esta reacción en LEMA (donde se analizan capas hasta cierta profundidad del cátodo); aunado a ello, se propone utilizar un blanco delgado, haciendo una implantación de grafito en una película de algún metal pesado, como oro, ya que esto permitiría separar bien la región de interés de retrodispersión del carbono de la del metal, además, si hacemos la película del grosor equivalente al alcance del deuterio, aseguraríamos que sólo se analizara la región irradiada, pues utilizando blanco grueso con partículas cargadas resultó complicado porque no tenemos la certeza de la fracción de la muestra que fue analizada, pues si se analizó una profundidad más allá del alcance del haz, eso afecta la estadística y en su defecto el valor de las concentraciones relativas podría ser de menor valor que el valor real. Asimismo, podría establecerse una forma de procesar

el blanco irradiado antes del análisis por AMS. En cuanto a cómo evitar contaminación molecular de  $(^{12}\text{C} + ^2\text{H})^{++}$ , se sugiere utilizar el estado de carga  $3+$ , pues en este estado la molécula no sobrevive.

**Apéndice A**

**Publicación**

# Towards the measurement of the $^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})^{14}\text{C}$ cross section using AMS

S. Murillo-Morales<sup>1</sup>, L. Barrón-Palos<sup>2</sup>, E. Chávez<sup>2</sup>, V. Araujo-Escalona<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Facultad de Ciencias, Universidad Nacional Autónoma de México. 04510, Ciudad de México.

<sup>2</sup> Instituto de Física, Universidad Nacional Autónoma de México. 04510, Ciudad de México.

E-mail: silviamur@ciencias.unam.mx

**Abstract.** A plan to study the total cross section for the  $^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})^{14}\text{C}$  nuclear reaction has been developed for energies in the center-of-mass frame between 133 and 400 keV. The proposed experiment will use a deuterium beam (1 - 3 MeV of energy) from the Instituto de Física-UNAM 5.5 MV Van de Graaff accelerator and the produced  $^{14}\text{C}$  will be afterwards measured by AMS technique in the LEMA-UNAM (HVEE 1 MV Tandetron). One of the main goals is to study the performance of the LEMA-UNAM facility in the cross section measurement in comparison with other data reported in the literature, measured by other techniques. In this work we present the current status of these studies. The relevance of the  $^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})^{14}\text{C}$  reaction in the study of compound nucleus formation as well as in some astrophysics scenarios, and the importance of the development of the AMS technique to measure cross sections of nuclear reactions of astrophysical interest in Mexico are also discussed.

## 1. Introduction

Knowing the cross section of nuclear reactions is important in nuclear physics because it helps to have a better understanding of nuclear structure. In nuclear astrophysics, it provides information about the processes that take place in the cosmos. Unfortunately, the cross section of many nuclear reactions at the energies of interest remain poorly known due to the challenges implicated in the measurement of very low cross sections or in the measurement of cross sections of nuclear reactions that involve radioactive nuclei. Therefore, the development of efficient techniques to measure reaction cross sections is necessary. The use of the AMS technique to determine the presence of an isotope of interest, produced by a nuclear reaction in a previous irradiation of the sample is gaining more scientific interest as a tool to study nuclear reactions with small cross sections that are difficult to measure using other techniques, besides it offers a complementary tool for studying long-lived radionuclides [1]. Several studies have been published on the use of the AMS technique to study nuclear reactions [1] [2] [3] [4].

This paper presents the preparation that is currently taking place towards the first measurement of the cross section of the  $^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})^{14}\text{C}$  nuclear reaction at low energies (133 - 400 keV in the center-of-mass system) using the AMS technique.

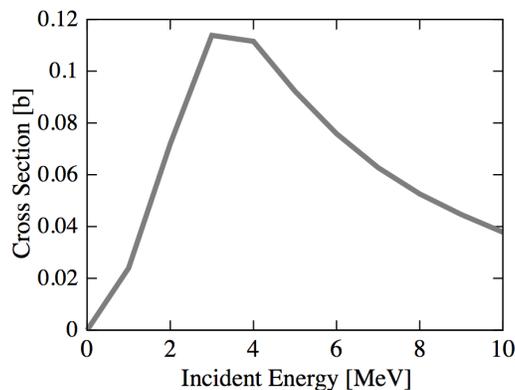
What we know about the cross section of the  $^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})^{14}\text{C}$  nuclear reaction is largely based on very limited experimental data. Hence, one of our goals is to widen experimental knowledge of this reaction. Previous work on the  $^{13}\text{C}(\text{d}, \text{p})^{14}\text{C}$  reaction has focused on the angular momentum distribution and yield [5][6], and the excitation function measurement [7].



This reaction involves deuterium, which is an important ingredient in the primordial nucleosynthesis that took place within the first 3 minutes after the Big Bang [8]. Although the  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$  reaction is not considered among the main reactions that take place in the standard CNO nucleosynthesis, extended models where subleading reaction channels are considered seem to find larger concentrations of  $^{13}\text{C}$  and  $^{14}\text{C}$  due to a more efficient carbon burning process that involves (d, p) reactions on  $^{12}\text{C}$  and  $^{13}\text{C}$  [9].

Furthermore, this nuclear reaction is of interest since it allows to study the formation of compound nucleus. The first studies on compound nucleus formation in the  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$  nuclear reaction from 1 to 3 MeV in the laboratory frame of reference was carried out in 1956 by Marion and Weber [6].

Figure 1 shows the cross section for the  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$  nuclear reaction, which is of the order of ten mb between 1 and 3 MeV.



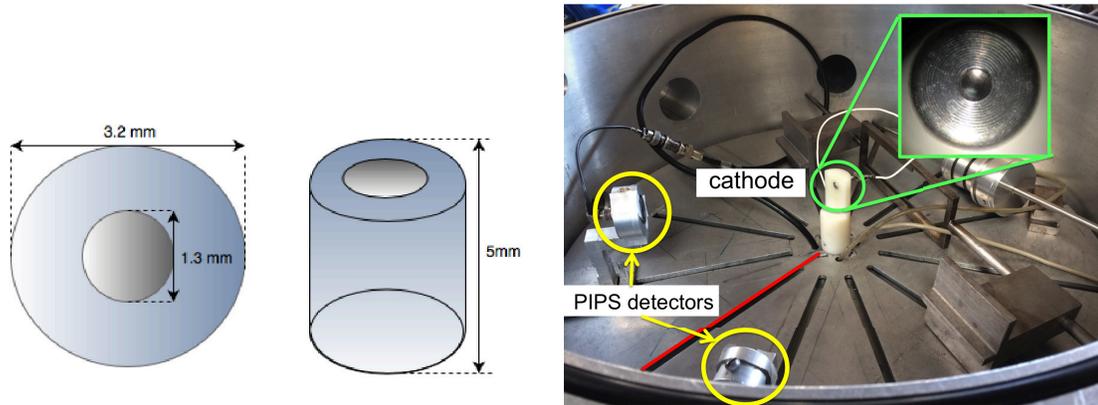
**Figure 1.** Total cross section for the  $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$  nuclear reaction at energies between 0 and 10 MeV in the laboratory frame of reference. Data retrieved from ENDF (TENDL - 2014) [10].

## 2. Experiment

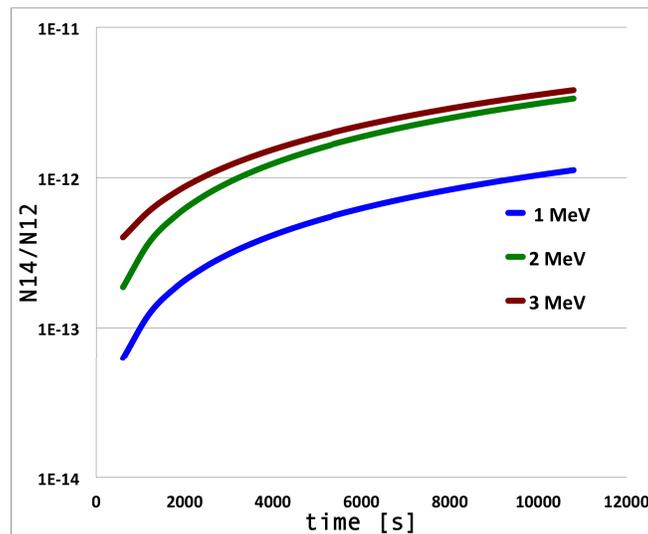
Our purpose is to irradiate graphite (98.9%  $^{12}\text{C}$ , 1.1%  $^{13}\text{C}$ ) samples with a deuterium beam with energies between 1 and 3 MeV. In order to avoid processing the graphite after irradiation for AMS analysis, the aluminium cylindrical cathodes containing graphite, used in the negative-ion source of the AMS accelerator, are directly irradiated at the Van de Graaff accelerator. Approximately 4.5 mg of graphite are used per cathode. The surface corresponding to graphite is  $\sim 1.33\text{mm}^2$ . The cathode geometry is shown in Figure 2. Using two CANBERRA's Passivated Implanted Planar Silicon detectors (PIPS), Rutherford Backscattering Spectrometry (RBS) will be performed to determine how much of the sample's surface has actually been irradiated.

Despite the low content of  $^{13}\text{C}$  in graphite, and the relatively low deuterium-beam currents that can be obtained at the IFUNAM 5.5 MV Van de Graaff ( $\sim 3.12 \cdot 10^{10}$  particles/s $\cdot\text{cm}^2$ ), it is possible to achieve relative concentrations of  $^{14}\text{C}$  ( $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ ) that are of the order of  $10^{-12}$  in relatively short times (a few hours). These concentrations are within the sensitivity range of LEMA, where relative concentrations as low as  $10^{-15}$  for  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  can be measured.

A plot of the calculated time variation of the relative concentration of  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  is shown in Figure 3. As it can be seen, relative concentrations of  $10^{-12}$  can be achieved after a few hours of irradiation with a 500 nA beam impinging the  $1.33\text{mm}^2$  cross sectional area of graphite on the aluminum cathode surface.



**Figure 2.** Diagram of a graphite-filled aluminium cathode (left); Set-up configuration for RBS(right)



**Figure 3.** Plot of  $N_{14}/N_{12}$  vs. time for 1 MeV (blue), 2 MeV (green) and 3 MeV (red) for 10 hours of irradiation.

The variation with time of the  $^{12}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}$  and  $^{14}\text{C}$  concentrations is described by the equations below:

$$\frac{dN_{12}}{dt} = -N_{12}\Sigma_{12}\phi \quad , \quad (1)$$

$$\frac{dN_{13}}{dt} = N_{12}\sigma_{13}\phi - N_{13}\Sigma_{13}\phi \quad , \quad (2)$$

$$\frac{dN_{14}}{dt} = N_{13}\sigma_{14}\phi - N_{14}\Sigma_{14}\phi \quad . \quad (3)$$

where  $N_{(12,13,14)}$  correspond to the concentrations of  $^{12}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}$ , and  $^{14}\text{C}$  at a given time  $t$ ,  $\Sigma_{12,13,14}$  are the sums of the cross sections of the reactions that consume  $^{12,13,14}\text{C}$  ((d,p),(d,n),(d, $\gamma$ ) and (d, $\alpha$ )),  $\sigma_{13,14}$  are the cross sections of the nuclear reactions that produce  $^{13}\text{C}$  and  $^{14}\text{C}$ , and

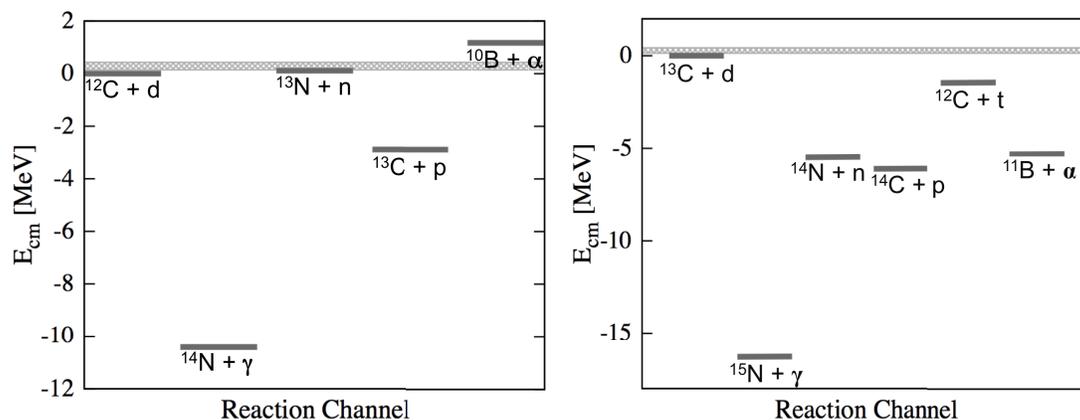
$\phi \approx 6.4 \times 10^{13}$  particles/s · cm<sup>2</sup> is the flux of deuterons impinging on the graphite surface of the cathode (corresponding typically to a 500 nA deuterium beam after collimation).

In Figure 4, the excitation energy is shown for the possible reaction channels, which can be determined initially by the laws of conservation of energy and changing from the laboratory system to the center-of-mass reference frame to obtain:

$$K_{thr(c.m.)} = -Q \left( 1 + \frac{m_p}{m_t} \right) \quad (4)$$

where  $K_{thr(c.m.)}$  is the threshold energy of the projectile,  $Q$  the  $Q$  – value of the reaction channel,  $m_p$  the mass of the projectile and  $m_t$  the mass of the target.

Since natural graphite is a mixture of <sup>12</sup>C and <sup>13</sup>C, both <sup>12</sup>C(d, p) and <sup>13</sup>C(d, p) nuclear reactions take place. Therefore, we consider the reaction channels of each.



**Figure 4.** Excitation energy for the reaction channels of <sup>12</sup>C(d, p) and <sup>13</sup>C(d, p) in the center-of-mass reference frame. The gray band illustrates the energy region in which our study will take place.

### 3. Conclusions

A campaign of irradiation of cathodes containing graphite with a deuterium beam is planned to be performed at the 5.5 MV Van de Graaff accelerator in April, 2017, when we expect to be able to study the cross section for the <sup>13</sup>C(d, p) reaction at different beam energies between 1 and 3 MeV in the laboratory frame. The development of the AMS technique to measure cross sections of nuclear reactions is important since there is a large number of cross sections of astrophysical interest that could be studied with this method. Additionally, developing this technique would allow us to take advantage of the infrastructure that we have in Mexico to conduct studies that are in the frontier of physics.

### Acknowledgments

The authors of this work are indebted to the Van de Graaff accelerator and LEMA technicians: G. Rayo and C. Valencia. And S. Martínez. This work is possible only thanks to the financial support from CONACYT 51600, 82692,123655, 271802 and DGAPAUNAM IN-118310, IN-112609, IN-105510, IN-115213, TA-100213, IN-103312 and IG-101016..

### References

- [1] He M *et al.* (2007) *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* **259** 629-31
- [2] Wallner A *et al.* (2016) *Phys. R. C* **93**, 045803



# Bibliografía

- [1] Marion J and Weber G (1956) *Phys. Rev.* **103** 167-71
- [2] Colaux J, Thomé T and Terwagne G (2007) *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. R. B* **254** 25-29
- [3] P E Hodgson (1971) *Nuclear Reactions and Nuclear Structure*. Oxford University Press
- [4] Satchler G R (1990) *Introduction to Nuclear Reactions*. Oxford University Press
- [5] E. Rutherford (1919) *Phil. Mag. S. 6* **37** 571-80
- [6] Krane K. S. (1988) *Introductory Nuclear Physics* John Wiley and Sons.
- [7] Bertulani C. A. (2007) *Nuclear Physics in a Nutshell*. Princeton University Press
- [8] M. Wiescher (2015) Goals and challenges in experimental nuclear astrophysics. *EPL* **109**
- [9] T. S. Butler (1951) *Proc. R. Soc. Lond. A* **208** 559-579
- [10] Leo W. R. (1994) *Techniques for Nuclear and Particle Experiments* Springer Verlag
- [11] C. E. Rolfs, W. A. Rodney (1988) *Cauldrons in the cosmos*. The University of Chicago Press.
- [12] Weisskopf W (1956) *Physica Amsterdam Nucl. React. Conf.* **XXII** 952-58
- [13] Mayer M. (1999) *AIP Conf. Pr.* 541-44
- [14] C. Solís, E. Chávez, M.E. Ortiz, A. Huerta, E. Andrade, E. Barrios, A new AMS facility in Mexico. *NIMPRB* (2014).
- [15] E. Solís Meza (2016) Tesis de licenciatura en física, UNAM *Fechamiento de piezas dentales modernas con carbono-14 por espectrometría de masas con aceleradores*.
- [16] He M *et al.* (2007) *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* **259** 629-31
- [17] Wallner A *et al.* (2008) *J. Phys. G: Nucl. Part. Phys.* **35** 014018

- [18] Wallner A *et al.* (2016) *Phys. R. C* **93**, 045803
- [19] Arazi A *et al.* (2006) *Phys. Rev. C* **74** 025802
- [20] Wang Y *et al.* (2010) *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* **268** 2099-103
- [21] Paul *et al.* (1980) *Phys. Lett. B* **94** 303-6
- [22] Litherland A, Zhao X-L and Kieser (2011) *Mass Spect. R.* **30** 1037-72
- [23] Mayer M (2003) *Lectures given at the Workshop on Nuclear Data for Science and Technology: Materials Analysis Trieste* <http://citeseerx.ist.psu.edu/viewdoc/download?doi=10.1.1.618.4643&rep=rep1&type=pdf> 2018
- [24] Bromley D and Goldman M (1952) *Phys. Rev.* **86** 790
- [25] Kouldijs B, Valckx F and Endt P (1953) *Physica* **19** 1133-39
- [26] Maxson D, Sornborger A (1993) *Nuclear Instr. and Meth. in Phys. R. B* **79** 293-96
- [27] Peterson *et al.* (1983) *Nucl. Phys.* **A425** 469-92
- [28] Schieffer J P *et al.* (1967) *Phys. Rev.* **164**, 1274-84
- [29] Lacambra J M (1964) *Nuclear Physics* **68** 273-86
- [30] Guo L and Li Z-H (2007) *Chin. Phys. Lett.* **24** 65-68
- [31] Jaszczak R *et al.* (1969) *Phys. R.* **181** 1428-30
- [32] Steigman G 2003 Primordial Nucleosynthesis astro-ph/0308511
- [33] Barrón-Palos L. (2005) Tesis Doctoral, Instituto de Física, UNAM *Medidas de Sección Eficaz de Fusión para el Sistema  $^{12}C+^{12}C$  a Energías de Interés Astrofísico*
- [34] Koning A and Rochman D (2014) TENDL-2014 *Nuclear Research and Consultancy Group (NRG) Petten, The Netherlands.*
- [35] H. Bichsel and M. inokuti (1998) *Nucl. Inst. and M. in Phys. R.* **134** 161-64
- [36] Hellborg (Ed.) (2005) Electrostatic Accelerators. Fahlander C and Rudolph D *Chapter 20 Nuclear Structure* Springer Verlag
- [37] Henley E M and García A (2007) *Subatomic Physics.* World Scientific Publishing Co
- [38] Wiedermann H (2015) *Particle Accelerator Physics,* Springer International Publishing AG
- [39] Mayer M. (1999) AIP Conf. Proc. **475** 541-44
- [40] Knoll G. F. (2000) *Radiation Detection and Measurement,* John Wiley and Sons, 3rd Ed.

- 
- [41] Ion Beam Analysis Nuclear Data Library (2003) Int. At. En. A., Nuc. D. S. <https://www-nds.iaea.org/exfor/iband1.htm> 2016-2017
- [42] Favela F., ISONAV (2015), GitHub, GitHub repository, <https://github.com/ffavela/isonav>, 2017
- [43] ENDF <https://www-nds.iaea.org/exfor/endl.htm>
- [44] Jarjis R. A. (1979) Int. Rep., U. of Manchester
- [45] Bonner T.W. et al. (1956) Phys. Rev. **v.10** 209
- [46] Marsh B. B. (1963) J. Phys. Rev. **130** 2373
- [47] Simpson J. C. *al.* (1984) Vacuum **34** 899
- [48] Kashy E. *et al.*(1960) Phys. Rev. **117** 1289
- [49] QCalc (2016) Nat. Nuc. D. C., BrookhavenN. Lab. <https://www.nndc.bnl.gov/qcalc/> 2017
- [50] Murillo-Morales S. *et al.* (2017) IOP *J. of Phys: Conf. S.* **876**
- [51] Akel *et al.* (2014) AIP Physics of Plasmas **21** 072507