

UCH-FC
MAG-F
W113
C.1

**Medición de la sección eficaz de
producción de la reacción ${}^{\text{Nat}}\text{Zn}(p,x){}^{67}\text{Ga}$
en el intervalo de
energía de 1.6 a 2.5 MeV**

Tesis
entregada a la
Universidad de Chile
en cumplimiento parcial de los requisitos
para optar al grado de
Magister en Ciencias con mención en Física
Facultad de Ciencias

por

Javier A. Wachter Ch.

Octubre, 2007

Director de Tesis: **Dr. J. Roberto Morales P.**



FACULTAD DE CIENCIAS
UNIVERSIDAD DE CHILE

INFORME DE APROBACIÓN
TESIS DE MAGISTER

Se informa a la Escuela de Postgrado de la Facultad de Ciencias que la Tesis de Magister presentada por el candidato

Javier A. Wachter Ch.

ha sido aprobada por la Comisión de Evaluación de la Tesis como requisito para optar al grado de Magister en Ciencias con mención en Física, en el examen de Defensa de Tesis rendido el día 11 de Mayo de 2007.

Director de Tesis

Dr. J. Roberto Morales P

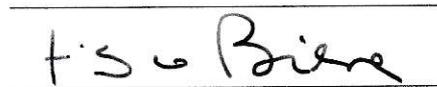


Comisión de Evaluación de la Tesis

Dr. Hugo F. Arellano S.

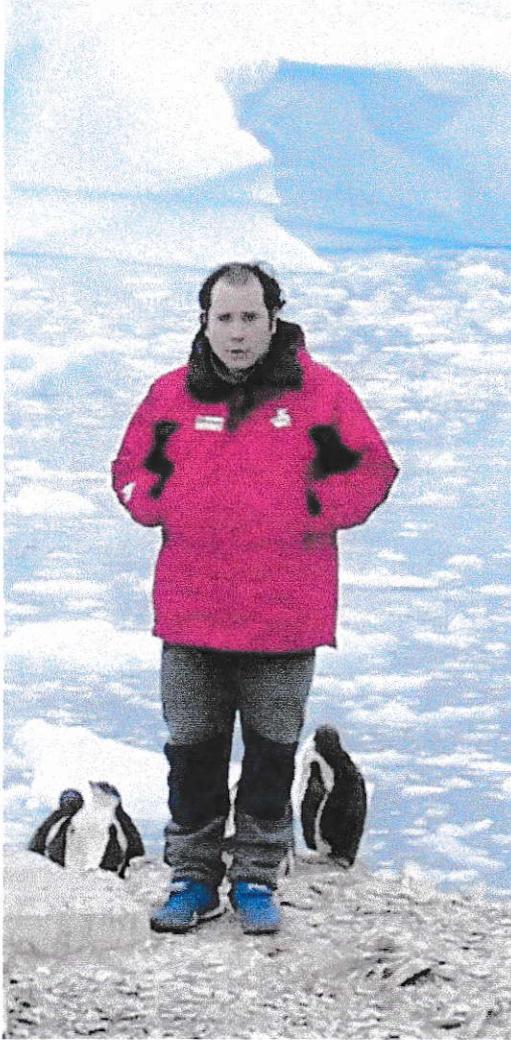


Dr. Claudio F. Tenreiro L.



Dr. Francisco A. Brieva R.





Todo comenzó en una visita a un museo de ciencias en el extranjero, cuando tenía alrededor de 14 años. En el museo había todo tipo de mecanismos y artilugios que mostraban el interés por saber si era posible el movimiento perpetuo. En ese momento supe que quería aprender física y apareció un interés por la ciencia en general.

Terminada la enseñanza media en el Instituto Miguel León Prado en la comuna de San Miguel, surgió en mí el interés por estudiar una carrera científica. Seguir la carrera de licenciatura en física no fue fácil, pero la voluntad y el apoyo de la familia hacen posible resolver las dificultades del camino. Luego surgió la posibilidad de seguir el programa de magister. Tenía interés por realizar la tesis en el área de la física experimental. Inmediatamente sentí el apoyo e interés de parte de mi profesor guía y su grupo en el Laboratorio de Física Nuclear de la

Facultad de Ciencias. Aparte de trabajar en el tema de tesis, siempre estuvo la motivación por involucrarme en otros temas y es así como tuve la oportunidad de viajar a la antártica. Estoy profundamente agradecido de mis profesores por la confianza en que podía cumplir exitosamente la misión encomendada. Del mismo modo agradezco la oportunidad de poder hacer clases en el programa de Bachillerato y en Ciencias, creo serán la mejor experiencia para el futuro.

Espero en el futuro seguir incursionando en el mundo de la física experimental y por sobretodo tratar de incentivar en otros el interés por la ciencia en general.

AGRADECIMIENTOS

Deseo agradecer a todos quienes tuvieron algo que ver con que esta tesis llegara a buen término. En especial a mi tutor Dr. J. Roberto Morales, al Dr. Pedro Miranda, al MCs. Simón Cancino, y a la profesora MCs. María Inés Dinator por todos los consejos y la ayuda prestada en el desarrollo de esta tesis.

A mi familia por la paciencia y el cariño. Agradezco también a tantos profesores, amigos y compañeros por sus muestras de afecto e interés por este proyecto.

Especialmente quiero agradecer a los profesores Germán Kremer, Nelson Aliaga, José Rogan, Luis Moraga y Orfa Reyes por sus constantes palabras de apoyo durante mis estudios en la facultad.

Al Ing. H. Omar Riquelme y el Sr. Paulo Rosas por la asistencia técnica y la por la disposición siempre favorable. Agradezco la asistencia del taller de mecánica a cargo del Sr. Juan Vásquez. La construcción de piezas y reparaciones fueron de vital importancia en el desarrollo de los experimentos.





Índice

1. Introducción	1
2. Teoría	5
2.1. Clasificación de las reacciones nucleares	5
2.2. El núcleo compuesto	8
2.3. Región de interés en la carta de radionuclídeos y canales de reacción permitidos	9
2.4. Cálculo de la sección eficaz de producción experimental	11
2.5. Rendimiento de producción	14
3. Método experimental	16
3.1. Preparación de los blancos.	17
3.2. Análisis de contaminantes y de espesores de los blancos de Zn	18
3.2.1. Acelerador Van de Graaff	18
3.2.2. Análisis de los blancos mediante el método PIXE	24
3.2.3. Medición de espesores mediante RBS.	26
3.3. Irradiaciones	31
4. Resultados y Análisis	38
4.1. Radiación X característica del zinc, resultados de los análisis PIXE	38

	IV
4.2. Decaimiento del ^{67}Ga , captura electrónica	39
4.3. Sección eficaz de producción	39
4.4. Comparación con modelos teóricos	41
4.5. Rendimiento de la producción de ^{67}Ga	44
4.6. Espectro de radiación γ	47
5. Conclusiones	49
A. Apéndice	51
A.1. Parámetros experimentales de las irradiaciones de producción y de los análisis PIXE	51
B. Apéndice	56
B.1. Poder de frenado	56



RESUMEN

En esta tesis se presenta la medición de la sección eficaz de producción del radionucléido ^{67}Ga mediante la reacción $^{\text{Nat}}\text{Zn}(p,x)^{67}\text{Ga}$ en el intervalo de energía de 1.6 a 2.5 MeV. La medición es de interés en la producción de ^{67}Ga , un radionucléido utilizado en el diagnóstico de enfermedades donde se presentan inflamaciones. Estos resultados también son de interés en astrofísica, particularmente en el cálculo de la tasa de reacción, ingrediente principal en el modelamiento de las abundancias isotópicas en ambientes estelares.

La sección eficaz medida en función de la energía se compara con la predicciones de los códigos ALICE/Ash y Empire-II variando el modelo de densidad de niveles de ambos códigos. Los resultados son comparados también con valores reportados por otros autores. Además se presentan valores de rendimiento de producción de ^{67}Ga en el mismo intervalo de energía.

Las mediciones fueron realizadas en el Laboratorio de Física Nuclear de la Facultad de Ciencias de la Universidad de Chile, haciendo uso del acelerador Van de Graaff KN3750. Se utilizó un método desarrollado en el laboratorio para la determinación de secciones eficaces experimentales en reacciones nucleares donde el núcleo final o residual decae mediante captura electrónica.



ABSTRACT

In this thesis we present the measurement of the production cross section of ^{67}Ga by means of the $^{\text{Nat}}\text{Zn}(p,x)^{67}\text{Ga}$ reaction in the energy range from 1.6 to 2.5 MeV. These results are required for the ^{67}Ga production, a radionuclide used in the diagnostic of diseases where exist inflammations. These measurements are interesting in astrophysics too, in special for the calculation of reaction rates and isotopic abundances in stellar environments.

The cross section measurements are compared with predictions by ALICE/Ash and Empire-II codes, varying the nuclear level density models, and with the measurement reported by other authors. In addition production yields of ^{67}Ga were calculated for the same range of energy.

The measurement were performed using the KN 3750 Van de Graaff accelerator at the Nuclear Physics Laboratory of Facultad de Ciencias of Universidad de Chile. The determination of the experimental cross section used a method developed at the laboratory for nuclear reactions where the final nucleus decay by electron capture.

Capítulo 1

Introducción

Datos de sección eficaz dependiente de la energía ó función de excitación de reacciones nucleares son de gran interés en ámbitos como la producción de radionucléidos para uso médico e industrial, el análisis elemental de objetos y superficies mediante el uso de haces de partículas cargadas y en astrofísica [1–3]. En el ámbito médico, estos datos son de especial importancia en la optimización de la producción de radionucléidos. Esto involucra la selección de parámetros que maximicen el rendimiento de la producción del radionucléido requerido y minimicen la producción de impurezas. Un acabado conocimiento de la función de excitación es de suma importancia en este sentido. Usualmente hay discrepancias entre distintas mediciones y predicciones realizadas con códigos de reacciones nucleares que se basan en modelos teóricos de los procesos físicos involucrados. En el caso particular de reacciones nucleares inducidas por protones en blancos de zinc natural y a energías cercanas a 2 MeV, las secciones eficaces han sido poco exploradas. Por tal motivo un acabado análisis experimental puede ser de gran valor para la evaluación de modelos teóricos existentes y su contraste con los valores obtenidos por otros grupos de investigación en el mundo.

En medicina nuclear, el uso de radioisótopos puede separarse en dos áreas, los radioisótopos de diagnóstico y los de tipo terapéutico. En particular, el ^{67}Ga con una

vida media de 3.26 d, es utilizado en el diagnóstico de linfomas abdominales, tumores epiteliales y artrósis temporales, inflamaciones y el cáncer. La técnica utilizada, en la cual la radiación γ proviene de la desexcitación del ^{67}Ga permite la obtención de imágenes axiales mediante la técnica SPECT¹. Los fotones son emitidos por el radiofármaco desde el interior del organismo y usualmente es elaborado en laboratorios y centros de física nuclear listo para la administración via intravenosa. Actualmente la producción de este radionucléido se realiza en base a las reacciones $^{68}\text{Zn}(p,2n)^{67}\text{Ga}$ y $^{67}\text{Zn}(p,n)^{67}\text{Ga}$ [1] en donde ambas requieren blancos enriquecidos de alta pureza y un haz de protones de energías mayores que 10 MeV.

En astrofísica, la medición de secciones eficaces es de importancia vital en el modelamiento de la evolución estelar y de la nucleosíntesis. De tales mediciones se obtienen las correspondientes tasas de reacción involucradas en las ecuaciones de tasas [4], que tienen que ser resueltas en los modelos de nucleosíntesis. Por medio de estas ecuaciones se puede describir el cambio de las abundancias isotópicas en un ambiente estelar de una temperatura dada. Una exitosa reproducción de abundancias de núcleos por medio de cualquier modelo de nucleosíntesis requiere el conocimiento preciso de las tasas de reacción y por lo tanto, de la sección eficaz en un cierto intervalo de energía. Este requerimiento, sin embargo, no es totalmente satisfecho en la red de más de 20000 reacciones nucleares sobre alrededor de 2000 núcleos en la región de masas de $12 \leq A \leq 210$ necesaria para, por ejemplo, reproducir las abundancias de núcleos más pesados que el hierro. Obviamente datos experimentales de todas las reacciones nucleares son difíciles de obtener, especialmente en el caso de núcleos lejos del valle de estabilidad, donde en algunos casos los códigos que utilizan el modelo de Hauser-Feshbach y otros son las únicas herramientas para estudiar una

¹(siglas en inglés, Single Photon Emission Computed Tomography), tomografía computarizada por la emisión de un fotón.

reacción nuclear y poder predecir secciones eficaces y tasas de reacción.

Es de interés en astrofísica, la medición de secciones eficaces de núcleos livianos ($1 \leq A \leq 25$), interactuando con toda clase de núcleos. El ambiente estelar en el cual se desarrollan los fenómenos astrofísicos corresponden generalmente a bajas energías (< 20 MeV) de haces de partículas en experimentos y estudios teóricos. A energías menores a 5 MeV la probabilidad de interacción es reducida debido al efecto repulsivo del potencial coulombiano. Bajo esta condición y en el caso de masas nucleares intermedias y pesadas $A \geq 25$, la sección eficaz difícilmente sobrepasa los 10 mb (incluso se obtienen valores de $1 \mu\text{b}$), que es similar a tener una baja estadística o un reducido número de eventos. De esta forma, métodos alternativos para medir estas secciones eficaces son de mucho interés. Debido a esta dificultad experimental son escasos los datos experimentales de reacciones nucleares a bajas energías lo que juega en contra de la precisión que puedan alcanzar los diversos códigos que estiman secciones eficaces los que en alguna medida recurren a parámetros ajustados de resultados experimentales. El propósito de este trabajo es aportar nuevos datos experimentales de sección eficaz de producción del radionucléido ^{67}Ga en la región de bajas energías utilizando un método que permite una incerteza experimental menor y verificar la predicción de los códigos de reacciones nucleares para la reacción en estudio en el intervalo de energía de 1.6 a 2.5 MeV.

En esta tesis se presentan resultados de la medición de la sección eficaz de la reacción $^{\text{Nat}}\text{Zn}(p,x)^{67}\text{Ga}$, en el intervalo de energía de 1.5 a 2.6 MeV, mediante un método [5] desarrollado en el Laboratorio de Física Nuclear de la Facultad de Ciencias de la Universidad de Chile. Se realizó una comparación con los escasos valores experimentales existentes en esta región de energía y con las predicciones teóricas calculadas con los códigos Alice/Ash [6] y Empire II [7].

En el capítulo 2 se exponen conceptos básicos acerca de las reacciones nucleares centrándonos en lo que es la sección eficaz. Además se muestra el esquema teórico del método aplicado en la medición de la sección eficaz. En el capítulo 3 se detalla el montaje experimental y aspectos relacionados con la preparación, caracterización y control de calidad de los blancos utilizados.

En el capítulo 4 se muestran los resultados finales y se hace una comparación con los resultados obtenidos por otros autores y valores de secciones eficaces calculadas con modelos teóricos. Finaliza este trabajo con el capítulo 5, donde se presentan las conclusiones derivadas del experimento y se plantean las posibilidades de extender estas mediciones a otros sistemas.

Capítulo 2

Teoría

En este capítulo se describe el sustento teórico básico acerca de las reacciones nucleares, y como éstas pueden ser clasificadas. A continuación se muestra el análisis previo de las otras posibles reacciones que pudieran interferir en las mediciones desarrolladas en esta tesis. Por último se muestra el enfoque teórico utilizado en el cálculo de la sección eficaz experimental.

2.1. Clasificación de las reacciones nucleares

Una reacción nuclear es un proceso que ocurre cuando un proyectil (núcleo o nucleón) golpea un núcleo blanco. En la interacción puede producirse un intercambio de energía y de momentum y como resultado, radiación γ y posiblemente una o más partículas pueden ser emitidas desde el punto de contacto en todas direcciones. En muchas ocasiones estos productos son especies distintas de las originales, por lo que puede ser necesaria una clasificación de estas reacciones.

Una típica reacción nuclear puede ser simbolizada como:



donde a es la partícula incidente, X es el núcleo blanco, Y y b son los productos de la

reacción. Usualmente b es una partícula liviana detectable (n , p , d y α). En algunos casos, la partícula b puede ser radiación γ y en tal caso, la reacción es llamada *captura radiativa*.

Las reacciones nucleares pueden ser clasificadas de acuerdo al resultado de la reacción. Cuando los productos de la reacción Y y b son los mismos que el canal de entrada X y a entonces la reacción se denomina dispersión¹ elástica. La dispersión elástica es una colisión en la cual, las partículas interactuantes sólo cambian su dirección de movimiento y posiblemente la orientación del spin. No hay excitación interna, por lo que la diferencia de energía entre el canal de entrada y el de salida $Q = 0$ y los núcleos participantes de la colisión permanecen en sus estados bases. El scattering inelástico sucede cuando parte de la energía cinética es usada en la excitación de una o ambas partículas interactuantes. En este caso los productos siguen siendo los mismos que el canal de entrada y se denota como $A(a,a')A'$. Si en la colisión se producen otras partículas distintas a las que constituyen el canal de entrada, estamos en presencia de una reacción nuclear².

Cuando los núcleos interactuantes son livianos ($A < 25$) y a bajas energías ($E < 1$ MeV), la transferencia de energía es suficiente para excitar solo niveles nucleares discretos. Esto da origen a la observación de resonancias aisladas en la sección eficaz [8, 9]. Este fenómeno tiene interesantes aplicaciones como la calibración en energía de aceleradores de partículas y la determinación de perfiles de densidad de elementos livianos como el Flúor. Para energías del proyectil mayores a 2 MeV el espectro de energía pierde su carácter discreto y se transforma en continuo. Por una parte la densidad de niveles crece de manera que es imposible distinguir niveles individuales.

¹En inglés, scattering

²En ocasiones, en la literatura se agrega también la dispersión inelástica

A energías que exceden el umbral de emisión de un neutrón, se abre otra posibilidad (canal) para la reacción. En estos casos se dice que hay una competencia entre canales, por ejemplo entre el canal (p,γ) y (p,n) . Cuando se sobrepasa el umbral de emisión de neutrón, es más eficiente para el núcleo compuesto reducir su energía de excitación emitiendo un neutrón más que por radiación γ .

Dentro de los modelos aceptados para entender los procesos físicos involucrados en una reacción nuclear están los modelos de formación de núcleo compuesto y el de interacción directa. En el proceso de formación de núcleo compuesto, la energía transferida por el proyectil es repartida entre todos los nucleones del núcleo compuesto. Este proceso toma más tiempo que el usado por el proyectil en atravesar el núcleo blanco. Por otro lado, en el mecanismo de interacción directa, el intercambio de energía es con unos pocos nucleones del blanco, y una partícula es rápidamente emitida en tiempos en torno al requerido por el proyectil para atravesar el núcleo blanco. También es posible diferenciar ambos procesos observando la distribución de velocidades de las partículas emitidas. Dentro del núcleo compuesto la energía es repartida debido a colisiones entre nucleones. Como resultado de los muchos cambios de dirección, la velocidad de los nucleones en el núcleo compuesto es distribuida isotrópicamente. Se dice entonces, que en núcleo compuesto tiene una distribución de velocidades Maxwelliana. Las partículas emitidas desde el núcleo compuesto también presenta una distribución de velocidades Maxwelliana. En el caso de la distribución angular de las partículas emitidas se podría pensar de que la distribución es isotrópica. Esto es aproximadamente cierto. Cuando la partícula incidente entra al núcleo blanco esta transfiere su momento angular al núcleo compuesto otorgándole un espín. Cuando el sistema esta girando, la fuerza centrífuga facilita la emisión de partículas en dirección perpendicular al eje del espín.

En el intervalo de baja energía 0-5 MeV, es raramente significativo el mecanismo de interacción directa. Es por este motivo que concentraremos nuestra atención al mecanismo de formación de núcleo compuesto³.

2.2. El núcleo compuesto

Suponiendo que el parámetro de impacto es pequeño comparado con el radio nuclear, existe una mayor probabilidad de que el proyectil interactúe con un nucleón del blanco, a su vez pueden existir colisiones sucesivas con otros nucleones. La energía del proyectil es así repartida entre todos los nucleones del sistema proyectil-blanco. El incremento en energía del núcleo puede ser insuficiente para liberar un nucleón. Sin embargo, existe una pequeña probabilidad de que se escapen nucleones proceso análogo a las moléculas que se evaporan de un líquido caliente. A tal estado intermedio se le denomina *núcleo compuesto*. Una reacción de núcleo compuesto puede ser representado como:



donde C^* es el estado de núcleo compuesto. En el modelo de reacciones nucleares de tipo núcleo compuesto, la probabilidad relativa de decaimiento a un conjunto de productos específicos es un proceso independiente de la formación del núcleo compuesto (hipótesis de Bohr). La probabilidad de decaimiento depende de la energía del sistema y se olvida del proceso de formación. El decaimiento es gobernado primeramente por reglas de tipo estadística.

Otra característica de estas reacciones de núcleo compuesto es la distribución

³Sin embargo, al considerar toda la escala de energía, los fenómenos son mejor explicados cuando se mezclan ambos modelos.

angular de los productos. Debido a la interacción aleatoria entre los nucleones, esperamos que la partícula saliente sea emitida como una distribución angular isotrópica. La sección eficaz de una reacción $X(a,b)Y$ puede ser entendida como la combinación de dos procesos, siguiendo la hipótesis de Bohr:

$$\sigma(a, b) = \sigma_C(a)G_C(b), \quad (2.3)$$

aquí $\sigma_C(a)$ daría cuenta de la probabilidad de formación del núcleo compuesto y $G_C(b)$ es la probabilidad de decaimiento por un determinado canal. La sección eficaz de formación de núcleo compuesto y la probabilidad de decaimiento se calculan a partir de coeficientes de transmisión. Estos coeficientes dependen de los parámetros semi-empíricos del modelo óptico y de la densidad de niveles del sistema.

2.3. Región de interés en la carta de radionuclídeos y canales de reacción permitidos

Otros canales de reacción están permitidos en esta región de energía. Los posibles canales descontando aquellos que producen núcleos estables son presentados en la figura 2.1 y a continuación.

$^{64}\text{Zn}(p,\gamma)^{65}\text{Ga}$ Con un valor $Q=3.94$ MeV, esta reacción es energéticamente posible y tiene una alta probabilidad. El radionuclídeo formado, ^{65}Ga , decae por captura electrónica y tiene una vida media de 15.2 m. Luego de un tiempo de “enfriamiento” de ~ 1 hr, puede ser despreciada la interferencia de este radioisótopo.

$^{66}\text{Zn}(p,\gamma)^{67}\text{Ga}$ Este canal de reacción tiene un valor $Q=5.27$ MeV y es uno de los canales que producen el ^{67}Ga .

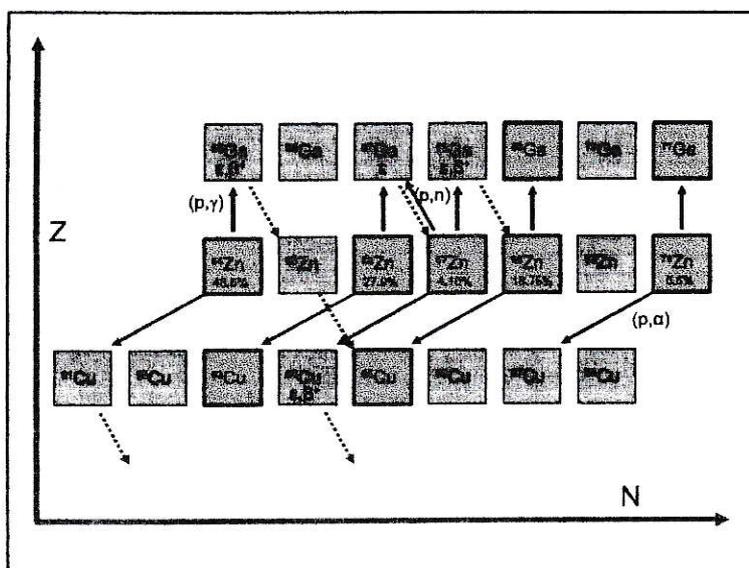


Figura 2.1: Región de interés en la carta de radionucléidos. A energías del haz mayores a 1.81 MeV, se abre el canal de reacción (p,n), para el isótopo ^{67}Zn .

$^{67}\text{Zn}(p,\gamma)^{68}\text{Ga}$ Energéticamente favorable ($Q=6.49$ MeV). Se produce el radionucléido ^{68}Ga el cual tiene una vida media de 67.8 min. Luego de 5hr de tiempo de “enfriamiento” la interferencia puede ser despreciada.

$^{67}\text{Zn}(p,n)^{67}\text{Ga}$ Este canal tiene un Q de reacción de -1.78 MeV. Con una energía de los protones incidentes mayor que la energía umbral de 1.81 MeV, es posible formar el ^{67}Ga mediante la emisión de un neutrón. Este canal constituye un canal de competencia cuya sección eficaz crece rápidamente desde los 1.81 MeV teniendo un máximo en torno a los 10 MeV. En centros de medicina nuclear y producción de radioisótopos, es una de las reacciones preferidas en la producción de ^{67}Ga debido al máximo de la sección eficaz que alcanza un valor en torno a 600 mb en blancos enriquecidos de ^{67}Zn .

$^{64}\text{Zn}(p,\alpha)^{61}\text{Cu}$ Con un valor $Q=0.84$ MeV. Se forma el radionucléido ^{61}Cu , el cual puede ser discriminado por el sistema espectroscópico.

$^{67}\text{Zn}(p,\alpha)^{64}\text{Cu}$ $Q=2.41$ MeV, produciéndose el radioisótopo ^{64}Cu , el cual, decae mediante captura electrónica en un 43.1%, β^+ en un 17.9% y β^- en un 39.0%. Dada la baja sección eficaz estimada mediante códigos, se descarta como fuente de incerteza en el rango de energía utilizado en el acelerador Van de Graaff.

$^{70}\text{Zn}(p,\alpha)^{67}\text{Cu}$ Este canal presenta la posibilidad de producir ^{67}Cu . No presenta interferencia en la medición, por los argumentos discutidos más arriba.

En conclusión, la sección eficaz de producción de ^{67}Ga es la suma de las secciones eficaces de los canales $^{66}\text{Zn}(p,\gamma)$ y $^{67}\text{Zn}(p,n)$ multiplicado por un factor de peso igual a las abundancias relativas, 0.279 para ^{66}Zn y 0.041 para ^{67}Zn ;

$$\sigma_T = 0,279 \times \sigma_{p,\gamma} + 0,041 \times \sigma_{p,n}. \quad (2.4)$$

2.4. Cálculo de la sección eficaz de producción experimental

La actividad en función del tiempo de un blanco irradiado esta dada por; el flujo de partículas incidentes, la densidad isotópica del blanco y la sección eficaz. La actividad del blanco mientras es irradiado es puede escribir como:

$$A(t) = \sigma(E)n_z\phi(1 - e^{-\lambda t}), \quad (2.5)$$

donde $A(t)$ es la actividad total del blanco al cabo de un tiempo de irradiación t . Es preciso notar aquí que es necesario hacer una corrección con respecto al n_z utilizado

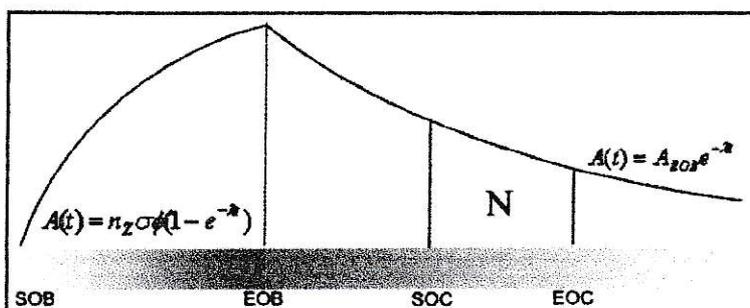


Figura 2.2: Esquema de los tiempos involucrados en la medición de la sección eficaz. T , tiempo de irradiación. t_1 y t_2 tiempos de inicio y final de la detección de eventos. N representa el número de eventos de decaimiento que provienen del radionuclideo producido.

en el esquema teórico. Se usará n_{zn}^* para decir que es la densidad atómica del blanco que considera todos los isótopos que al ser bombardeados por protones pueden producir el ^{67}Ga . Como se vió en la subsección anterior, en el intervalo de energía hasta 3 MeV los canales que pueden dar origen al ^{67}Ga son aquellos canales que se originan a partir de isótopos ^{66}Zn y ^{67}Zn . La ecuación (2.5) queda entonces,

$$A(t) = \sigma(E)n_{zn}^*\phi(1 - e^{-\lambda t}). \quad (2.6)$$

Es posible también conocer la actividad al cabo de un tiempo T de irradiación desde el término de la irradiación o EOB⁴ colectando eventos asociados a captura electrónica desde un tiempo t_1 a t_2 . La figura 2.2 muestra un esquema de la idea anterior.

$$A(T) = \frac{N\lambda e^{-\lambda T}}{e^{-\lambda t_1} - e^{-\lambda t_2}}. \quad (2.7)$$

Combinando ambas expresiones la sección eficaz:

$$\sigma(E) = \frac{N\lambda}{n_{zn}^*\phi(e^{\lambda T} - 1)(e^{-\lambda t_1} - e^{-\lambda t_2})} \quad (2.8)$$

⁴Siglas en inglés; End Of Beam

Aquí es preciso notar que el número de eventos detectados esta condicionado por parámetros experimentales como :

- Eficiencia del detector.
- Fracción de eventos que corresponden en este caso al tipo de evento deseado.
- Factores que dan cuenta de la probabilidad de detectar un rayo x.
- Atenuación de la radiación x en la materia.

Considerando los factores mencionados arriba, la ecuación (2.8) se transforma en:

$$\sigma(E) = \frac{N_{exp}\lambda}{n_{Zn}^*\phi(e^{\lambda T} - 1)(e^{-\lambda t_1} - e^{-\lambda t_2})f_{EC}G_x}, \quad (2.9)$$

donde $N_{exp} = NG_x$ y G_x es un factor definido como:

$$G_x = g_\alpha\omega\epsilon\Pi\Omega/4\pi, \quad (2.10)$$

donde g_α es el factor asociado a la probabilidad de tener una transición a la capa K_α , ω es la probabilidad radiativa o fluorescencia, ϵ es el factor relacionado con la eficiencia del sistema de detección, Π es el factor relacionado con la atenuación de la radiación x en el material y Ω es el ángulo sólido que distiende el detector. La medición de estos parámetros son por naturaleza difíciles y obliga a la repetibilidad del experimento. Sin embargo, mediante un análisis PIXE complementario puede ser determinado el factor G_x . En el experimento de análisis PIXE, es determinado el número de eventos de emisión de radiación x característica, N_x , inducida en el blanco por la irradiación con protones durante un tiempo τ . La expresión que vincula los parámetros de tal análisis está dada por:

$$N_x = \sigma_x n_{Zn}^{Nat} \phi_p \tau (g_\alpha \omega \epsilon \Pi \Omega / 4\pi), \quad (2.11)$$

donde σ_x es la sección eficaz de ionización o probabilidad de excitar la capa atómica correspondiente a la línea K_α , n_{Zn}^{Nat} es la densidad superficial atómica del zinc, ϕ_p es el flujo de protones y τ es el tiempo de irradiación. Estos últimos parámetros pueden ser agrupados como $G_x = g_\alpha \omega \epsilon \Pi \Omega / 4\pi$ y reescribiendo la ecuación (2.11) se obtiene,

$$G_x = \frac{N_x}{\sigma_x(E_p) n_{Zn}^{Nat} \phi_p \tau}. \quad (2.12)$$

Reemplazando (2.12) en la ecuación (2.9) se obtiene finalmente la sección eficaz calculada a partir de cantidades físicas experimentales tales como, tiempos de irradiación, número de eventos detectados, flujo de partículas y espesores de los blancos,

$$\sigma(E) = \sigma_x(E_p) \frac{N_{exp} n_{Zn}^{Nat} \phi_p}{N_x n_{Zn}^* \phi} \Delta, \quad (2.13)$$

con Δ como el factor temporal que relaciona los tiempos involucrados en ambas irradiaciones junto con la probabilidad de decaimiento por el mecanismo de captura electrónica,

$$\Delta = \frac{\lambda \tau}{f_{EC}(e^{\lambda T} - 1)(e^{-\lambda t_1} - e^{-\lambda t_2})}. \quad (2.14)$$

2.5. Rendimiento de producción

Si es conocida la sección eficaz de producción de una reacción, es posible además, determinar la tasa de producción o rendimiento de producción del radioisótopo requerido. La actividad alcanzada por un blanco después de un tiempo de irradiación T puede ser calculada por,

$$A_{EOB} = n_z \sigma \phi (1 - e^{-\lambda T}), \quad (2.15)$$

Donde σ es la sección eficaz de producción, ϕ (número de partículas/s) representa el flujo de partículas, n_z es la densidad superficial atómica es expresada en número

de átomos/cm² y λ es la constante de decaimiento. Si la actividad A_{EOB} es conocida, entonces la actividad expresada en μCi es obtenida a través de,

$$A_{\text{SAT}} = A_{\text{EOB}} \left[3,7 \times 10^4 (1 - e^{-\lambda\tau}) \right]^{-1}. \quad (2.16)$$

Así, el rendimiento de producción puede ser obtenido de:

$$Y(E) = \frac{A_{\text{SAT}}}{\langle I \rangle}, \quad (2.17)$$

donde $\langle I \rangle$ es la corriente promedio en la irradiación.

Capítulo 3

Método experimental

Las mediciones fueron realizadas usando el acelerador de partículas Van de Graaff KN 3750 (ver figura 3.1). El experimento consiste en la activación de un blanco, previamente caracterizado, mediante una irradiación con protones y en la colección del número de eventos correspondientes a radiación X característica provenientes del radionuclídeo formado en la irradiación. En la irradiación de los blancos el haz es generado y direccionado en una sucesión de tres etapas. Un plasma del gas requerido (H^+), es producido por una fuente de iones. Las partículas del plasma son extraídas y aceleradas por potenciales electrostáticos, y un imán selector de masa selecciona y dirige la partícula mediante campos magnéticos, hacia la cámara de irradiación. Todo lo anterior se efectuó en condiciones de alto vacío en torno a 5×10^{-6} Torr en el tubo acelerador y de 50 a 100×10^{-6} Torr en la cámara de producción. En la cámara de producción se posiciona el blanco y se habilita el sistema de enfriamiento. Después de la irradiación el blanco es retirado de la cámara y luego se procede con la detección y acumulación de los rayos X característicos provenientes del blanco en la línea correspondiente a los análisis PIXE. La radiación X característica (evento

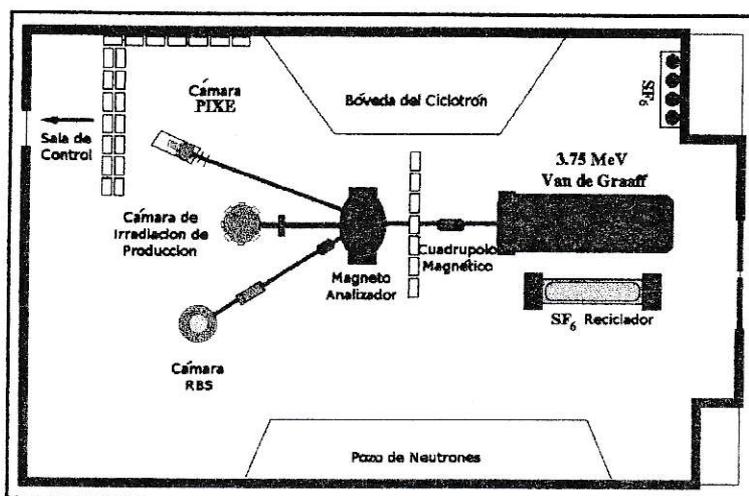


Figura 3.1: Instalaciones del acelerador Van de Graff KN 3750.

derivado de la captura electrónica) es registrada por un detector de Si(Li) y una tarjeta multicanal se ocupa del almacenamiento de estos pulsos y de convertir estas señales en espectros de energía y número de eventos. En este capítulo se muestran las distintas etapas del experimento, que se divide en la preparación de los blancos, análisis de la calidad de los blancos más una breve descripción de la calibración en energía del acelerador y finalmente las irradiaciones de producción.

3.1. Preparación de los blancos.

Los blancos utilizados en las irradiaciones fueron fabricados en el laboratorio mediante la implementación de una planta evaporadora, figura 3.2. Esta planta fue armada completamente en el laboratorio y consiste en un sistema de alto vacío basado en una bomba turbomolecular que alcanza un vacío del orden de 10^{-6} Torr. Como respaldo de la bomba turbomolecular se utiliza una bomba rotatoria. Una segunda rotatoria hace prevacío en la cámara de evaporación. El método empleado en

la fabricación de los blancos es conocido como deposición de material por evaporación en vacío [10,11] o PVD¹. Este método consiste en la evaporación del material mediante calentamiento en un canasto especialmente preparado de un material conductor de electricidad y resistente a altas temperaturas. El filamento elegido para confeccionar el canasto fue un alambre de molibdeno obtenido de GoodFellowTM. Un transformador reacondicionado entregó una corriente de hasta 70 amperes, lo que permitió alcanzar altas temperaturas en el filamento. El material evaporado se depositó en vidrios portaobjetos de microscopio en los que previamente había sido depositada una capa de una sal soluble al agua (BaCl_2). Posteriormente los vidrios fueron sumergidos en agua destilada y de esta forma, la película fue desprendida del vidrio por efecto de la tensión superficial y la disolución de la sal. Luego la película fue recogida con el porta-blancos requerido. Condiciones de limpieza son fundamentales al fabricar estos blancos, con el fin de asegurar un nivel de pureza aceptable verificado con análisis que serán discutidos en la próxima sección. En todo momento se debe evitar el daño mecánico producido por el manipulador sobre las películas, para este fin se usan guantes quirúrgicos y una mascarilla.

3.2. Análisis de contaminantes y de espesores de los blancos de Zn

3.2.1. Acelerador Van de Graaff

El acelerador Van de Graff KN3750 utilizado en las mediciones es del tipo electrostático y genera diferencias de potencial que permiten obtener haces de partículas

¹Siglas en Inglés, Physical Vapor Deposition.

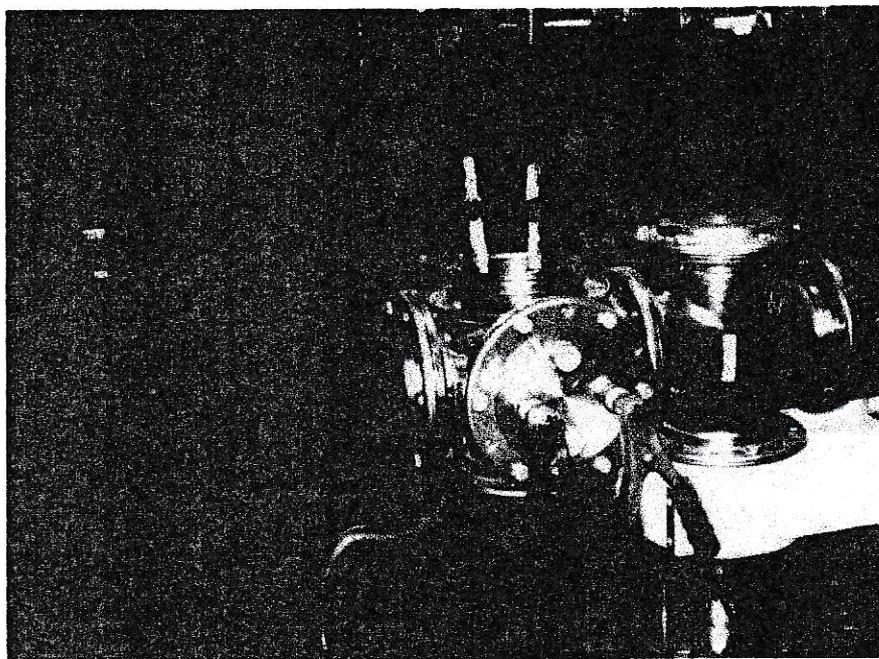


Figura 3.2: Planta de evaporación utilizada en la fabricación de los blancos de zinc

desde los 100 hasta 3750 keV de energía. En la próxima subsección se muestra la calibración del acelerador Van de Graaff, que es necesaria para determinar la energía del haz empleado en las irradiaciones.

Calibración de la energía del acelerador

El método usado en la calibración de la energía del acelerador, consistió en detectar los valores máximos de la producción de partículas o radiación γ de reacciones a energías que están bien estudiadas [12,13]. A ciertos valores de energía de los protones incidentes en un blanco de un elemento liviano ($A < 25$), se presenta un aumento de la sección eficaz de retrodispersión elástica. Este fenómeno es conocido como dispersión elástica resonante.

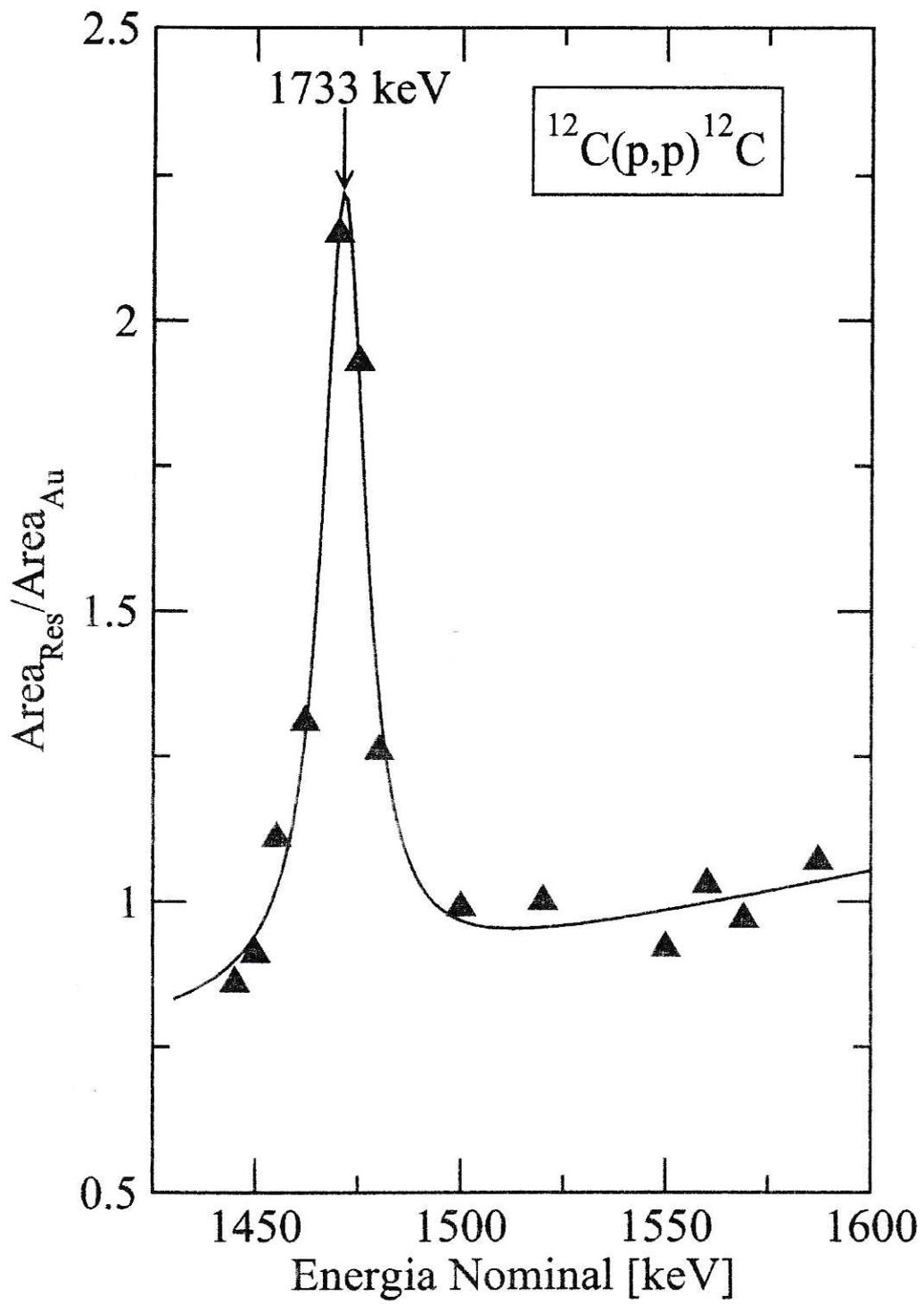


Figura 3.3: Resonancia en la reacción $^{12}\text{C}(\text{p,p})^{12}\text{C}$ a una energía de 1733 keV. Blanco de mylar con una capa de oro.

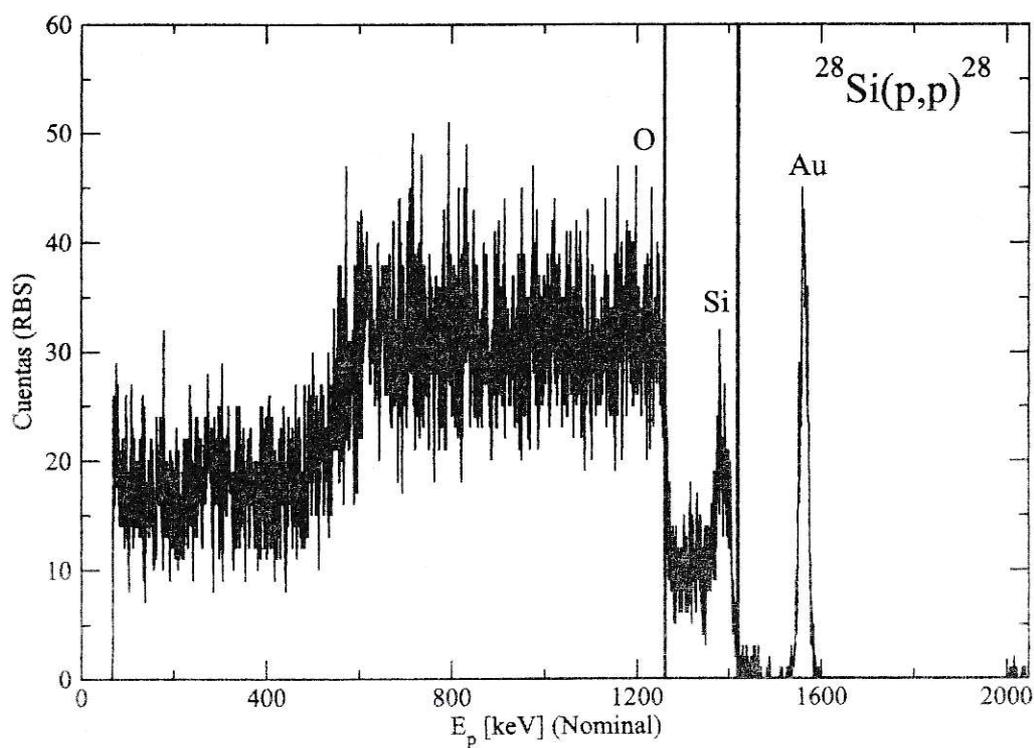


Figura 3.4: Espectro de energía de los protones retrodispersados en la interacción con el blanco de vidrio y una capa de oro. El pico en la retrodispersión de los protones que se observa entre las franjas es debido a la resonancia de la reacción $^{28}\text{Si}(p,p)^{28}\text{Si}$.

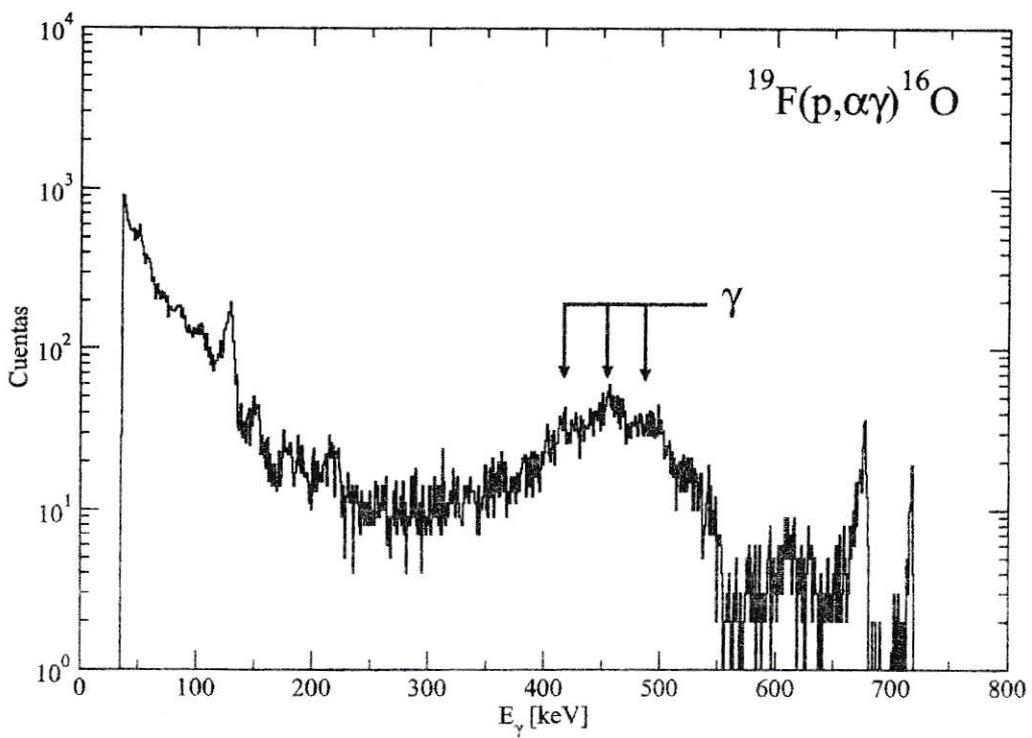


Figura 3.5: Espectro de radiación γ de la reacción $^{19}\text{F}(p, \alpha\gamma)^{16}\text{O}$. Las flechas indican los γ s considerados en la medición de la resonancia.

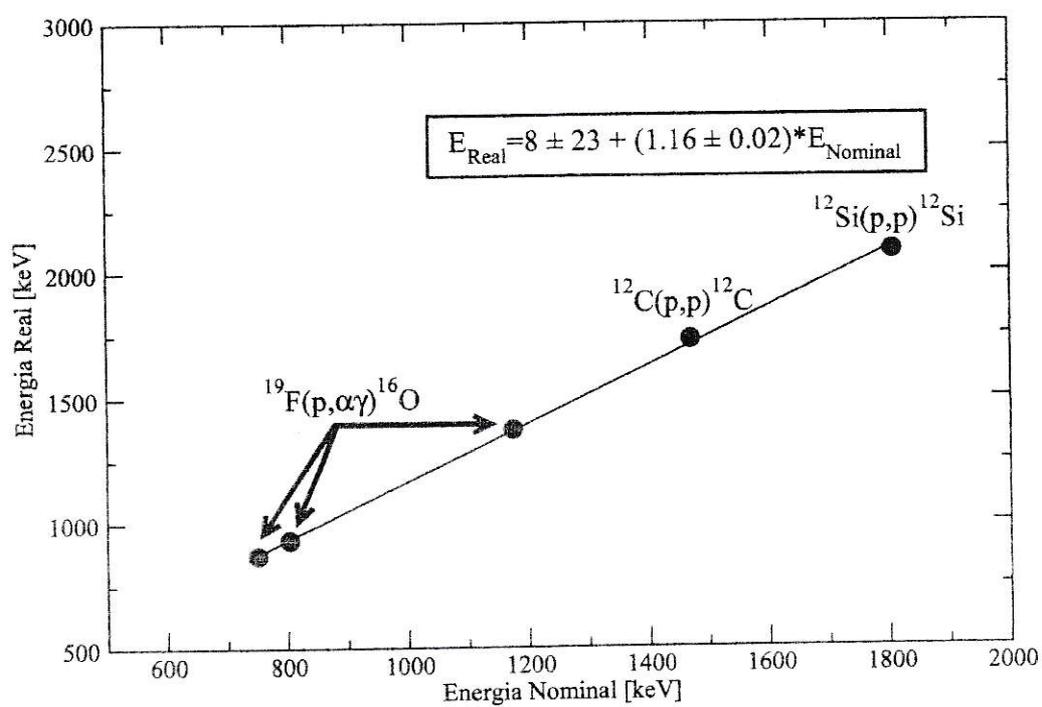


Figura 3.6: Curva de calibración del acelerador VDG KN3750.

El método consiste en hacer que el haz generado por el acelerador recorra un intervalo de energía donde pueda ser encontrada una resonancia. El rendimiento de partículas retrodispersadas es graficado en función de la energía incidente. Mediante un ajuste con curvas tipo Breit-Wigner [14] es posible obtener parámetros como el ancho de la resonancia y la energía a la cual sta se presenta (centroide de la curva de ajuste). Una vez determinado el ancho y la energía, se verifica en la literatura la correspondencia con valores reportados por otros autores. Así, el primer punto de calibración fue obtenido utilizando un blanco de *mylar*, constituido por carbón, hidrógeno y oxígeno ($C_{10}H_8O_4$). El carbón presenta una resonancia en la sección eficaz de dispersión elástica de protones en torno a una energía de 1733 keV real [13] (ver figura 3.3). El segundo punto se obtuvo midiendo el espectro de energía de la retrodispersión de protones sobre un blanco de vidrio y oro. El silicio en el vidrio presenta una resonancia conocida a una energía real de 2085 keV. Otros tres puntos de calibración fueron obtenidos detectando la producción de rayos γ pronto en la reacción $^{19}F(p,\alpha\gamma)^{16}O$. Las energías de las resonancias utilizadas en la calibración corresponden a las conocidas resonancias a energías del haz de protones de 872, 934 y 1375 keV [15–17]. La figura 3.5, muestra un espectro de radiación γ registrado durante la irradiación. La figura 3.6 muestra los puntos de calibración y la recta de ajuste. El resultado de la calibración esta dado en la tabla 3.1.

3.2.2. Análisis de los blancos mediante el método PIXE

Mediante el bombardeo de un blanco con partículas cargadas, se induce la emisión de radiación X característica lo que permite identificar elementos presentes en el blanco. En la técnica PIXE² [18, 19], las partículas incidentes interactúan con la

²Proton induced X-ray emission, emisión de radiación X característica inducida por protones.

Tabla 3.1: Resultado de la calibración en energía del acelerador Van de Graaff.

Ecuación: $E_{\text{REAL}} = (m \pm \Delta m) \times E_{\text{NOM}} + n \pm \Delta n$	
m	1.16 [keV/Canal]
Δm	0.02 [keV/Canal]
n	8 [keV]
Δn	23 [keV]
Incerteza promedio	3%

materia arrancando electrones de los distintos niveles o capas electrónicas del átomo. El átomo excitado puede perder energía cuando un electrón de capas superiores llena las vacancias producidas en las capas K o L . Este electrón baja de nivel emitiendo un fotón de energía bien establecida y de tipo discreta. Si un electrón de la capa L llena una vacancia producida en la capa K entonces el rayo x emitido se denomina K_{α} , de la misma forma K_{β} es el fotón que proviene de la capa M , y así con capas sucesivas. El montaje implementado para estas mediciones se muestra en la figura 3.7. El blanco es posicionado en un ángulo de 45° con respecto al haz y el detector se encuentra a un ángulo de 90° con respecto al haz.

Detección de radiación X

El sistema de detección de radiación X, consta de un detector de Si(Li) con su electrónica asociada. El detector es de tipo semiconductor de Si(Li) marca Canberra_{TM} modelo 7333. El área del detector es de 30 mm^2 según datos del fabricante. El sistema electrónico asociado se constituye por un preamplificador Canberra_{TM} modelo 2008, un amplificador Ortec_{TM} modelo 672 una fuente de alto voltaje Ortec_{TM} 210, un conversor análogo digital de señales y un analizador multicanal Ortec_{TM}.

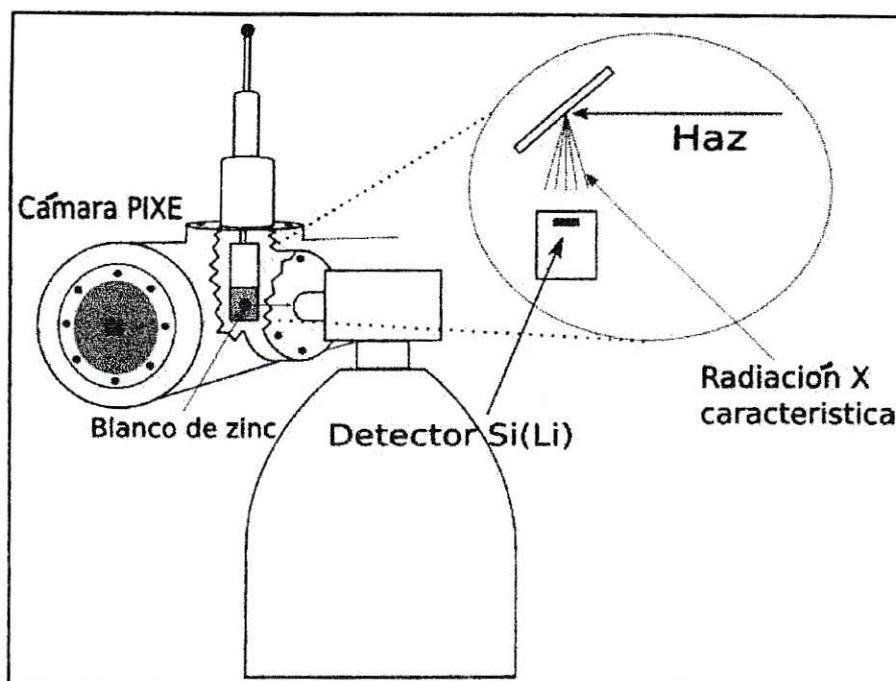


Figura 3.7: Montaje experimental del análisis PIXE. El mismo arreglo es utilizado en la medición de la radiación x característica provenientes del blanco después de la irradiación.

Los espectros de radiación X obtenidos son ajustados teóricamente con el código AXIL [20]. Mediante el ajuste se observó la presencia de hierro en el soporte de aluminio. Se detectaron otros contaminantes que pese a su existencia no interfieren en las mediciones de la sección eficaz. Los resultados de estos análisis son resumidos en la figura 3.8.

3.2.3. Medición de espesores mediante RBS.

Esta técnica se basa en la medición del espectro de energía de las partículas que son retrodispersadas elásticamente por los núcleos del blanco [19, 21]. En la actualidad esta técnica es fundamental en el análisis de tipo no destructivo usándose

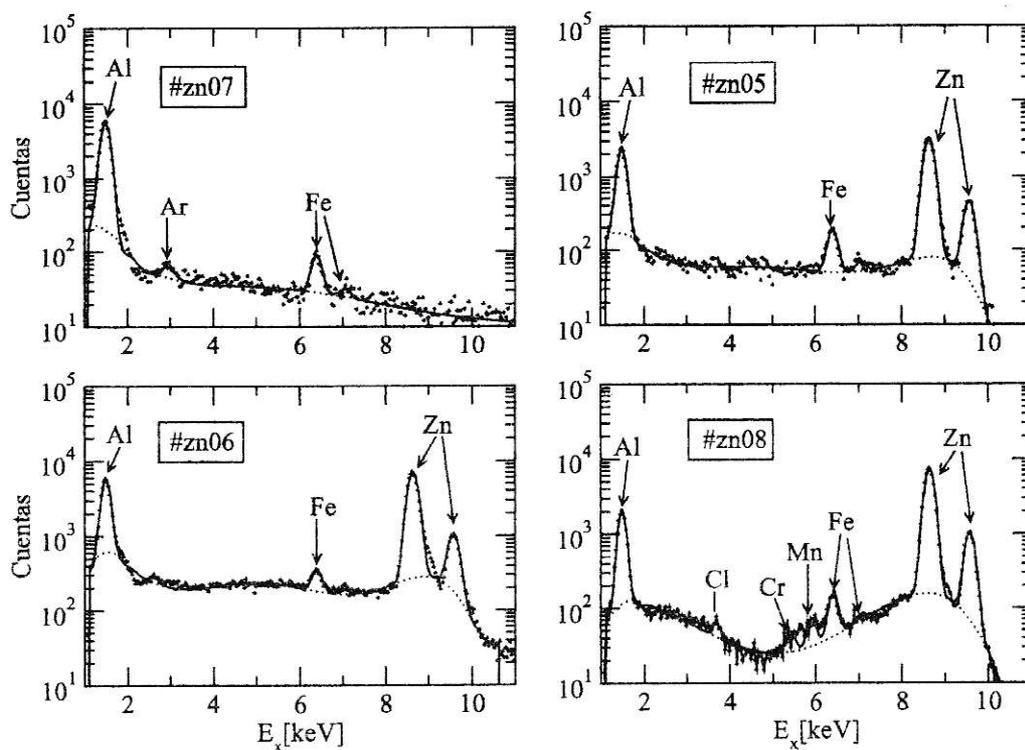


Figura 3.8: Espectro de energía de rayos x emitidos por cada blanco (Zn05, Zn06, Zn07 y Zn08) en el análisis con el método PIXE. Puntos corresponden a datos experimentales. La línea sólida representa el ajuste mediante el programa AXIL. El blanco Zn07 sufrió una separación de la película delgada de zinc.

principalmente en la caracterización de películas delgadas [22].

La energía y la partícula incidente son elegidos de manera tal que la dispersión de las partículas sea predominantemente dispersión coulombiana pura, (por ejemplo, iones de ^4He de 0.5-5 MeV). Si el espesor de la muestra es impenetrable para partículas α entonces puede ser usado un haz protones.

Sistema de detección de partículas retrodispersadas

El sistema de detección de partículas retrodispersadas consta de un detector de tipo

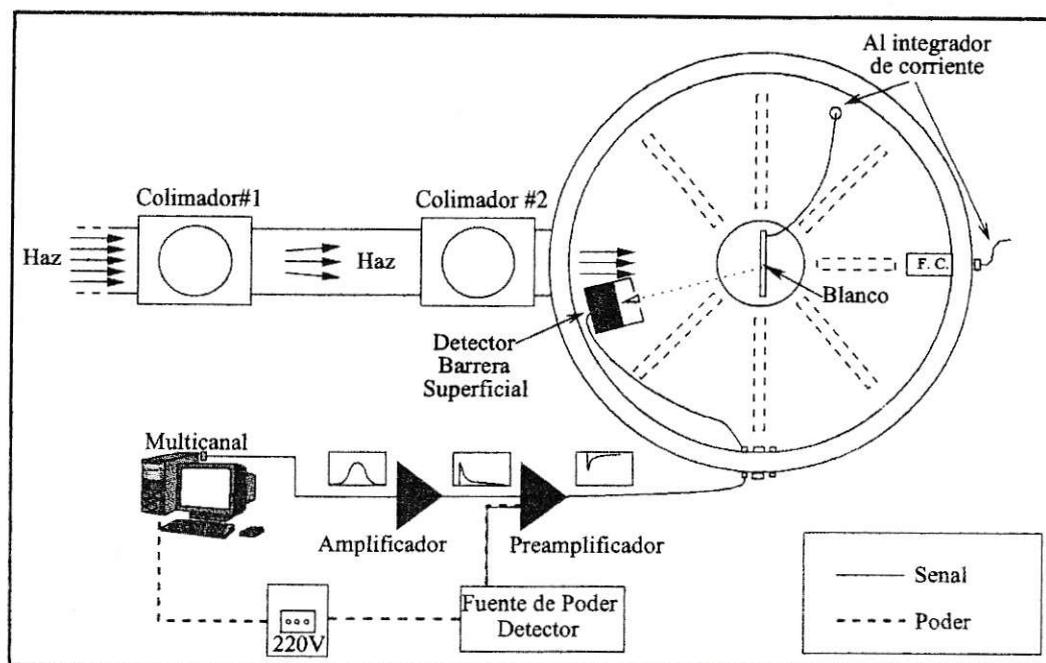


Figura 3.9: Montaje experimental del sistema de adquisición y cámara de análisis RBS.

barrera superficial posicionado a un ángulo de 165 grados. La electrónica asociada está constituida por un preamplificador Ortec modelo 142, Amplificador Ortec 571, fuente de poder Ortec 710 una fuente de voltajes continuos de ± 24 y ± 12 V Ortec 4001C. La figura 3.9 muestra un esquema del montaje electrónico y mecánico del sistema. El detector se polariza a un voltaje máximo de 20 V. La señal de ruido es de típicamente 50 mV cuando se alcanza el voltaje máximo.

Calibración del sistema RBS

Para calibrar los espectros en energía es necesario hacer una medición con esta técnica sobre un blanco de características conocidas. El blanco de calibración usado es una muestra multicapa compuesta de aluminio, tántalo y titanio que además contiene trazas de Xe, Ar, y otros elementos en menor proporción. Las capas están

depositadas sobre carbón, lo que facilita el ajuste teórico del número de partículas que llegan al detector. Esta muestra multicapa es procedente del laboratorio LAMFI³ de Brasil y fue caracterizada en ese laboratorio mediante el método RBS, haciendo uso de partículas α . El resultado del ajuste teórico hecho en Brasil con el código SIMNRA [23] fue ingresado como parámetro inicial del ajuste en el análisis con protones en nuestro laboratorio. El espectro obtenido de la muestra multicapa es ajustado nuevamente mediante el código SIMNRA ahora con un haz de protones y una energía de 2328 keV. Debido a la esperada aparición de resonancias, fue necesario incorporar datos de dispersión No-Rutherford en la capa de carbón, para ajustar adecuadamente el espectro. La figura 3.10 muestra el resultado del ajuste de la muestra multicapa de calibración en una irradiación con protones de 2328 keV.

Análisis de los blancos preparados para las irradiaciones

Un estudio de los espesores de los blancos preparados es importante en la estimación de la incerteza de las mediciones de sección eficaz, debido a la pérdida de energía de los protones a medida que penetran en el blanco. Una vez calibrado el sistema RBS se procede a analizar los blancos de zinc escogidos para las irradiaciones rotulados como Zn05, Zn06, etc. Una medición de espesor fue realizada en un blanco autosoportante, figura 3.11. Las figuras 3.12 y 3.13, muestran el resultado obtenido para los blancos Zn06 y Zn08, respectivamente. En los dos últimos casos, por debajo del canal 300, se observa la presencia del aluminio que se utiliza como soporte. En la dispersión elástica del aluminio y el protón se presentan resonancias a bajas energías (< 2.0 MeV). Estas resonancias contribuyen al aumento del número de protones que son detectados. El código SIMNRA, tomando en cuenta este fenómeno, ajusta el

³URL: <http://www.if.usp.br/lamfi/>

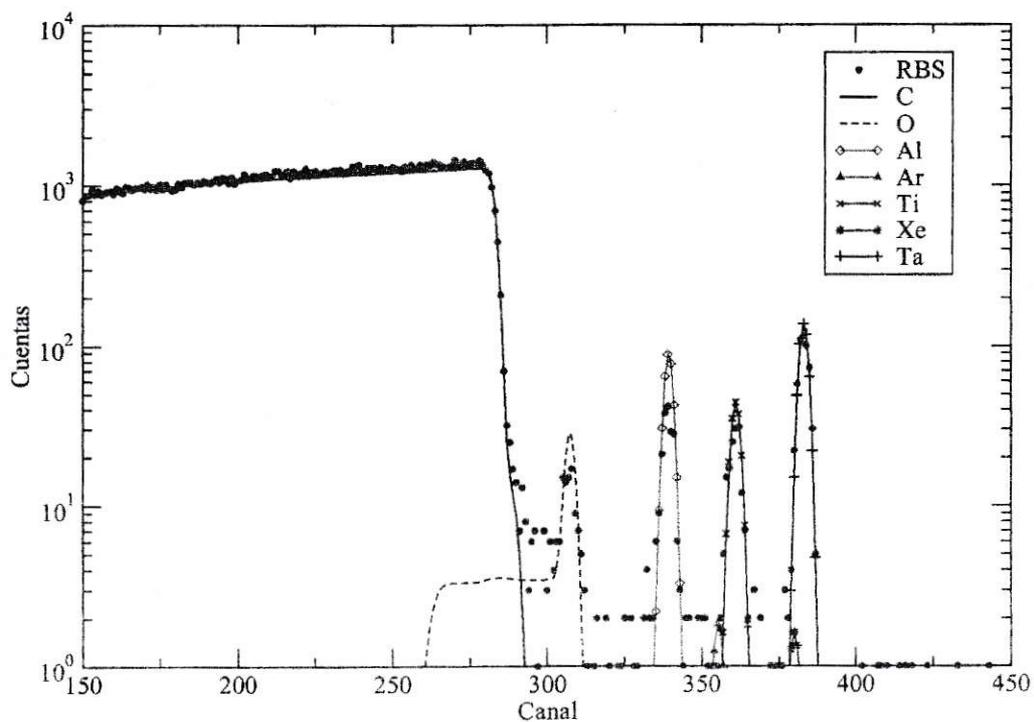


Figura 3.10: Espectro de energía de las partículas retrodispersadas del blanco de calibración. El blanco contiene capas de aluminio, titanio y tántalo, además de trazas de xenón y argón. El elemento soportante de las capas es una lámina gruesa de carbón.

Tabla 3.2: Blancos utilizados en las irradiaciones. E_p es la energía inicial del haz de protones incidente que se utilizó para cada blanco. ^aEstimado a partir de medición en blancos Zn01, Zn06 y Zn08. ^bBlanco autosoportante de comparación.

Blanco	Espesor Zn [μm]	E_p [keV]
Zn10	2.48 ± 0.21^a	1678
Zn05	2.48 ± 0.21^a	2212
Zn06	2.68 ± 0.13	2328
Zn08	2.38 ± 0.12	2444
Zn01 ^b	2.39 ± 0.12	-

espectro de energías haciendo uso de una base de datos de scattering No-Rutherford que viene incorporado.

3.3. Irradiaciones

En las irradiaciones fue utilizado un haz de protones de energías entre 1306 a 2443 MeV, con corrientes promedio de 0.54 a 1.11 μA , y tiempos de irradiación que fueron de 3 a 5.7hr. Las irradiaciones fueron realizadas en una cámara dedicada especialmente a este propósito. El blanco fue posicionado de manera perpendicular al haz. La cámara de irradiación cuenta con un sistema de enfriamiento incorporado, el cual fue probado con una irradiación de prueba en un blanco grueso.

La tabla 3.3 resume los parámetros; haces utilizados, tiempos de irradiación. Se incluye además el valor de la pérdida de energía debido al frenado de las partículas en el material. Los valores de poder de frenado son estimaciones hechas con el código

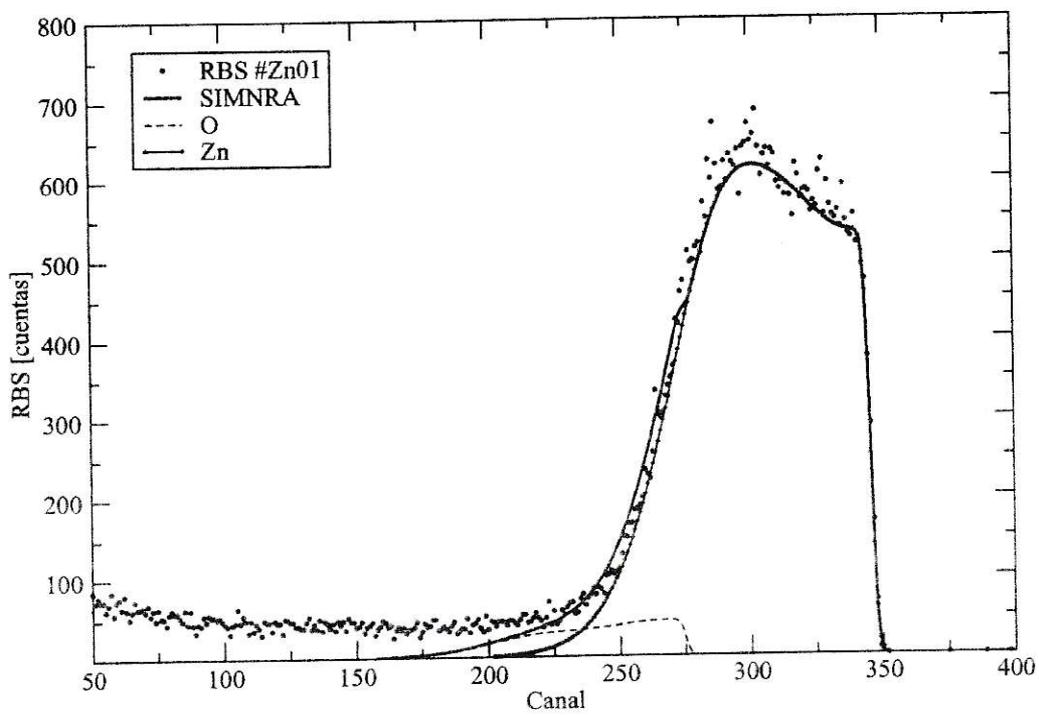


Figura 3.11: RBS blanco Zn01

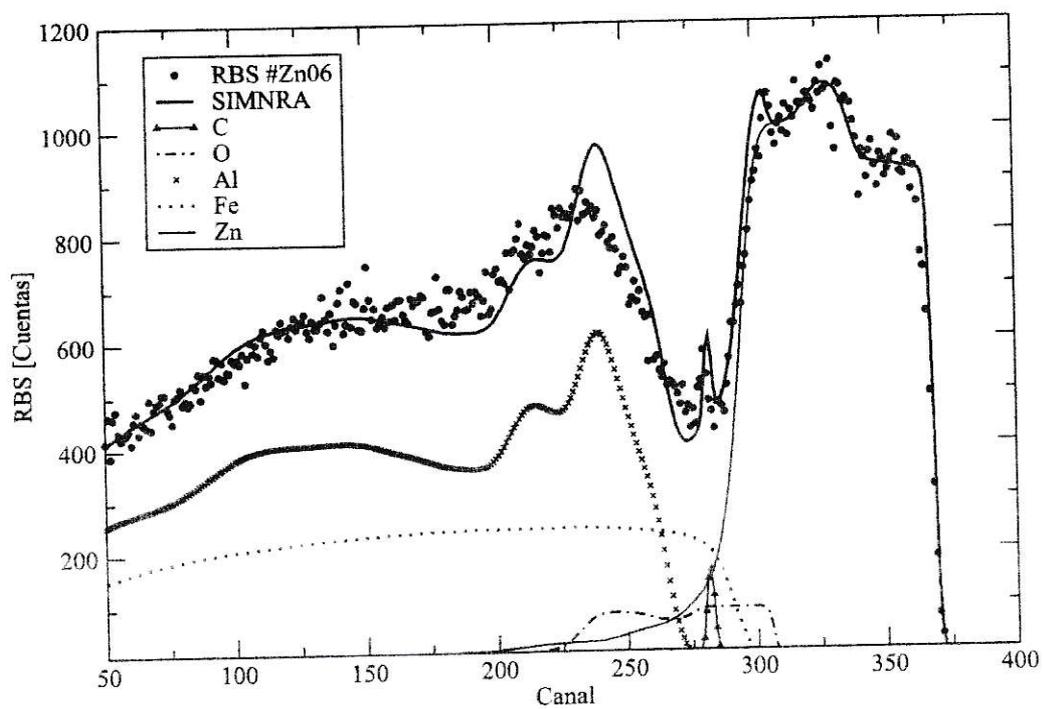


Figura 3.12: RBS blanco Zn06

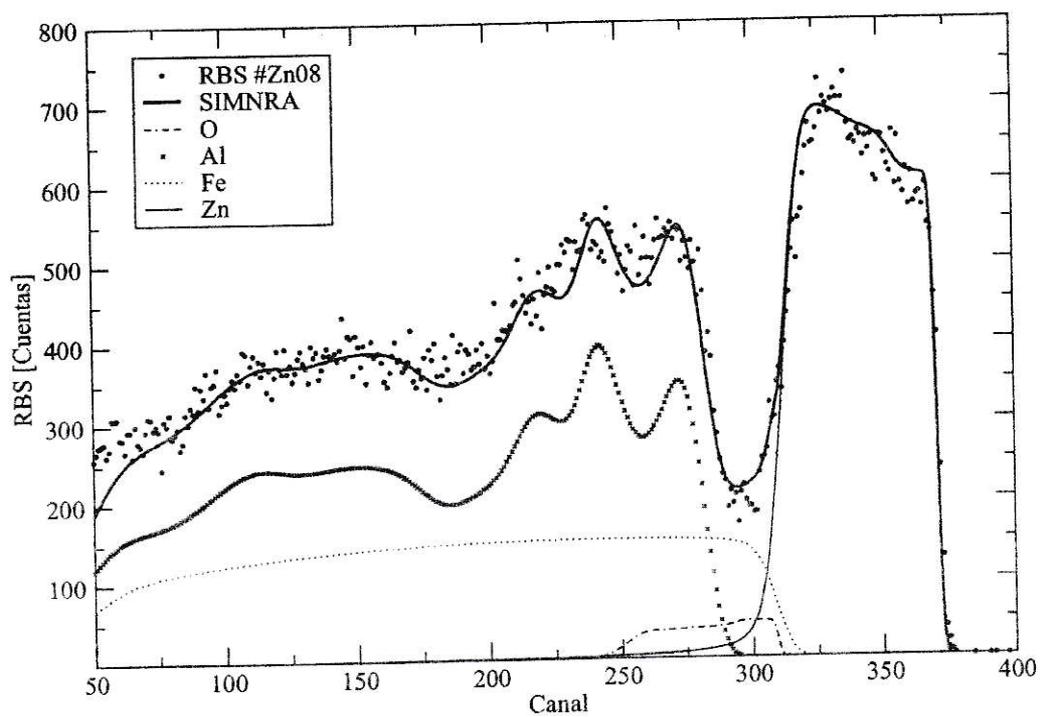


Figura 3.13: RBS blanco Zn08

Tabla 3.3: Principales características del haz utilizado en las irradiaciones por cada blanco. ΔE_p es la pérdida de energía del haz en el blanco. I es la corriente promedio y T es el tiempo de irradiación

Blanco	Energía [keV]	ΔE_p [keV]	I [μA]	T [min]
Zn10	1678	155	0.23	220
Zn05	2212	132	1.31	180
Zn06	2328	139	0.78	210
Zn08	2444	119	0.54	342

SRIM [24] (ver apéndice B).

Enfriamiento de los blancos

En la irradiación de los blancos es vital mantener la temperatura del blanco controlada y a una menor que la temperatura de fusión. Para este efecto se utiliza un sistema de enfriamiento con aire líquido, el que está integrado a la cámara de irradiación. Una medición de la temperatura alcanzada por un blanco grueso de zinc enfriado con aire líquido es mostrada en la figura 3.14. Un ajuste de los datos experimentales permite obtener las curvas de calentamiento y enfriamiento, los resultados son mostrados en la Tabla 3.4.

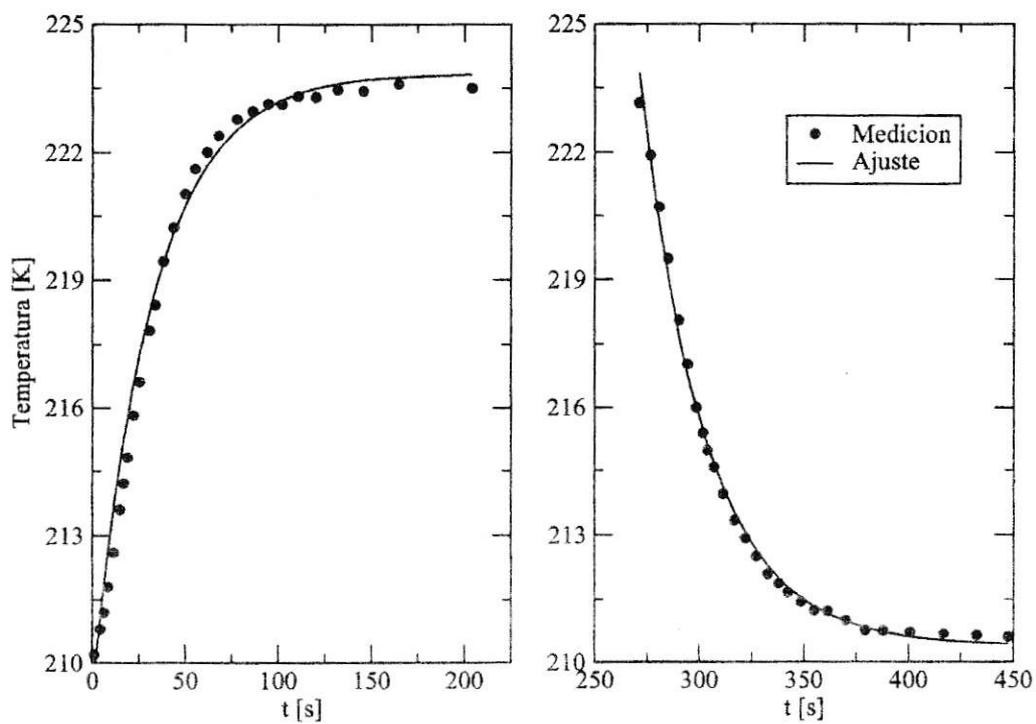


Figura 3.14: Temperatura alcanzada por el blanco en la irradiación con protones de 2.33 MeV de energía y una densidad de corriente de $0.157 \mu\text{A}/\text{mm}^2$. Se observa que la temperatura máxima alcanzada en la irradiación no sobrepasa de -60°C

Tabla 3.4: Tabla de medición del calentamiento y enfriamiento del blanco de prueba.

	Parámetro	Valor
Calentamiento	T_0	209.3 [K]
$T(t) = T_0 + (T_s - T_0) (1 - e^{-kt})$	T_s	223.9 [K]
	k	0.031 [1/s]
Enfriamiento		
$T(t) = T_s e^{-kt}$	T_s	223.5 [K]
	k	0.031 [1/s]

Capítulo 4

Resultados y Análisis

En las siguientes secciones de este capítulo son presentados los resultados obtenidos de los análisis PIXE y de la medición de la radiación x característica después de la irradiación. Se obtienen valores experimentales de la sección eficaz de producción de la reacción ${}^{\text{Nat}}\text{Zn}(p,x){}^{67}\text{Ga}$, mediante la combinación de los resultados mencionados. Se obtuvo además el rendimiento de producción de ${}^{67}\text{Ga}$ como un cálculo derivado de la medición de la sección eficaz.

4.1. Radiación X característica del zinc, resultados de los análisis PIXE

Como resultado de los análisis PIXE llevados a cabo para el control de calidad de los blancos, se obtuvo N_x el número de eventos que corresponden a emisión de radiación X característica inducida por la irradiación con protones en el blanco de zinc, durante un tiempo τ . Las tablas A.1, A.2, A.3 y A.4 muestran el número de eventos de radiación X característica inducida y otros parámetros correspondientes

al análisis PIXE.

4.2. Decaimiento del ^{67}Ga , captura electrónica

Una vez finalizada la irradiación de producción, el blanco es extraído de la cámara de producción y es colocado en la línea correspondiente a los análisis PIXE, reproduciendo parámetros experimentales como el ángulo sólido y la eficiencia del detector. El proceso de cambio de cámara llevó aproximadamente 20 min. Luego de efectuado el cambio, se hizo vacío en la línea y utilizando el sistema de espectroscopía de radiación x, se dispuso el conteo de eventos de radiación X característica del elemento Zn provenientes de la captura electrónica del decaimiento del ^{67}Ga . Los resultados experimentales obtenidos se encuentran en las tablas del apéndice A, los cuales son utilizados en la ecuación (2.13) para obtener la sección eficaz de producción. Un espectro de radiación X adquirido durante un tiempo de 90 horas se muestra en la figura 4.1. En el recuadro se señala la ubicación del peak K_{α} correspondiente al zinc. El área neta de este pico, N_x , es ingresado en la ecuación (2.13) para obtener la sección eficaz de producción.

4.3. Sección eficaz de producción

Mediante la ecuación (2.13) y los resultados obtenidos (ver tablas A.1, A.2, A.3, A.4 en el apéndice A), se obtienen los valores de las secciones eficaces experimentales de producción del ^{67}Ga , ver tabla 4.1. Las incertezas asociadas a los espesores de los blancos y la incerteza total de la sección eficaz, se calculan de acuerdo a fórmulas de propagación de errores [25]. La incerteza promedio de la sección eficaz es de 7%

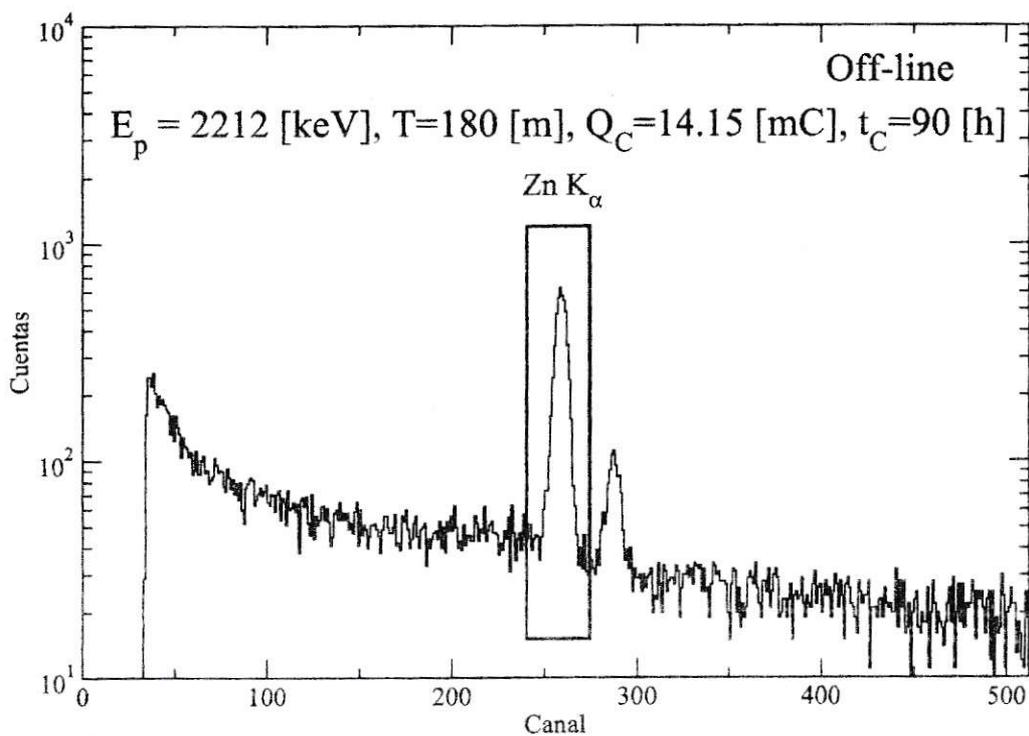


Figura 4.1: Espectro de radiación x característico emitidos después de la irradiación. Se marca el pico K_α utilizado en la aplicación del método descrito en las ecuaciones (2.7-2.13).

Tabla 4.1: Sección eficaz de la reacción ${}^{\text{Nat}}\text{Zn}(p,x){}^{67}\text{Ga}$

E_p [keV]	σ [mb]	Incerteza[mb]
1678	0.045	0.003
2212	0.204	0.014
2328	0.784	0.055
2444	2.08	0.15

aproximadamente.

4.4. Comparación con modelos teóricos

En la figura 4.2 y 4.3, se muestra una comparación entre valores experimentales obtenidos por otros autores [26–28], la predicción de los códigos Alice/Ash y EMPIRE-II y los valores experimentales obtenidos en esta tesis.

Código ALICE/Ash En este código, la descripción de la emisión de partículas de pre-equilibrio está basada en el modelo híbrido dependiente de la geometría (GDH), mientras que la emisión de partículas en el equilibrio esta descrita por el modelo de Weisskopf-Ewing, sin consideración detallada del momento angular. La densidad de niveles puede ser calculada con alguno de los cuatro diferentes modelos: i)Modelo de gas de Fermi con el parámetro de densidad de niveles $a = A/9$. ii)Fórmula de Kataria Ramamurthy con corrección de capa debido a diferencias de masa experimental y la corrección del modelo de gota líquida. iii)Modelo Nuclear de Super-Fluido para todos los núcleos residuales. iv)Modelo de gas de Fermi con el parámetro de densidad de niveles dependiendo de la energía de excitación y tomando en cuenta efectos de capas. Se probaron los cuatro modelos de densidad de niveles y se determinó que el

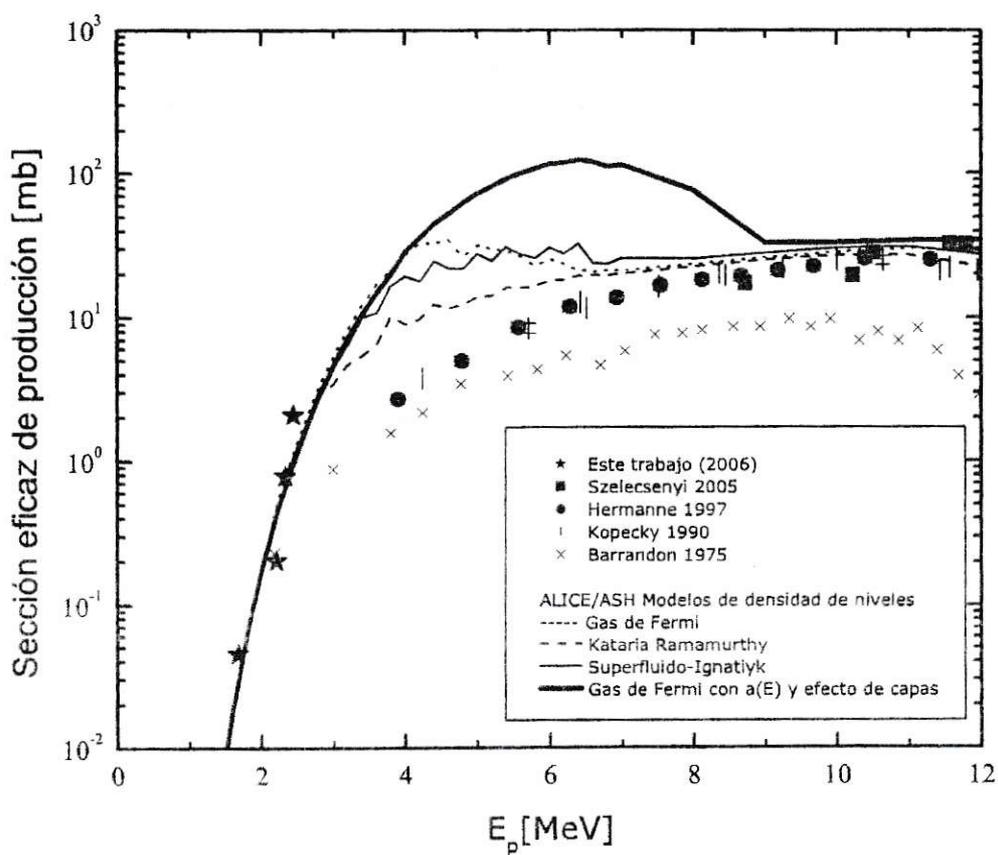


Figura 4.2: Mediciones de otros autores y el código ALICE/Ash con las distintas opciones de densidad de niveles, junto con la medición realizada en esta Tesis.

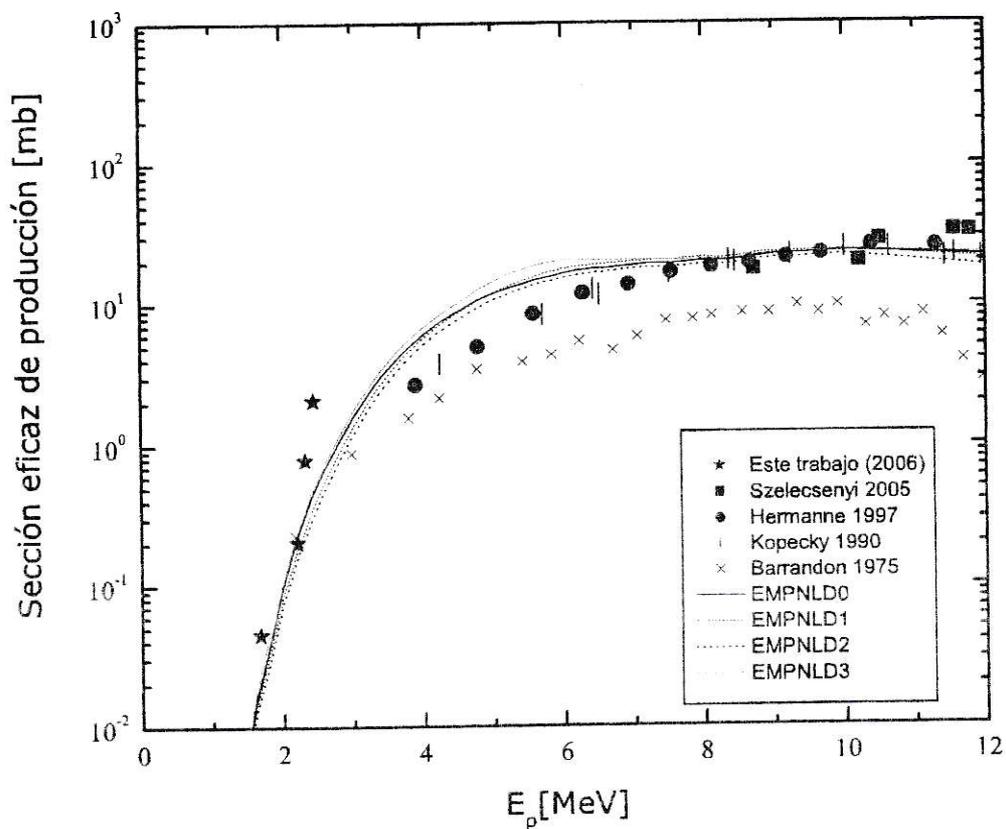


Figura 4.3: Mediciones de otros autores y el código EMPIRE-II con las densidades de niveles EMPNLD0-EMPnLD3, junto con la medición realizada en esta Tesis.

modelo que representa mejor los datos experimentales obtenidos en esta tesis y los datos de otros autores en la región de energía de 1,0 a 5,0 MeV es el modelo de gas de Fermi.

Código EMPIRE-II EMPIRE es un sistema modular de códigos de reacciones nucleares, comprendiendo varios modelos nucleares y diseñado para cálculos sobre un amplio rango de energías y de partículas incidentes. La partícula puede ser cualquier nucleón o un ión pesado. La emisión de partículas en el equilibrio está descrita por el formalismo de Hauser-Feshbach el cual considera momento angular y la distribución angular de las partículas emitidas. La emisión en el pre-equilibrio puede ser calculada con el modelo de excitón (DEGAS) ó con el modelo Multi-step Compound (MSC). Para el caso de interacción directa, EMPIRE incluye el modelo de Multi-step Direct y ECIS. Dentro de las opciones para densidad de niveles hay cuatro modelos. i) Densidad de niveles específico de EMPIRE; Backshifted más el modelo de gas de Fermi con efectos colectivos dependiendo de las deformaciones, ajustados a valores experimentales y a niveles discretos, esta es la opción que plantea EMPIRE como por defecto (EMPnLD0). ii) Modelo de gas de Fermi con efectos colectivos dependiendo de las deformaciones y el parámetro de densidad de niveles a derivado del modelo de capas (EMPnLD1). iii) Densidad de niveles de Gilbert-Cameron, ajustados a valores experimentales y a niveles discretos (EMPnLD2). iv) Densidad de niveles microscópico de BCS Hauser-Feshbach (EMPnLD3).

4.5. Rendimiento de la producción de ^{67}Ga

Además de las mediciones de sección eficaz, se han obtenido los rendimientos de producción del ^{67}Ga . Estos valores han sido calculados mediante la ecuación (2.17).

Tabla 4.2: Rendimientos de producción de ^{67}Ga

E_p [keV]	$\langle I \rangle [\mu\text{A}]$	$A_{\text{EOB}} [\text{Bq}]$	$A_{\text{SAT}} [\mu\text{Ci}]$	$Y \left[\frac{\mu\text{Ci}}{\mu\text{A}} \right]$	$Y \left[\frac{\mu\text{Ci}}{\mu\text{Ah}} \right]$
1678	0.23	3.33E+01	2.83E-02	0.121±0.009	(3.34±0.24)E-02
2212	1.31	6.96E+02	7.18E-01	0.548±0.027	(1.83±0.09)E-01
2328	0.78	1.86E+03	1.65E 00	2.11±0.15	(6.03±0.43)E-01
2444	0.54	5.51E+03	3.02E 00	5.59±0.40	(9.81±0.69)E-01

El rendimiento o tasa de producción es una cantidad de uso directo en la producción de radionuclidos, involucrando parámetros esenciales como; actividad medida al final de la irradiación, tiempo de irradiación y corriente del haz. Por otro lado, si es conocida la sección eficaz de la reacción ya sea por valores medidos o por estimaciones de códigos, es posible inferir la actividad que se puede lograr para determinados valores de tiempo y de corriente del haz en la irradiación. La tabla 4.2 muestra los valores obtenidos del rendimiento de la producción de ^{67}Ga mediante la reacción estudiada en esta tesis. Los resultados del presente estudio son comparados en la figura 4.4 con los valores recomendados por el Organismo Internacional de Energía atómica¹. Como puede ser observado, hay un buen acuerdo entre ellos, considerando que los valores recomendados por el Organismo fueron calculados con la reacción $^{67}\text{Zn}(p,n)$ usando blancos enriquecidos de ^{67}Zn . Mientras que en este experimento, la contribución de la reacción $^{66}\text{Zn}(p,\gamma)$ es incluida debido a la composición isotópica natural del zinc en los blancos utilizados. Esto puede explicar las diferencias en ambos casos. El método ha probado ser conveniente debido a que se requieren tiempos de irradiación más cortos, del orden de 4 horas para una vida media de 78.3 horas, y la incerteza promedio obtenida es de 7%.

¹URL: <http://www-nds.iaea.org/medical>

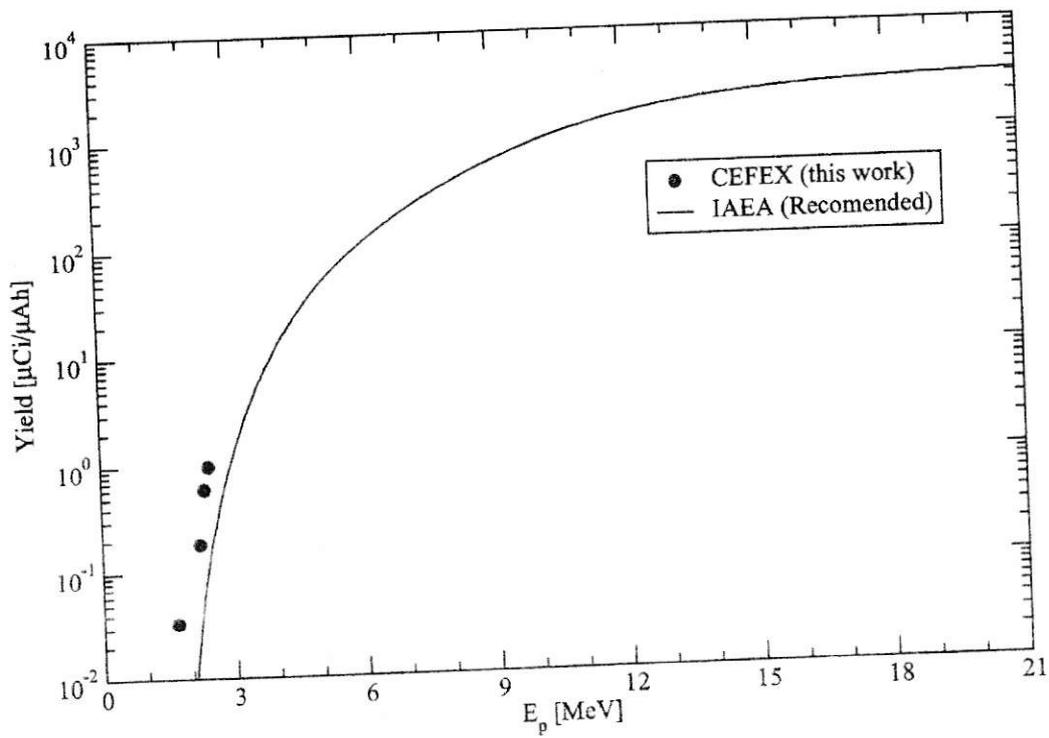


Figura 4.4: Rendimiento de producción experimental y comparación con valores recomendados por el Organismo Internacional de Energía atómica.

4.6. Espectro de radiación γ

Como control de calidad del radionucléido producido, fue realizada una irradiación a una energía de 1307 keV con el objeto de obtener un espectro de energía de radiación γ y reconocer los picos correspondiente a la desexcitación del radionucléido producido. Se utilizó un detector HP-Ge modelo GEM-10195 de la marca Canberra, un amplificador Canberra modelo 2020 y una fuente de poder Ortec 659 para suministrar el voltaje requerido al detector (3000 V). La figura 4.5 muestra el espectro de energía de los rayos- γ después de la irradiación. En el espectro pueden ser claramente reconocidas las energías de los picos γ [29] provenientes de los estados excitados del ^{67}Zn producto del decaimiento del ^{67}Ga . También podemos identificar el pico correspondiente a la energía de 511 keV producto del decaimiento del ^{65}Ga y ^{68}Ga por β^+ . La figura 4.6 muestra un diagrama de niveles del ^{67}Zn y los γ que resultan de la desexcitación de esos niveles.

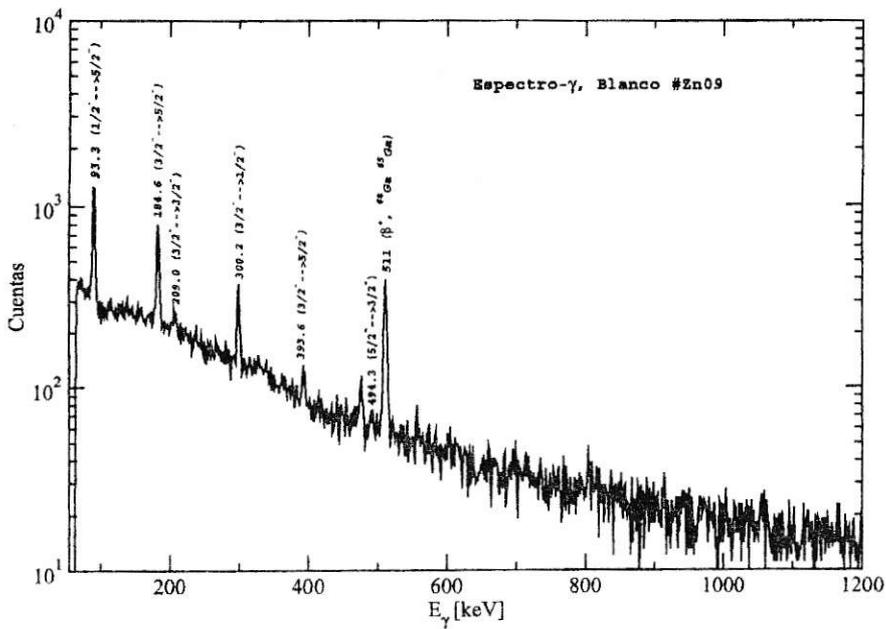


Figura 4.5: Espectro de radiación γ después de la irradiación del blanco #Zn09.

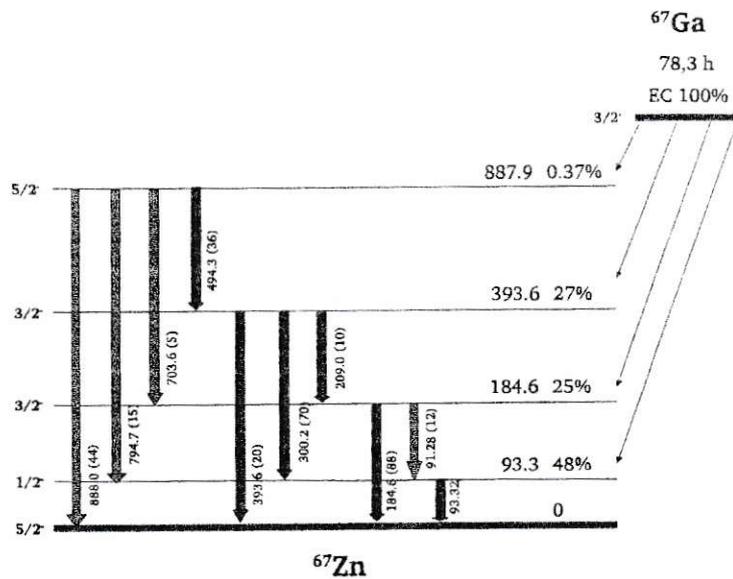


Figura 4.6: Esquema de decaimiento del radionucléido ^{67}Ga . Las flechas oscurecidas indican los picos de radiación γ identificados en el espectro de la figura 4.5.

Capítulo 5

Conclusiones

En esta tesis se han obtenido valores experimentales de la sección eficaz de producción de ^{67}Ga mediante la reacción $^{nat}\text{Zn}(p,x)^{67}\text{Ga}$ en el rango de energía de 1.6 a 2.5 MeV. La incerteza de la sección eficaz experimental esta en torno al 7% y el error asociado a la energía del haz de protones es de un 6%, considerando la incerteza debido a la calibración en energía del acelerador y al efecto de la pérdida de energía del haz en los blancos, respectivamente. En la comparación con códigos de reacciones nucleares un buen acuerdo fue encontrado entre los valores medidos y el código ALICE/Ash, con la opción de densidad de niveles del modelo de gas de Fermi. En la comparación con el código EMPIRE, la estimación se aleja de la medición en la región de energía por sobre el umbral del canal de reacción nuclear (p,n). Esta diferencia se debe principalmente a las diferencias entre los modelos de densidad de niveles que usan ambos códigos.

En el valor experimental de mayor energía en esta tesis (2444 KeV) la sección eficaz predicha por ALICE/Ash está en torno a un valor de 1.05 mb para los cuatro modelos de densidad de niveles. En el caso del código EMPIRE-II se observa una diferencia mayor. Para las densidades de niveles EMPNLD0 y EMPNLD3 el valor de la sección se encuentra en torno a 0.50 mb. Para EMPNLD1 y EMPNLD2 la sección

eficaz es de 0.31 mb.

Datos experimentales a mayor energía aplicando la misma metodología son necesarios para decidir cuál tendencia presentada por los códigos es la correcta tomando en cuenta los distintos modelos de densidad de niveles. Puede apreciarse que a pesar de la diferencia mostrada para el intervalo de energía de 2 a 8 MeV, ambos códigos muestran una tendencia hacia a los valores experimentales a mayor energía.

En el aspecto experimental, el sistema de refrigeración utilizado mostró un buen desempeño, lograndose temperaturas de equilibrio inferiores a 0 °C en las irradiaciones. Además se implementó exitosamente un sistema de evaporación en el laboratorio. Este sistema permite obtener blancos de espesores entre 0.1 a 10 μm , o más en evaporaciones sucesivas.

Valores relacionados con la producción han sido obtenidos. Se midió la actividad de cada blanco irradiado llegando a obtener una actividad de $3.0 \pm 0.2 \mu\text{Ci}$ a una energía de 2444 keV. Este valor puede ser incrementado hasta en dos órdenes de magnitud modificando parámetros experimentales como la intensidad y área del haz y tiempos de irradiación mayores.

El método presentado aquí puede seguir siendo utilizado en la medición de secciones eficaces de otras reacciones nucleares. De particular interés puede ser el caso de la reacción $^{72}\text{Ge}(p,x)^{72}\text{As}$ y $^{73}\text{Ge}(p,x)^{73}\text{As}$, por el amplio uso que tiene el arsénico en aplicaciones en el campo de la farmacología y diagnóstico y tratamiento del cáncer.

Apéndice A

A.1. Parámetros experimentales de las irradiaciones de producción y de los análisis PIXE

Tabla A.1: Blanco Zn10.

Parámetros Experimentales de la Irradiación de producción		
Parámetro	Símbolo	Valor [Unidad]
Parámetros Irradiación de Producción		
Energía	E_p	1678 ± 37 [keV]
Carga depositada	Q_C	$(3.05 \pm 0.01)E-003$ [C]
Tiempo de irradiación:	T	13140 [s]
Número de cuentas peak K_α off-line	N_{exp}	112 ± 11
Tiempo inicio adquisición (SOC)	t_1	49968 [s]
Tiempo final adquisición (EOC)	t_2	406860 [s]
Flujo	ϕ	$(2,32 \pm 0.08)E-07$ [C/s]
Factor temporal	Δ	4.348E-02
Parámetros de análisis PIXE		
Energía	E_p	2444 ± 48 [keV]
Carga depositada	Q_C	$7.3 \pm 0.1E-08$ [C]
Sección Eficaz de ionización	σ_X	111 ± 2 [b]
Tiempo de irradiación	τ	300 [s]
Numero de cuentas peak K_α	N_X	12460 ± 112
Flujo	ϕ_p	$(2.43 \pm 0.03)E-010$ [C/s]
Resultados		
Sección eficaz de producción	σ	0.045 ± 0.003 [mb]

Tabla A.2: Blanco Zn05.

Parámetros Experimentales de la Irradiación de producción		
Parámetro	Símbolo	Valor [Unidad]
Parámetros Irradiación de Producción		
Energía	E_p	2212 ± 44 [keV]
Carga depositada	Q_C	$(1.42 \pm 0.01)E-002$ [C]
Tiempo de irradiación:	T	10800 [s]
Número de cuentas peak K_α off-line	N_{exp}	4546 ± 67
Tiempo inicio adquisición (SOC)	t_1	72900 [s]
Tiempo final adquisición (EOC)	t_2	396900 [s]
Flujo	ϕ	$(1,31 \pm 0.01)E-06$ [C/s]
Factor temporal	Δ	5.971E-02
Parámetros de análisis PIXE		
Energía	E_p	2212 ± 44 [keV]
Carga depositada	Q_C	$(9.0 \pm 0.1)E-08$ [C]
Sección Eficaz de ionización	σ_X	111 ± 2 [b]
Tiempo de irradiación	τ	300 [s]
Numero de cuentas peak K_α	N_X	27248 ± 165
Flujo	ϕ_p	$(3.00 \pm 0.03)E-010$ [C/s]
Resultados		
Sección eficaz de producción	σ	0.204 ± 0.014 [mb]

Tabla A.3: Blanco Zn06.

Parámetros Experimentales de la Irradiación de producción		
Parámetro	Símbolo	Valor [Unidad]
Parámetros Irradiación de Producción		
Energía	E_p	2328 ± 46 [keV]
Carga depositada	Q_C	$(9.83 \pm 0.01)E-03$ [C]
Tiempo de irradiación:	T	12600 [s]
Número de cuentas peak K_α off-line	N_{exp}	8627 ± 93
Tiempo inicio adquisición (SOC)	t_1	145200 [s]
Tiempo final adquisición (EOC)	t_2	403500 [s]
Flujo	ϕ	$(7,80 \pm 0.01)E-07$ [C/s]
Factor temporal	Δ	7.126E-02
Parámetros de análisis PIXE		
Energía	E_p	2328 ± 46 [keV]
Carga depositada	Q_C	$(9.3 \pm 0.1)E-08$ [C]
Sección Eficaz de ionización	σ_X	100 ± 2 [b]
Tiempo de irradiación	τ	300 [s]
Numero de cuentas peak K_α	N_X	31121 ± 176
Flujo	ϕ_p	$(3.10 \pm 0.03)E-010$ [C/s]
Resultados		
Sección eficaz de producción	σ	0.784 ± 0.055 [mb]

Tabla A.4: Blanco Zn08.

Parámetros Experimentales de la Irradiación de producción		
Parámetro	Símbolo	Valor [Unidad]
Parámetros Irradiación de Producción		
Energía	E_p	2444 ± 48 [keV]
Carga depositada	Q_C	$(1.11 \pm 0.01)E-02$ [C]
Tiempo de irradiación:	T	20500[s]
Número de cuentas peak K_α off-line	N_{exp}	21103 ± 145
Tiempo inicio adquisición (SOC)	t_1	22200 [s]
Tiempo final adquisición (EOC)	t_2	405000 [s]
Flujo	ϕ	$(5.41 \pm 0.01)E-07$ [C/s]
Factor temporal	Δ	2.468-02
Parámetros de análisis PIXE		
Energía	E_p	2444 ± 48 [keV]
Carga depositada	Q_C	$(7.3 \pm 0.1)E-08$ [C]
Sección Eficaz de ionización	σ_X	111 ± 2 [b]
Tiempo de irradiación	τ	300 [s]
Numero de cuentas peak K_α	N_X	12460 ± 112
Flujo	ϕ_p	$(2.43 \pm 0.03)E-010$ [C/s]
Resultados		
Sección eficaz de producción	σ	2.08 ± 0.15 [mb]

Apéndice B

B.1. Poder de frenado

En la determinación de la sección experimental es necesario tomar en cuenta el efecto que produce la pérdida de energía cuando el haz atraviesa un blanco delgado. Simulaciones con el código SRIM, (ver figura B.1) han sido realizadas con el objetivo de determinar la pérdida de energía que experimenta el haz de protones cuando incide sobre el blanco. SRIM es un grupo de programas que calculan el poder de frenado y el alcance de iones con energías que van de entre los 10 eV a los 2 GeV/amu en la materia usando un tratamiento mecánico cuántico de colisiones ión-átomo. En el cálculo realizado por Bethe y Bloch, la transferencia de energía es parametrizada en términos de la transferencia de momentum. La fórmula obtenida es conocida como la fórmula de Bethe-Bloch,

$$S(E) = -\frac{dE}{dx} = 2\pi N_a r_e^2 m_e c^2 \rho \frac{Z}{A} \frac{z^2}{\beta^2} \left[\ln \left(\frac{2m_e \gamma^2 v^2 W_{max}}{I^2} \right) - 2\beta^2 \right] \quad (\text{B.1})$$

En la práctica dos correcciones son normalmente agregadas. La corrección por efecto de la densidad δ y correcciones debido a efectos de capa C ,

$$S(E) = -\frac{dE}{dx} = 2\pi N_a r_e^2 m_e c^2 \rho \frac{Z}{A} \frac{z^2}{\beta^2} \left[\ln \left(\frac{2m_e \gamma^2 v^2 W_{max}}{I^2} \right) - 2\beta^2 - \delta - 2\frac{C}{Z} \right], \quad (\text{B.2})$$

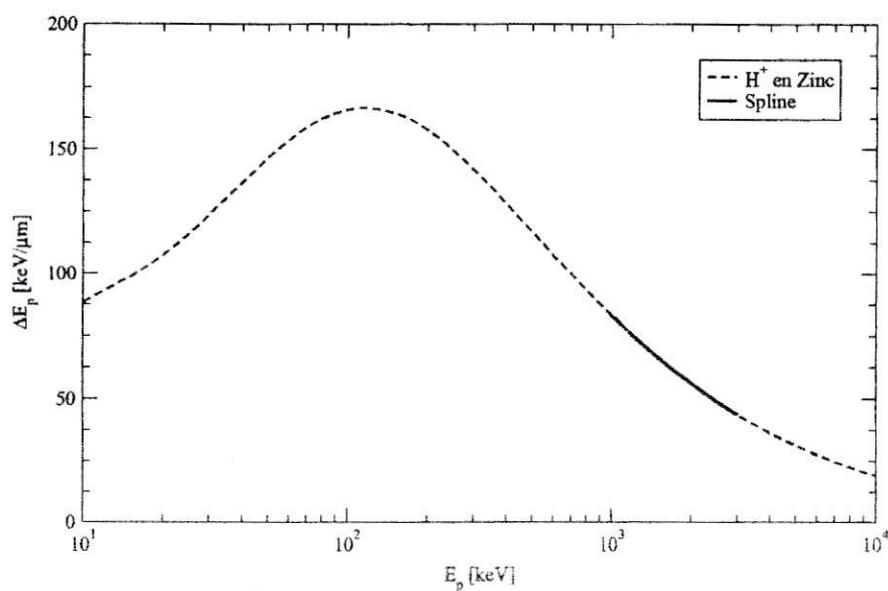


Figura B.1: Predicción mediante el programa SRIM2003 de la pérdida de energía del haz de protones en el blanco de zinc en función de la energía incidente del haz. La línea sólida muestra la curva de interpolación de donde se obtuvo la pérdida de energía del haz de protones para cada energía en la irradiación de producción.

donde $r_e = 2.817 \times 10^{-13}$ cm es el radio clásico del electrón, m_e es la masa del electrón, N_a es el número de Avogadro, I el potencial de excitación medio. Z , A y ρ son el número atómico, másico y densidad del material absorbente, respectivamente. z es la carga de la partícula incidente en unidades de e , $\beta = v/c$, $\gamma = 1/\sqrt{1 - \beta^2}$ y W_{max} es la máxima transferencia de energía en una sola colisión. Mediante una interpolación con una curva suave en la región de interés, han sido extraídos los valores de pérdida de energía mostrados en la tabla 3.2. La figura B.2 muestra datos experimentales reportados por otros autores y la estimación hecha mediante el código SRIM-2003 (Z03).

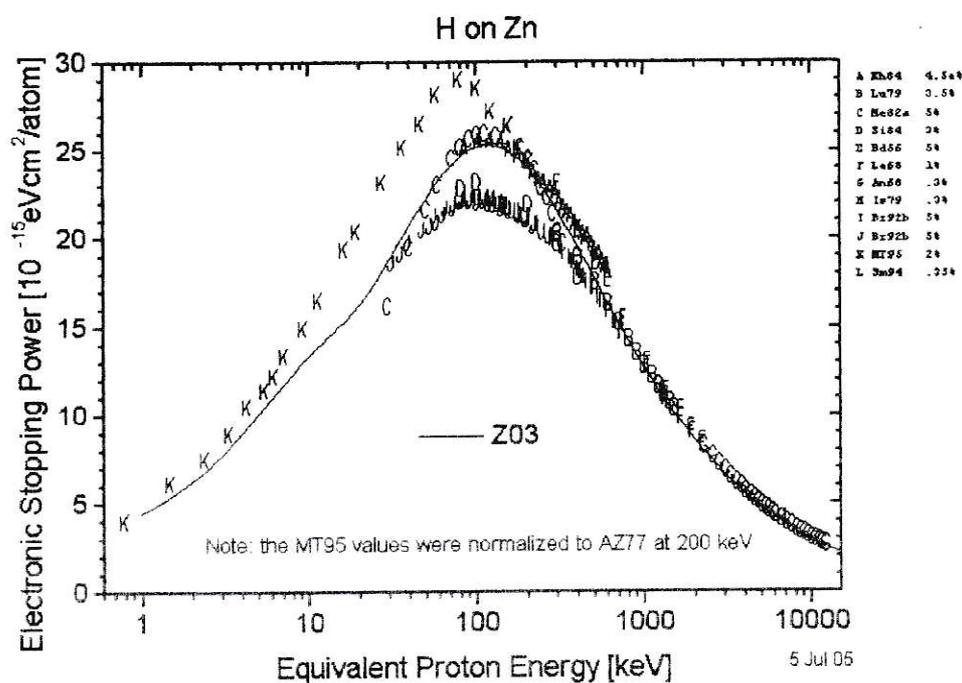


Figura B.2: Pérdida de energía de los protones en zinc en función de la energía inicial del haz. Datos experimentales reportados por otros autores, fuente: <http://www.exphys.jku.at/stopping/>

Referencias

- [1] S. M. Qaim, *Charged particle cross section database for medical radioisotope production, diagnostic radioisotope production* (IAEA, Vienna, Austria, 2001).
- [2] M. Herman, *Long Term needs for nuclear data development* (IAEA, Vienna, Austria, 2001).
- [3] M. S. Smith, *Nuclear data needs in nuclear astrophysics: charged-particle reactions* (IAEA, Vienna, Austria, 2001).
- [4] F. Kappeler, F. Thiellemann y M. Wiescher, *Annu. Rev. Nucl. Part. Sci.* **48**, 175 (1998).
- [5] J. Morales, M. Chesta, S. Cancino, P. Miranda, M. Dinator y M. Avila, *Nucl. Instr. and Meth. B* **227**, 385 (2005).
- [6] A. Y. Konobeyev, Y. A. Korovin y P. E. Pereslavytsev, *Code Alice/Ash for calculation of excitation functions, energy and angular distributions of emitted particles in nuclear reactions* (Obninsk Institute of Nuclear Power Engineering, Russian Federation, 1997).

- [7] M. Herman, R. Capote, P. Oblozinsky y A. Trikov, *EMPIRE-II statistical model code for nuclear reaction calculations* (International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 2002).
- [8] J. M. Blatt y V. F. Weisskopf, *Theoretical Nuclear Physics* (Dover Publications, Inc., New York, 1979).
- [9] P. E. Hodgson, E. Gadioli y E. G. Erba, *Introductory nuclear physics* (Oxford science publications, Oxford, 1997).
- [10] S. Maxman, Nucl. Instr. and Meth. **50**, 53 (1967).
- [11] A. Muggleton, J. Phys. E, Sci. Instrum. **12**, 781 (1979).
- [12] E. Rauhala, Nucl. Instr. and Meth. B **12**, 447 (1985).
- [13] R. Amirikas, D. Jamieson y S. Dooley, Nucl. Instr. and Meth. B **77**, 110 (1993).
- [14] G. Deconninck, *Introduction to Radioanalytical Physics* (AKAD/EMIAI KI-ADÓ, Budapest, 1978).
- [15] K. Spyrou, C. Chronidou, S. Harissopulos, S. Kossionides y T. Paradellis, Z. Phys. A **357**, 283 (1997).
- [16] C. Y. Chao, A. V. Tollestrup, W. A. Fowler y C. Lauritsen, Phys. Rev. **79**, 108 (1950).
- [17] H. W. Becker, W. E. Kieser, C. R. H. P. Trutvetter y M. Wiescher, Z. Phys. A **305**, 319 (1982).
- [18] S. Johansson, J. Campbell y K. Malmqvist, *Particle Induced X-ray Emission Spectrometry (PIXE)* (John Wiley & Sons Inc. New York, 1995).

- [19] IAEA, *Instrumentation for PIXE and RBS, TECDOC-1190* (IAEA, Vienna, Austria, 2000).
- [20] P. V. Espen, K. Janssens y I. Swenters, *AXIL x-ray Analysis Software, Users Manual* (Canberra Packard, Benelux).
- [21] J. R. Temer y M. Nástasi, *Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis* (MRS, Pittsburgh, 2003).
- [22] R. C. Muñoz, J. P. García, R. Henríquez, A. M. Moncada, A. Espinosa, M. Robles, G. Kremer, L. Moraga, S. Cancino, J. R. Morales, A. Ramírez, S. Oyarzún, M. A. Suárez, D. Chen, E. Zumelzu y C. Lizama, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 206803 (May 2006).
- [23] M. Mayer, *SIMNRA Users's Guide* (Max-Planck-Institute for Plasmaphysics, Garching, Germany, 2002).
- [24] J. Ziegler y J. Biersack, *Code SRIM2003, The Stopping and Range of ions in matter* (2003).
- [25] P. R. Bevington y D. K. Robinson, *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences* (Mc Graw Hill, 2003).
- [26] P. Kopecky, *J. Ari.* **41**, 606 (1990).
- [27] A. Hermanne, *J. Ari.* **49**, 1005 (1998).
- [28] J. Barrandon, J. L. Debrun, A. Kohn y R. H. Spear, *Nucl. Instr. and Meth.* **127**, 269 (1975).

- [29] C. Lederer, V. Shirley, A. E. Browne, J. Dairiki, R. Doebler, A. Shihab-Eldin, J. Jardine, J. Tuli y A. Buyn, *Table of Isotopes, 7th edition* (John Wiley, New York, 1978).