



Tesis Doctoral:

Experimentos de Activación en Astrofísica Nuclear para la medida de Secciones Eficaces Estelares de captura de neutrones: revisión del método y medida experimental de la Sección Eficaz Estelar de la reacción $^{197}Au(n,\gamma)$.

Autor:

Pablo Jiménez Bonilla

Director: Dr. Javier Praena Rodríguez Tutor: Prof. José M. Quesada Molina

Departamento de Física Atómica, Molecular y Nuclear, Universidad de Sevilla. Centro Nacional de Aceleradores, Sevilla.





PhD Dissertation:

On the Activation experiments for neutron cross section measurements in Nuclear Astrophysics: revision of the method and experimental measurement of the Stellar Cross Section of ¹⁹⁷Au(n, γ).

Pablo Jiménez Bonilla

Supervisor: Dr. Javier Praena Rodríguez

Prof. José M. Quesada Molina

Atomic, Molecular and Nuclear Physics Department,

University of Seville.

Centro Nacional de Aceleradores, Seville.

Resumen y Objetivos.

Confluyen en esta tesis doctoral una motivación y objetivo dobles. De un lado, en Astrofísica Nuclear resulta fundamental disponer de datos nucleares precisos de las secciones eficaces de las reacciones implicadas en los procesos de nucleosíntesis estelar. La medida experimental de estas secciones eficaces es una tarea en la que se trabaja activamente. Dentro de estos procesos de nucleosíntesis estelar, las reacciones de captura de neutrones ocupan un papel relevante en la producción de núcleos pesados, a través de los llamados procesos s (slow) y r (rapid). Para el modelado de estos procesos de captura de neutrones, el conocimiento (con la menor incertidumbre posible) de la llamada sección eficaz estelar o MACS (Maxwellian Averaged Cross Section) para los distintos isótopos implicados es tarea clave. Esta sección eficaz hace referencia a la probabilidad de ocurrencia de estas reacciones en un entorno de interior estelar, en el cual los neutrones presentes están termalizados y poseen una distribución de velocidades de Maxwell-Bolztmann (Maxwelliana en términos de energía). Varias bases de datos con los valores de las MACS conocidas o estimadas a día de hoy están disponibles online. La MACS de la reacción $^{197}Au(n,\gamma)$, objeto de estudio de esta tesis, tiene el interés adicional de que es utilizada en gran cantidad de ocasiones como referencia o patrón para la medida experimental de secciones eficaces estelares de captura de neutrones de otros núcleos. El valor de la sección eficaz estelar del oro tomado como referencia en los últimos años para un gran número de medidas en Astrofísica Nuclear fue obtenido por Ratynski y Käppeler en 1988 mediante una precisa medida llevada a cabo utilizando la técnica de activación con neutrones de espectro en energía cuasi-maxwelliano. Sin embargo, medidas recientes como las realizadas en n₋TOF (CERN) en 2011 con la técnica de tiempo de vuelo, así como las últimas evaluaciones ENDF, muestran discrepancias con esta medida histórica. Un primer objetivo de esta tesis doctoral es aportar una nueva medida de la sección eficaz estelar de esta reacción $^{197}Au(n,\gamma)$, por el método de activación, a energía kT = 30 keV, contribuyendo de esa manera en el debate abierto sobre esta cuestión. Al mismo tiempo, los datos disponibles para la sección eficaz del Au son considerados en la categoría de *estándar* para ciertos rangos de energía, pero no así para el rango de interés astrofísico de 3 keV <kT <200 keV. Es conveniente también por ello el aporte de nuevas medidas en este rango, como la llevada a cabo en este trabajo.

Un segundo objetivo o motivación principal de esta tesis es referente a la propia metodología de las medidas de activación. Las medidas de activación se pueden lle-

var a cabo utilizando flujos de neutrones producidos en laboratorio con aceleradores mediante reacciones tipo (p,n), técnica esta ampliamente utilizada durante años hasta la actualidad. En concreto una reacción frecuentemente utilizada es la $^{7}Li(p,n)$ a energía de protón $E_p = 1912$ keV. En ella el flujo de neutrones producido tiene una distribución en energía próxima a una maxwelliana (quasi-maxwellian neutron spectrum o QMNS) El empleo de este método requiere sin embargo, para el cálculo de la MACS, estimar una corrección debida la diferencia entre el espectro en energía del flujo de neutrones producido en laboratorio QMNS frente al de los neutrones presentes en el medio estelar real (maxwelliano ideal). Como se desarrolla en esta memoria, el valor de dicha corrección tiene el inconveniente de que depende no sólo de la diferencia entre el espectro de laboratorio QMNS y un estelar, sino también de la forma o dependencia con la energía de la sección eficaz del núcleo objeto de estudio. Es decir, esta corrección tiene un valor distinto para cada núcleo, y requiere un conocimiento previo o estimación de la forma o tendencia de su sección eficaz, el cual no siempre está disponible. Recientemente se ha propuesto una mejora en la técnica, consistente en incorporar un método por el cual los neutrones producidos en laboratorio poseerían un espectro en energía aún más próximo a un maxwelliano ideal (MNS). Este método posibilitaría en principio medidas más directas de la sección eficaz estelar, con una menor necesidad de corrección. La mejora podría ser especialmente relevante para núcleos cuya dependencia de la sección eficaz con la energía sea desconocida o existan muy escasos datos, como por ejemplo ciertos núcleos radioactivos. Esta prometedora innovación ha sido sin embargo poco utilizada todavía. Las escasas medidas experimentales realizadas y publicadas con este nuevo método poseen en principio un margen de error (debido a otros condicionantes de los experimentos) no inferior a las medidas de activación tradicionales. Teniendo esto en cuenta, otro objetivo en esta tesis es analizar y valorar tanto la técnica de activación tradicional como esta nueva posible mejora, aportando una nueva medida realizada con ella y comparando su metodología y resultados experimentales con los de activación tradicional.

Para la consecución de este doble objetivo, de la medida de la sección eficaz de la reacción ¹⁹⁷Au(n, γ), y del estudio y comparación de ambas técnicas de activación (clásica o QMNS y mejorada o MNS), se llevaron a cabo dos experimentos de activación. Ambos fueron realizados en las instalaciones del Centro Nacional de Aceleradores (CNA) en Sevilla, dentro de la línea de Física Nuclear Básica del acelerador Tándem Pelletron 3 MV modelo 9SDH-2 fabricado por National Electrostatics Corporation (NEC). Tras el análisis de los datos obtenidos y el cálculo de las adecuadas correcciones, en la memoria se presentan y discuten los valores experimentales obtenidos de sección eficaz estelar o MACS para dicha reacción ¹⁹⁷Au(n, γ) a energía kT= 30 keV. Asimismo, a lo largo del texto se analizan y discuten distintos aspectos de la técnica y el análisis de datos, y en particular se hace hincapié en las posibilidades que aporta la utilización de simulaciones Monte Carlo (como el código MCNPX utilizado), las cuales han sido empleadas con profusión en el análisis de datos de estos experimentos. A raíz de este análisis, y como aportación original de esta te-

sis, se propone y discute en su importancia el cálculo de una corrección adicional que estimamos necesaria para el análisis de datos en medidas de activación con el oro como referencia. Dicha corrección, debida al efecto de la apertura angular del flujo de neutrones QMNS incidente sobre muestras planas, para medidas relativas históricamente no ha venido siendo considerada.

Finalmente, hay que destacar que ambos objetivos, la reevaluación de la sección eficaz del oro en el rango Astrofísico de energías (y posible extensión del oro como estándar también en ese rango), y el estudio de nuevos métodos de producción de neutrones de espectro maxwelliano, fueron recogidas como tareas de interés en el documento "International Evaluation of Neutron Cross-Section Standards: extending and updating" publicado en 2011 por el INDC (International Nuclear Data Commitee) de la IAEA (International Atomic Energy Agency.

Resumen y Objetivos

Abstract and Motivation.

A double motivation converge in this doctoral thesis. On the one hand, in Nuclear Astrophysics it is essential to have accurate nuclear data of the cross sections of the reactions involved in the processes of stellar nucleosynthesis. The experimental measurement of these cross sections is a task in which scientists work actively. Within these stellar nucleosynthesis processes, neutron capture reactions play an important role in the production of heavy nuclei, through the so-called s (slow) and $r \ (rapid) \ processes$. For the modeling of these neutron capture processes, the knowledge (with the lowest possible uncertainty) of the so-called *stellar* cross-section or MACS (Maxwellian Averaged Cross Section) for the different involved isotopes is a key task. This cross section refers to the probability of occurrence of these reactions in a stellar interior environment, in which the present neutrons are thermalized and have a Maxwell-Bolztmann (Maxwellian in terms of energy) velocity distribution. Several databases with the values of the MACS known or estimated today are available online. The MACS of the reaction $^{197}Au(n,\gamma)$, object of study of this thesis, has the additional interest that it is used in a large number of occasions as a reference or standard for the experimental measurement of stellar neutron capture cross sections of other nuclei. The value of the stellar cross section of gold taken as a reference in recent years for a large number of measurements in Nuclear Astrophysics was obtained by Ratynski and Käppeler in 1988 through a precise measurement carried out using the neutron activation technique, with neutrons of quasi-maxwellian energy spectrum (QMNS). However, recent measurements such as those carried out at n_TOF (CERN) in 2011 with the time-of-flight technique, as well as the latest ENDF evaluations, show discrepancies with this historical measurement. A first objective of this doctoral thesis is to contribute with a new measurement of the stellar cross-section of this reaction ¹⁹⁷ Au (n,γ) , by the activation method, at energy kT=30 keV, thereby contributing to the open debate on this question. At the same time, the available data for the effective section of the Au are considered in the *standard* category for certain energy ranges, but not for the astrophysical interest range of 3 keV < kT < 200 keV. It is also convenient for this reason the contribution of new measurements in this range, such as the one carried out in this work.

A second objective or motivation of this thesis is related to the methodology of activation measurements. Activation measurements can be carried out by using neutron fluxes produced in the laboratory with accelerators through (p,n) reactions,

a technique widely used. In particular, a frequently used reaction is ⁷Li(p,n) at proton energy $E_p=1912$ keV. In this case the produced neutron flux has an energy distribution close to a maxwellian spectrum (quasi-maxwellian neutron spectrum or QMNS). The use of this method requires, however, for the calculation of the MACS, to estimate a correction due to the difference between the spectrum in energy of the neutron flux produced in the QMNS laboratory and the spectrum of the present neutrons in the real stellar medium (ideal maxwellian). This correction has the inconvenience that it depends not only on the difference between the QMNS laboratory spectrum and a stellar one, but also on the form or dependence with the energy of the cross section of the nuclei under study. That is, this correction has a different value for each nucleus, and requires prior knowledge or estimation of the form or trend of its differential cross section, which is not always available. Recently, an improvement in the technique has been proposed, consisting in incorporating a method by which the neutrons produced in the laboratory would have an energy spectrum even closer to an ideal Maxwellian (MNS). This method would in principle allow more direct measurements of the stellar cross section, with less need for correction. The improvement could be especially relevant for nuclei whose dependence on the energy cross section is unknown or there is very little data, such as certain radioactive nuclei. This promising innovation has however been little used yet. The few experimental measurements carried out and published with this new method have in principle an uncertainty (due to other conditions of the experiments) not lower than traditional activation measurements. Taking this into account, another objective in this thesis is to analyze and assess both the traditional activation technique and this new possible improvement, providing a new measurement and comparing its methodology and experimental results with those of traditional QMNS activation.

To achieve this double objective, the measurement of the stellar cross section of the reaction $^{197}Au(n,\gamma)$ at kT=30 keV, and the study and comparison of both activation techniques (classical or QMNS and improved or MNS), were carried out two activation experiments. Both were carried out at the facilities of the National Accelerator Center (CNA) in Seville, within the Basic Nuclear Physics line of the 3MV VdG Tandem Accelerator available at the center. After analyzing the obtained data and calculating the appropriate corrections, the experimental values obtained for the stellar cross-section are presented and discussed. Moreover, different aspects of the technique and the data analysis are discussed, and in particular the possibilities offered by the use of Monte Carlo simulations (such as the MCNPX code used), which have been extensively used in the analysis of data from these experiments. As a result of this analysis, and as an original contribution of this thesis, we propose and detail the calculation of an additional correction, due to the effect of the angular opening of the incident QMNS neutron flux on flat samples, which we consider necessary for the analysis of data in all relative activation measurements with gold as a reference.

Finally, it should be noted that both objectives, the re-evaluation of the gold cross section in the Astrophysical range of energies (and possible extension of gold as standard also in that range), and the study of new Maxwellian neutron production methods, were cited as tasks of interest in the document "*International Evaluation of Neutron Cross-Section Standards: extending and updating*" published in 2011 by the INDC (International Nuclear Data Committee) of the IAEA (International Atomic Energy Agency).

Abstract and Motivation

Contenidos

Resumen y Objetivos 3					
Al	ostra	ct and	Motivation	7	
1.	1. Introducción.				
	1.1.	Astrof	ísica Nuclear	13	
		1.1.1.	Objeto de la Astrofísica Nuclear.	13	
		1.1.2.	Evolución estelar y procesos de Nucleosíntesis	15	
		1.1.3.	Nucleosíntesis por captura de neutrones: proceso s y proceso r.	19	
	1.2.	Seccio	nes eficaces estelares	21	
		1.2.1.	Reacciones de captura de neutrones	21	
		1.2.2.	Sección Eficaz y Tasa de Reacción.	22	
		1.2.3.	Sección Eficaz Estelar o Maxwellian Averaged Cross Section		
			(MACS)	24	
		1.2.4.	Estándares en secciones eficaces de captura de neutrones	26	
		1.2.5.	Técnicas para la medida experimental de secciones eficaces		
			estelares: Tiempo de Vuelo y Activación	28	
2.	Des	cripció	n de la técnica experimental de activación.	31	
	2.1.	Activa	ción con neutrones de espectro quasi-maxwelliano (QMNS)	31	
		2.1.1.	Fundamentos del método de activación con neutrones	31	
		2.1.2.	Medida de la actividad y correcciones experimentales necesa-		
			rias para el cálculo de la sección eficaz experimental	32	
		2.1.3.	Producción de neutrones de espectro en energía cuasi-maxwelliano	0	
			(QMNS).	34	
		2.1.4.	Medidas de activación respecto a una referencia	36	
		2.1.5.	Medida de la sección eficaz estelar del oro	38	
	2.2.	Produ	cción de neutrones de espectro maxwelliano (MNS)	40	
		2.2.1.	Necesidad y fundamentos de la mejora del método de activación.	40	
		2.2.2.	Descripción del método de producción de neutrones MNS	41	
		2.2.3.	Espectros simulados frente a espectros experimentales de neu-		
			trones	46	

3.	Moi 49	Montaje y realización de los experimentos de activación en el CNA. 49				
	3.1.	Estudio previo.				
		3.1.1.	Viabilidad del experimento y parámetros experimentales	49		
	3.2.	Monta	je experimental	55		
		3.2.1.	Calibración del acelerador.	55		
		3.2.2.	Preparación del blanco de $^7\mathrm{Li},$ muestras de $^{197}\mathrm{Au}$ y soporte	56		
		3.2.3.	Detector gamma HPGe y sistema de adquisición de datos	59		
		3.2.4.	Vacío del acelerador y refrigeración del blanco	62		
3.2.5. Dosimetría de neutrones		Dosimetría de neutrones	63			
		3.2.6.	Configuración de la energía y perfil de haz del acelerador	64		
		3.2.7.	Irradiación de la muestra.	66		
		3.2.8.	Medida de la actividad gamma	66		
4.	Anź	álisis de	e datos y simulaciones Monte Carlo del experimento.	69		
	4.1.	Espese	or másico de la muestra.	70		
	4.2.	Espect	rometría gamma con el detector HPGe	71		
	4.3.	Desint	egraciones radioactivas	77		
	4.4.	Transp	porte y detección gamma.	81		
		4.4.1.	Eficiencia en la detección gamma ϵ_{γ}	81		
		4.4.2.	Simulación MCNPX del detector gamma HPGe	82		
		4.4.3.	Optimización de la simulación MCNPX del detector gamma HPGe.	86		
		4.4.4.	Simulación del transporte y eficiencia total de la detección de			
			gammas	90		
		4.4.5.	Absorción y dispersión gamma en materiales k_{γ}	96		
	4.5.	Flujo y	v transporte de neutrones	97		
		4.5.1.	Simulación MCNPX de la fluencia y espectro en energía de	07		
		452	Simulación MCNPX de la sala experimental	100		
		453	Corrección por apertura angular del fluio de neutrones sobre	100		
		1.0.0.	muestra plana.	101		
		4.5.4	Dispersión de neutrones dentro de la muestra de oro	105		
		4.5.5.	Corrección por espectro en energía del fluio de neutrones: km22.	106		
	4.6.	Resum	en de correcciones y valores de sección eficaz estelar obtenidos. 1	110		
5.	Dise	cusión	y conclusiones. 1	.11		
	5.1.	La sec	ción eficaz estelar del oro	111		
		5.1.1.	Resultados obtenidos y comparación con medidas anteriores 1	111		
		5.1.2.	Nuevo valor de referencia en la sección eficaz estelar del oro 1	114		
	5.2.	Activa	ciones con neutrones de espectro QMNS y MNS	115		
		5.2.1.	Corrección por espectro de energía del flujo de neutrones 1	115		
		5.2.2.	Corrección por muestra plana	122		

		5.2.3. Corrección por eficiencia en la detección gamma	24		
		ción de neutrones MNS.	25		
		5.2.5. Comparación de métodos QMNS v MNS.	$\frac{-5}{25}$		
		5.2.6. Propuesta de mejora en el método MNS	26		
	5.3.	Conclusiones	31		
6.	Sun	nmary of Discussions and Conclusions (English).	33		
	6.1.	The stellar cross section of gold	33		
		6.1.1. Results and comparison with previous measurements 1	33		
		6.1.2. New reference value for stellar cross section of gold 1	35		
	6.2. Activations with neutrons of quasi-Maxwellian spectrum (QMN)				
		and Maxwellian (MNS).	35		
		6.2.1. Correction for the energy spectrum of the neutron flux 1	35		
		6.2.2. Correction for flat sample	38		
		6.2.3. Experimental validation of the MNS activation method 1	39		
		6.2.4. Comparison of QMNS and MNS methods 1	39		
	6.0	6.2.5. Proposal for improvement of the MNS method 1	40		
	6.3.	Conclusions	41		
7.	Ane	exos 14	45		
	7.1.	Introducción a MCNPX	45		
	7.2.	Características de la reacción ${}^{7}Li(p,n){}^{7}Be1$	49		
	7.3.	Cálculo analítico de distribución de activaciones en la muestra de Au. 1	52		
	7.4.	Cálculo analítico de la absorción gamma en materiales 1	55		
7.5. Cálculo analítico de la eficiencia geométrica del detector gamma					
8.	Pub	plicaciones. 18	59		
Lista de figuras 1			79		
Lista de tablas 1			80		
Bi	Bibliografía 1				

Contenidos

Capítulo 1

Introducción.

1.1. Astrofísica Nuclear

1.1.1. Objeto de la Astrofísica Nuclear.

La Astrofísica Nuclear es un área o disciplina de la física en la que participan la Física Nuclear (teórica y experimental), la Astrofísica y la Astronomía. Su núcleo es el estudio de las reacciones nucleares que tienen lugar en el Cosmos, en sus distintos escenarios: desde aquellas que tuvieron lugar en los albores del Universo (tras el *Big Bang*), hasta las que se siguen produciendo actualmente en el interior de todas las estrellas [1] [2].

Las reacciones nucleares constituyen la principal fuente de energía de las estrellas, el sustento que les permite seguir radiando durante miles de millones de años. Estas mismas reacciones son las que van sintetizando la mayoría de los elementos que conocemos, en lo que llamamos procesos de nucleosíntesis estelar. Una parte de los elementos ligeros (hasta el ⁷Li) presentes en la naturaleza fueron sintetizados en reacciones nucleares durante las etapas de alta temperatura y densidad en los tres primeros minutos posteriores al Big Bang, en la llamada nucleosíntesis primordial [3]. Aparte de estos elementos primordiales, y de algunos otros producidos por reacciones inducidas por rayos cósmicos, todos los elementos que componen el Cosmos, la Tierra y nuestros propios cuerpos, como el carbono o el oxígeno, provienen literalmente del interior de las estrellas. Allí fueron sintetizados durante minutos, años o millones de años, mediante complejas cadenas de reacciones nucleares, a partir del elemento primordial presente en todo el universo, el hidrógeno. En las últimas etapas de la vida de las estrellas fueron expulsados y esparcidos por todo el universo, llegando a formar parte de otras nuevas estrellas, de sistemas planetarios, o de nosotros mismos.

La Astrofísica Nuclear trata de dar respuesta, cualitativa y cuantitativamente, a esta cuestión del origen de los elementos, y el porqué de sus diferentes abundancias relativas que se observan en el Universo (Figura 1.1). El conocimiento actual que se tiene de los procesos de nucleosíntesis y de los escenarios astrofísicos en los que estos



Figura 1.1: Abundancia isotópica relativa de elementos en el sistema solar [5].

tienen lugar proporciona una explicación a la forma general de esta distribución de abundancias, y permite realizar cálculos o predicciones sobre ellas. Estos cálculos se realizan a partir de los datos de las propiedades nucleares de que los que se dispone para los distintos isótopos (datos experimentales o teóricos), y para las condiciones que se supone existen en el interior de las estrellas (temperatura, presión, densidad, composición química). Estas condiciones se estiman a partir de las observaciones astronómicas y de los modelos astrofísicos. Con los datos nucleares disponibles y dichos modelos de entornos estelares, se llevan a cabo simulaciones por computador de las cadenas de reacciones nucleares que se producen en esos escenarios. Estas reacciones constituyen procesos acoplados de creación y destrucción de núcleos, evolucionando en el tiempo, que se modelan con complejos sistema de ecuaciones diferenciales acopladas. En la actualidad distintos grupos y colaboraciones trabajan en la simulación de estos escenarios y computación de esas cadenas de reacciones [4]. Los resultados obtenidos en estos cálculos son comparados con las abundancias observadas, comprobando de ese modo la veracidad de nuestros modelos y datos.

Una gran parte de las abundancias predichas, dentro de las incertidumbres de dichos cálculos, concuerdan con las observadas en la naturaleza. Sin embargo, en el puzle de elementos y sus abundancias quedan todavía piezas por encajar. Para muchos isótopos, las incertidumbres en los datos nucleares son todavía excesivamente grandes, y algunos procesos no son bien comprendidos. Ejemplos de áreas de investigación actualmente importantes son las reacciones con núcleos exóticos y radioactivos, ciertas reacciones críticas como la fusión de carbono y helio en oxígeno,

o el caso del ⁷Li sintetizado durante los tres minutos posteriores al *Big Bang*, para el que ninguno de los modelos actuales encaja bien con la abundancia observada. En este sentido, tanto los procesos de Nucleosíntesis conocidos como los nuevos procesos recientemente descubiertos tienen que ser profundizados en su estudio, e incluso mantenida la exploración de la posibilidad de nuevos procesos [5].

Para el avance de la Astrofísica Nuclear resulta crucial la contribución al conocimiento desde dos frentes: por una parte, la Física Nuclear debe seguir aportando datos nucleares (masas, vidas medias, niveles nucleares, secciones eficaces de reacción). A ello contribuye tanto la Física Nuclear Teórica, mediante la mejora de los modelos, como la Física Nuclear Experimental, realizando medidas experimentales. Por otro lado, desde la Astrofísica, en conjunción con los datos nucleares y las observaciones proporcionadas por la Astronomía, deben modelarse los distintos escenarios cósmicos, las condiciones en las que tienen lugar dichos procesos de Nucleosíntesis, y la evolución estelar y galáctica. Muchos de estos escenarios, especialmente los de entornos explosivos (novas, supernovas) y exóticos (estrellas de neutrones) no son todavía bien comprendidos.

Haciendo un breve repaso desde el punto de vista histórico, los orígenes de la Astrofísica Nuclear podemos encontrarlos en 1920, cuando Eddington propone por primera vez la fusión de núcleos de Hidrógeno como fuente de energía estelar [6]. En 1939 Bethe amplía la fusión al Carbono y Nitrógeno (ciclo CN) [7]. El punto de inflexión fundamental y base de la Astrofísica Nuclear moderna son los artículos de 1957 de E. M. Burbidge, G. R. Burbidge, W. A. Fowler, and F. Hoyle, "Synthesis of the Elements in Stars" [8] y Cameron "Stellar evolution, nuclear astrophysics and nucleogenesis" [9]. En ellos se describen de una manera coherente cómo una serie de distintos procesos y cadenas de reacciones nucleares en el interior de las estrellas se acoplan para dar lugar a una producción de energía enorme y sostenida, y cómo éstas pueden producir y explicar la mayoría de las abundancias observadas de los distintos elementos de la naturaleza. Sentadas esas bases, en la segunda mitad del siglo XX se ha venido desarrollando un gran trabajo teórico y experimental para profundizar en el conocimiento de dichos procesos, así como de los escenarios cósmicos en los que se producen. Las incertidumbres en los datos nucleares han sido sistemáticamente reducidas, nuevos procesos han sido descubiertos o postulados, y se han dado grandes avances en la comprensión de la evolución estelar y galáctica. Sin embargo, como se ha citado, existen todavía numerosas incertidumbres que tiene que ser rebajadas, incógnitas por resolver y piezas por encajar. Actualmente la Astrofísica Nuclear es una disciplina con un campo de investigación muy activo.

1.1.2. Evolución estelar y procesos de Nucleosíntesis.

El universo está constituido en su mayor parte del elemento más simple, el hidrógeno, el cual representa el 74 % de la materia bariónica conocida. En el Cosmos, grandes nubes de hidrógeno pueblan la inmensidad del espacio. Bajo el efecto de su propia gravedad, partes de estas nebulosas o nubes pueden empezar a contraerse o

condensarse, formando enormes esferas de gas (protoestrellas). A medida que estas esferas se van contrayendo, aumenta la presión y temperatura en su interior. En esas condiciones, en dicha región central de la estrella pueden alcanzarse temperaturas que hagan posible que los núcleos atómicos de hidrógeno se aproximen lo bastante como para que, con ayuda del efecto túnel cuántico, puedan iniciarse reacciones nucleares de fusión, transformándose parte de ese hidrógeno en helio. Es el momento en el que comienzan los procesos de *nucleosíntesis estelar*. Una estrella, en su etapa principal de vida, podemos considerarla básicamente una enorme esfera de gas (en su mayor parte hidrógeno) muy caliente, en estado de plasma, compuesto de núcleos atómicos moviéndose a distintas velocidades (junto con electrones libres, fotones y neutrinos).

En una estrella de tamaño medio, nuestro sol por ejemplo, las temperaturas que se alcanzan son del orden de los 6.000 K en su superficie y 15 millones K en su centro. Debido al gradiente térmico entre las capas interiores y exteriores de la estrella se produce un flujo de energía hacia el exterior, que termina escapando fuera de la misma en forma de radiación. La energía liberada en las reacciones nucleares de su interior compensa esa pérdida por radiación, y permite a la estrella mantenerse en equilibrio térmico e hidrostático, radiando durante millones o miles de millones de años, en una estapa de estabilidad que se denomina *secuencia principal* y en la que transcurre la mayor parte de la vidad de la estrella.

La energía liberada tiende a expandir la estrella y compensar la tendencia a contraerse por su propio peso. Podemos considerar la estrella en este período como un enorme reactor termonuclear controlado por su propia gravedad. Durante la secuencia principal, en la región central de la estrella (donde la temperatura es más elevada) se está produciendo el primero de los procesos de nucleosíntesis, la fusión o "combustión" de hidrógeno en helio (H burning). Dependiendo de la masa de la estrella, y por lo tanto su temperatura en el núcleo y el ritmo al que tenga lugar la fusión del hidrógeno, la estrella permanecerá en la secuencia principal durante un tiempo que oscila entre millones y miles de millones de años. El Sol según nuestras estimaciones lleva 4.500 millones de años en la secuencia principal, y continuará en ella otros 4.500 millones.

Cuando el hidrógeno de la región central de se agota, las reacciones nucleares ya no pueden sustentar su peso, y la estrella sufre una contracción gravitatoria. Como consecuencia, su temperatura central se vuelve a elevar, lo cual permite que se inicie una nueva combustión en una capa de H alrededor del núcleo, antes inactiva. Esta combustión provoca una gran expansión de las capas exteriores de la estrella, aumentando enormemente su tamaño. La estrella en ese momento ha abandonado su fase de secuencia principal y se ha convertido en una gigante roja o RGB (Figura 1.2). Asimismo, la temperatura alcanzada hace posible que en el núcleo comience una nueva etapa o proceso de nucleosíntesis: la fusión del He para producir C (*He burning*). Pasado un tiempo, cuando termina la combustión del H y He en el núcleo, en estrellas de baja-intermedia masa (0,6-10 masas solares), se produce una nueva contracción que inicia la combustión de una capa de He alrededor del núcleo que lleva a la estrella a una nueva etapa de expansión denominada AGB (Asymptotic Giant Branch). En esta etapa, como describiremos posteriormente, es en la que se dan las condiciones para que se produzcan la mayor parte de las reacciones de captura de neutrones.



Figura 1.2: Recorrido de una estrella tipo solar en un diagrama de Hertzsprung-Russell, que relaciona su luminosidad o magnitud absoluta con su clase espectral (color) o temperatura de la superficie, y en el que se mueve conforme a los cambios sufridos por la estrella en sus distintas fases de ciclo vital [10].

Si la estrella es lo suficientemente masiva, en sucesivos ciclos de contracciones y combustión nuclear se sintetizarán nuevos núcleos cada vez más pesados, en etapas de fusión denominadas C, Ne, $O \ y \ Si \ burning$. La estrella se va configurando de esa forma en una estructura de capas de cebolla, con los elementos pesados en el centro y el Hidrógeno en el exterior. Para los núcleos más pesados que el ²⁸Si, la fuerte repulsión electrostática debida a su creciente número de protones dificulta su fusión, y se requieren cada vez mayores temperaturas. Adicionalmente, a esas altas temperaturas tienen lugar procesos de fotodesintegración que compiten con la producción de núcleos. Llega un punto, entorno al ⁵⁶Fe, a partir del cual la fusión es endotérmica, en el que este proceso de fusión hacia elementos pesados se detiene, y

se alcanza una situación de equilibrio estadístico nuclear. Para explicar la existencia de elementos más pesados que el ⁵⁶Fe, se hacen imprescindibles entonces otro tipo de procesos distintos de la fusión: estos son fundamentalmente captura de neutrones, los llamados procesos s(slow) [11] r(rapid) [12], y de captura de protones p(proton) [13]. Los procesos $s \ y \ r$ son responsables de la producción de la mayoría de los elementos pesados, y en ellos los elementos son sintetizados mediantes sucesivas capturas de neutrones (reacciones tipo (n,γ)) seguidas de desintegraciones beta. Por su parte, el más recientemente estudiado proceso p, necesario para la formación de los núcleos deficientes en neutrones de la parte superior de la carta de isótopos, se cree que se produce cuando la onda de choque de una supernova calienta hasta los 2.000-3.000 K materia formada por el proceso s, dando lugar a reacciones (γ,n) seguidas de $(\gamma,p), (p,\gamma) \ y/o \ (\gamma,\alpha)$. La Figura 1.3 recoge los procesos mencionados y su relación con los distintos isótopos.



Figura 1.3: Situación de los principales procesos de nucleosíntesis estelar en la carta de isótopos [5].

Los elementos que las reacciones nucleares han ido sintetizando a lo largo de la vida de la estrella son finalmente esparcidos por el medio interestelar en las últimas etapas del ciclo de vida de la estrella. Esto ocurre bien cuando la estrella expulsa sus capas exteriores, durante la fase de estrella AGB, las cuales son alejadas y dispersadas por su fuerte radiación formando lo que en astronomía se denomina un nebulosa "planetaria" (por su apariencia redondeada de planeta, vista con un telescopio), o



Figura 1.4: Izquierda: nebulosa planetaria M57 (fotografía de P. Jiménez Bonilla desde Sierra Nevada). Derecha: nebulosa M1, remanente de la explosión de una supernova en el año 1054 (fotografía del Telescopio Espacial Hubble).

bien de manera violenta, a enormes velocidades, en los finales explosivos tipo supernova (Figura 1.4). Dependiendo de la cantidad de masa que tenga la estrella, el final de su vida puede consistir básicamente en un lento enfriamiento (enana blanca) tras la expulsión de capas exteriores, en un final explosivo (supernova y formación de estrella de neutrones) o en un colapso gravitatorio total (formación de un agujero negro) [1].

1.1.3. Nucleosíntesis por captura de neutrones: proceso s y proceso r.

Determinadas reacciones que tienen lugar en ciertas condiciones estelares producen neutrones. Estos neutrones, que no están sujetos a la repulsión electrostática, pueden ser capturados por los núcleos presentes en el medio estelar. Si el núcleo producido tras la captura del neutrón sigue siendo estable, podrá seguir capturando sucesivamente neutrones, hasta alcanzar la inestabilidad. A partir de ese momento, podrá tener lugar una desintegración β , y si esto ocurre se habrá generado un núcleo del siguiente elemento de la tabla periódica. De esa forma, mediante procesos de sucesivas capturas de neutrones y desintegraciones β , continúa la nucleosíntesis de elementos más pesados que el ⁵⁶Fe. La denominación de s (slow) o r (rapid) process hace referencia a si los tiempos entre capturas sucesivas de neutrones son grandes o pequeños frente a los tiempos de desintegración β , lo que guarda relación con la densidad de neutrones presentes en el medio estelar. Si una vez que, tras una o varias capturas de neutrones, el núcleo producido es inestable y la probabilidad de que ocurra una desintegración beta es mucho mayor de que vuelva a ocurrir otra captura, nos encontramos en el caso de s-process. En este caso, la nucleosíntesis va discurriendo en la carta de isótopos por una región cercana al valle de estabilidad (Figura 1.5).



Figura 1.5: Esquema de producción de distintos isótopos mediante sucesión de capturas de neutrones y desintegraciones β en el proceso s en su recorrido por una región de la carta de isótopos.

El proceso r tiene lugar cuando nos encontramos en un entorno estelar con una alta densidad de neutrones, tal que aun para un núcleo inestable puedan producirse varias capturas de neutrones consecutivamente sin dar tiempo a una desintegración β . El proceso r permite que se sinteticen los núcleos más alejados del valle de estabilidad, hasta la línea de goteo de neutrones (*neutron drip line*).

Casos particulares e importantes en el proceso s son los llamados puntos de bifurcación o branching-points: en ellos la probabilidad de captura de un neutrón es del orden de la de una desintegración β , y se produce así una bifurcación en el posible camino del proceso [14][15]. En el proceso-r son también significativos los denominados waiting points (puntos de espera) donde el tiempo para una desintegración β es inusualmente alto para esa zona de la carta de núcleos.

La principal fuente de neutrones para el proceso s se piensa que la constituye la reacción ¹³C(α ,n)¹⁶O, la cual tiene tiene lugar en estrellas AGB [11]. Otra fuente importante es la reacción ²²Ne(α ,n)²⁴Mg, la cual tiene lugar en la combustión del He en estrellas masivas, y constituyendo la llamada componente débil del proceso s, responsable de síntesis de elementos con A<90 [5]. Los entornos estelares para el proceso r son en gran medida aún desconocidos, si bien se asocian con condiciones de entornos explosivos [12].

1.2. Secciones eficaces estelares.

1.2.1. Reacciones de captura de neutrones.

La interacción entre un neutrón y un determinado núcleo puede tener lugar a través de varios tipos de reacciones o canales, con distintas probabilidades de ocurrencia dependiendo de la energía del neutrón incidente y del núcleo implicado. Una posible clasificación podemos realizarla distinguiendo entre *reacciones directas* y *reacciones de núcleo compuesto*. En una *reacción directa*, el neutrón incidente interacciona sólo con algunos de los nucleones (por ejemplo en una dispersión elástica directa). Las reacciones directas ocurren en escalas típicas de tiempo de 10^{-22} s. Si en cambio el neutrón interacciona con el núcleo en su conjunto, siendo absorbido e incorporándose al sistema colectivo de nucleones, hablamos de una *reacción de núcleo compuesto*. Dicho núcleo compuesto se encuentra en un estado excitado, del cual se des-excitará a través de la emisión de gammas, de partículas (neutrón u otras), o mediante un proceso de fisión. La escala típica de tiempo para estas *reacciones de núcleo compuesto* es de 10^{-16} s [2].

La reacción de *captura radiativa* de neutrón, cuya sección eficaz es objeto de nuestro estudio, es una *reacción de núcleo compuesto*, en la que el neutrón queda incorporado al núcleo, creándose un nuevo núcleo en estado excitado, y que se desexcita mediante la emisión de una o varias gammas rápidas en cascada (*prompt gammas*). Un esquema de reacción de captura radiativa se muestra en la Figura 1.6. La energía de excitación del núcleo compuesto es igual a la suma de la energía del neutrón incidente E_n más la energía de separación de neutrón S_n (típicamente 5-10 MeV).



Figura 1.6: Esquema de niveles de energía y transiciones en una reacción de captura radiativa de neutrón.

Esta reacción podemos escribirla como

$$^{A}X + n \rightarrow ^{A+1}X^{*} \rightarrow ^{A+1}X + \gamma,$$

o simplemente

$${}^{A}X(n,\gamma) \rightarrow {}^{A+1}X$$
.

Un ejemplo es la reacción objeto de nuestro estudio,

$$^{197}\mathrm{Au}(\mathrm{n},\gamma) \rightarrow ^{198}\mathrm{Au}$$

1.2.2. Sección Eficaz y Tasa de Reacción.

Para dos núcleos o partículas que se aproximan, como el caso de un neutrón y un núcleo, la sección eficaz de una determinada reacción o interacción entre ellos es una medida cuantitativa que nos indica la probabilidad de que dicha reacción o interacción tenga lugar entre ellas. Si consideramos una situación como la del plasma estelar, en el que coexisten un número y densidad de partículas o núcleos que se mueven entre sí con una cierta velocidad de modo que pueden interaccionar, o bien si consideramos una reproducción de esa situación en laboratorio mediante un haz de partículas que se hace incidir sobre una región de un blanco o muestra, para una determinada reacción que puede ocurrir en esas condiciones entre haz incidente y blanco podemos definir su sección eficaz σ como [2]:

$$\sigma = \frac{1}{N} \cdot \frac{A}{\Phi},\tag{1.1}$$

donde A es el número de reacciones por unidad de tiempo, Φ el número de partículas incidentes por unidad de tiempo y N el número de núcleos del blanco que quedan dentro del haz, por unidad de superficie (asumiendo no superposición de núcleos). Como podemos ver analizando los factores de la eq. 1.1, la sección eficaz tiene dimensiones de área. Una mayor área intuitivamente asocia a una mayor probabilidad de "acierto" en la colisión o interacción entre dos partículas. Típicamente la unidades en la que se expresa la sección eficaz es el barn (1b = 10^{-28} m², aproximadamente el área de la sección de un núcleo de uranio) o milibarn (mb). En general la sección eficaz de una reacción entre dos partículas, entre dos núcleos o por ejemplo entre un neutrón y un núcleo, dependerá de la velocidad (o energía cinética) relativa entre ellas, es decir, $\sigma = \sigma(v)$ o $\sigma(E)$.

A partir de la sección eficaz podemos obtener un parámetro de referencia en los cálculos de Astrofísica Nuclear, la llamada *tasa de reacción* $r_{xy}(v)$. Esta se define como el *número de reacciones por centímetro cúbico y por segundo* para dos tipos X e Y de núcleos presentes en un determinado número en una región. La tasa de

reacción determina la evolución de las abundancias estelares a través de los procesos de nucleosíntesis.

Para una densidad de núcleos por cm³ de N_X y N_Y , suponiendo que se mueven con velocidad relativa entre sí v, y con una *sección eficaz* $\sigma(v)$ de reacción entre esos dos núcleos o partículas, la tasa de reacción se expresaría como

$$r_{xy}\left(v\right) = N_x \cdot N_y \cdot v \cdot \sigma\left(v\right) \tag{1.2}$$

Considerando sólo dos partículas, que tienen una determinada distribución de velocidades relativas entre ellas $\varphi(v)$, la tasa de reacción por par de partículas la hallaremos integrando para esas velocidades:

$$\langle \sigma v \rangle = \int v \cdot \varphi(v) \cdot \sigma(v) \, dv$$
 (1.3)

La tasa total de reacción r será igual entonces a:

$$r = <\sigma v > \cdot N_x \cdot N_y \tag{1.4}$$

Para los núcleos y partículas que se mueven dentro de la estrella, es posible hacer la siguiente consideración para su distribución de velocidades: durante la etapa principal de la vida de la estrella, el gas que la compone es no degenerado y no relativista, y se encuentra en equilibrio termodinámico, lo que se traduce en que para una temperatura T dada del gas (es decir, dentro una misma región o capa de la estrella), en la expresión 1.3 las velocidades de los núcleos $\varphi(v)$ siguen una distribución de Maxwell-Boltzmann (o Maxwelliana en términos de energía $\varphi(E)$) [1]. En la Figura 1.7 se representa la forma de una distribución maxwelliana de energía $\varphi(E) = E e^{-\frac{E}{kT}}$ para kT=30 keV.



Figura 1.7: Representación de la función $E \cdot e^{-\frac{E}{kT}}$ para kT=30 keV.

Siendo μ la masa reducida de las partículas, la relación entre la velocidad más probable v_T y la energía kT en la distribución de Maxwell-Boltzmann viene dada por:

$$kT = \frac{1}{2} \cdot \mu \cdot v_T^2, \tag{1.5}$$

y entre la velocidad más probable v_T y la velocidad media $\langle v \rangle$

$$\langle v \rangle = \frac{2}{\sqrt{\pi}} v_T. \tag{1.6}$$

En estas condiciones, la expresión para tasa de reacción por par de partículas $\langle \sigma v \rangle$ resulta [1]:

$$\langle \sigma v \rangle = \left(\frac{8}{\pi \cdot \mu}\right)^{1/2} \cdot \frac{1}{\left(kT\right)^{3/2}} \cdot \int_{0}^{\infty} \sigma\left(E\right) \cdot E \cdot e^{-\frac{E}{kT}} dE \tag{1.7}$$

En general, la tasa de reacción dependerá de la temperatura del plasma T.

1.2.3. Sección Eficaz Estelar o Maxwellian Averaged Cross Section (MACS).

Los neutrones disponibles en los interiores estelares y que intervienen en las reacciones de captura (procesos $s \ge r$) son rápidamente termalizados a través de colisiones elásticas (en tiempos de $\simeq 10^{-11}$ s), y sus velocidades siguen una distribución de Maxwell-Boltzmann (espectro en energía maxwelliano), con una determinada velocidad más probable v_T y un máximo para la energía kT. Para el cálculo de las tasas de reacción en estos procesos de captura de neutrones es costumbre trabajar con la denominada sección eficaz estelar $\langle \sigma \rangle$ o Maxwellian Averaged Cross Section (MACS), la cual es una sección eficaz que se define [1] a partir de la tasa de reacción $\langle \sigma v \rangle$ y de la velocidad más probable v_T para una temperatura T:

$$MACS \equiv <\sigma> = \frac{<\sigma v>}{v_T} \tag{1.8}$$

Para una determinada temperatura estelar T la sección eficaz estelar se calcula como:

$$MACS = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{1}{\left(kT\right)^2} \cdot \int_0^\infty \sigma\left(E\right) \cdot E \cdot e^{-\frac{E}{kT}} dE$$
(1.9)

O, equivalentemente:

$$MACS = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{\int_0^\infty \sigma(E) \cdot E \cdot e^{-\frac{E}{kT}} dE}{\int_0^\infty E \cdot e^{-\frac{E}{kT}} dE}$$
(1.10)

Como vemos, la sección eficaz estelar para una determinada energía kT se trata de una sección eficaz promediada (integrada) sobre la maxwelliana $E \cdot e^{-\frac{E}{kT}}$ (y multiplicada por un factor $\frac{2}{\sqrt{\pi}}$, que aparece al tomar en su definición la velocidad más probable v_T en lugar de la velocidad media $\langle v \rangle$).

El conocimiento de la MACS nos permitirá calcular directamente la tasa de reacción para una temperatura dada T. En los procesos de captura de neutrones, las temperaturas estelares de los distintos escenarios en los que creemos tienen lugar están en el rango de energías de neutrones de entre 5 y 400 keV. La MACS a kT=30 keV suele tomarse como referencia para realizar comparaciones entre distintas secciones eficaces, ya que corresponde a temperaturas típicas de combustión de He en gigantes rojas, en el que tiene lugar el proceso s [1] (kT=30 keV \leftrightarrow T= 0,348 · 10⁹ K). En la Tabla 1.1 se indican como ejemplo valores experimentales de MACS a kT=30 keV para varios isótopos en el entorno del ¹⁹⁷Au, tomados de KADONIS [16].

Tabla 1.1: MACS a kT=30 keV para varios isótopos en el entorno del ¹⁹⁷Au [16].

Ζ	А	Símbolo	MACS kT=30 keV (mb)	Incertidumbre (%)
78	195	Pt	860	$23,\!26$
78	196	Pt	183	8,74
78	198	Pt	92	4,99
79	197	Au	613	$1,\!14$
79	198	Au	840	$17,\!5$
80	196	Hg	204	$3,\!92$
80	198	Hg	173	$8,\!67$
80	199	Hg	374	$6,\!15$

Para modelar adecuadamente los procesos s y r es necesario conocer lo más exactamente posible los valores de secciones eficaces estelares para los distintos isótopos y escenarios implicados [17]. Existen bases de datos online donde estos valores están disponibles, siendo dos de las más importantes la citada KADoNiS (Karlsruhe) [16] y el National Nuclear Data Center (NNDC, Brookhaven) [18]. En general, es deseable disponer de medidas con incertidumbres menores al 5%, y en ciertos casos incluso del 3% o 1% para puntos o isótopos singulares como los presentes en los puntos de bifurcación. La Figura 1.8 muestra incertidumbres de secciones eficaces estelares disponibles [19]. Como podemos apreciar, para una parte importante de isótopos, en particular de número másico por debajo de 110 y por encima de 180, las incertidumbres actuales distan todavía de ser las requeridas. El trabajo en la medida experimental de estas secciones eficaces es tarea en la que continua trabajando activamente [20][21][22].



Figura 1.8: Incertidumbres en los datos de secciones eficaces estelares disponibles para el proceso s, a kT=30 keV [19]

1.2.4. Estándares en secciones eficaces de captura de neutrones.

Por necesidad (o conveniencia) de los métodos experimentales, muchas secciones eficaces son medidas o evaluadas respecto a otras secciones eficaces que se consideran bien conocidas. La IAEA (International Atomic Energy Agency) evalúa y publica una relación de reacciones nucleares de captura de neutrones para las cuales el valor de su sección eficaz se considera bien establecido (en determinados rangos de energía), y a las cuales otorga la categoría de estándar [23]. Resulta por lo tanto clave disponer de una evaluación precisa de estos estándares en amplios rangos de energía. Desde el punto de vista histórico, en 1987 se recogieron y publicaron evaluaciones de estándares que se incluyeron en los archivos ENDF/B-VI (Evaluated Nuclear Data File) y NEANDC/INDC (Nuclear Energy Agency Nuclear Data Commitee/International Nuclear Data Commitee) [24]. Posteriormente, y motivado por la aparición de nuevos datos experimentales, así como la mejora en la metodología de análisis y evaluación, apareció la necesidad de una revisión de estos estándares. Como consecuencia de ello, en 2001 se creó un proyecto de investigación coordinado por la IAEA (International Atomic Energy Agency) que concluyó en el 2007 con la publicación de la "International Evaluation of Neutron Cross-Section Standards" [25] [26]. En la tabla 1.2 se recogen los estándares actuales (2007) y las energías de neutrón para las que dichas reacciones se consideran un estándar. Como podemos apreciar, la sección eficaz de la reacción $^{197}Au(n,\gamma)$ está considerada un estándar a energías de neutrón térmica y entre 200 keV y 2,5 MeV. En la Figura 1.9 representamos la sección eficaz de ¹⁹⁷Au(n, γ) en función de la energía $d\sigma/dE$ ([27]).



Tabla 1.2: Reacciones consideradas Estándares IAEA para secciones eficaces de captura de neutrones, y rangos de energía para el que se los considera [23].

Figura 1.9: Sección eficaz diferencial $d\sigma/dE$ de la reacción ¹⁹⁷Au(n, γ) [27].

La MACS del oro tradicionalmente se ha utilizado como una referencia en Astrofísica Nuclear, donde una gran cantidad de secciones eficaces se miden respecto a ella [28] [29]. Sin embargo, por debajo de 200 keV. la sección eficaz de dicha reacción ¹⁹⁷Au(n, γ) no es considerada un estándar (salvo en el térmico). Gran parte de los escenarios estelares donde se sintetizan elementos por captura de neutrones corresponden a temperaturas para las que la energía de neutrón es precisamente inferior a 200 keV, lo cual impulsa la necesidad de nuevos datos y evaluaciones de la sección eficaz y de la MACS para la reacción ¹⁹⁷Au(n, γ) en este rango de energías. Además, la comparación de la medida de seccción eficaz estelar a kT=30 realizada en 1988 por Ratynski y Käppeler [28], tomada históricamente como referencia en Astrofísica Nuclear [16], muestra diferencias significativas con otras medidas recientes [30][31][32]. Esa recomendación de llevar a cabo nuevas medidas para el oro en ese dango de energía se cita explícitamente en el documento "International Evaluation of Neutron Cross-Section Standards: extending and updating" [33] publicado en el año 2011 por el INDC (International Nuclear Data Commitee) de la IAEA.

1.2.5. Técnicas para la medida experimental de secciones eficaces estelares: Tiempo de Vuelo y Activación.

En las reacciones de captura de neutrones en núcleos medios y pesados, los sistemas nucleares son extremadamente complejos, ningún modelo pueda predecir con exactitud los niveles de energía y otras propiedades nucleares, y si bien pueden hacerse estimaciones teóricas, las secciones eficaces deben ser medidas y contrastadas experimentalmente [1]. Los dos principales métodos utilizados para la medida experimental de secciones eficaces son el método de Tiempo de Vuelo y el método de Activación. El método de tiempo de vuelo (Time of Flight o TOF) se basa en la detección directa de las gammas rápidas (prompt gammas) que se producen en la reacción de captura del neutrón. Para el empleo de la técnica es necesario que los neutrones puedan ser generados en pulsos o paquetes que viajen o vuelen una cierta longitud antes de impactar en la muestra, un sistema de detección gamma y un sistema preciso de medición de tiempos. Un ejemplo de este tipo de facilidad se muestra en la Figura 1.10 [34].

El procedimiento básico del método es el siguiente:

- Al generarse un pulso o paquete de neutrones, de un cierto espectro en energía, el sistema de medición de tiempo (contador) se pone en marcha. Dentro de este paquete, los neutrones viajarán a distinta velocidad dependiendo de su energía, y alcanzarán la muestra en instantes distintos.
- Cuando un neutrón que haya alcanzado la muestra produce una captura y emisión de gammas, y estas gammas se detectan, el contador registra y almacena el momento de la detección.

Siendo conocida la distancia de vuelo de los neutrones (longitud del camino desde su origen hasta la muestra), y conocido el tiempo empleado por el neutrón en recorrerla (desde su emisión hasta la detección de los gamma), es posible determinar la energía del neutrón que ha producido la captura. Teniendo caracterizado el flujo producido de neutrones y la eficiencia de la detección, e irradiando con un número suficiente de pulsos durante un determinado tiempo, a partir del número de detecciones para cada intervalo de energía de los neutrones es posible en principio construir una sección eficaz experimental en función de la energía $\sigma(E)$ o sección eficaz diferencial $\frac{d\sigma}{dE}$. A partir de esta sección eficaz diferencial, la MACS para un determinado kT se puede calcular analíticamente, integrando y ponderando en energía dicha sección eficaz diferencial con una distribución maxwelliana.

En el método del tiempo de vuelo, la resolución que podemos obtener en medida de la energía de los neutrones (y en la sección eficaz por tanto), dependerá de la longitud de vuelo de los neutrones, y de la duración de los pulsos, y viene dada por la siguiente expresión [1]:

$$\frac{\Delta E_n}{E_n} = 2 \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\Delta l}{l}\right)^2},\tag{1.11}$$

siendo L la longitud de vuelo, t el tiempo de vuelo, y Δl y Δt las incertidumbres, asociadas a la longitud y duración los pulsos. Longitudes de vuelo considerables, junto con pulsos breves, favorecen por tanto una mayor resolución en energía, lo cual resulta importante por ejemplo a la hora de resolver resonancias en las sección eficaces. Como contrapartida, longitudes de vuelo grandes reducen el flujo de neutrones recibido por la muestra, al presentar esta un menor ángulo sólido.



Figura 1.10: Esquema de la facilidad de tiempo de vuelo n_TOF, en CERN [34].

Los neutrones necesarios para la medida pueden obtenerse con distintos procesos o técnicas: a partir del impacto de haces muy energéticos sobre un blanco pesado (*spallation*), reacciones fotonucleares (γ ,n) producidas por bremsstrahlung al bombardear un blanco pesado con electrones, o bien por reacciones (p,n) tales como ⁷Li(p,n) empleando aceleradores electrostáticos tipo VdG en modo pulsado o tipo

RFQ de alta intensidad de haz [1]. La detección de gammas, dependiendo de la proporción o probabilidad de captura de neutrones frente a la de dispersión, usualmente emplea dos estrategias o sistemas distintos. Si la proporción de captura es favorable, habitualmente se utiliza un sistema en el que todas las gammas producidas en cada captura son detectadas, con el total de energía depositada en el detector. Esta técnica es conocida como modo *calorímetro*, requiriendo de detectores en geometría 4π y eficiencias cercanas al 100 %. Si en cambio el fenómeno de dispersión de neutrones es predominante, la medida se basará en la detección de un sólo gamma y el empleo de detectores de baja eficiencia y baja sensibilidad a los neutrones [2]. En la Tabla 1.3 se enumeran algunas facilidades significativas para medidas de tiempo de vuelo, con algunas de las características descritas.

Facilidad	n_TOF CERN	Gelina IRMM	LENOS LNL	Sevilla CNA
Producción	Spallation	(γ,n)	(p,n) RFQ	(p,n) VdG
neutrones				
Energía ac.	$20 {\rm GeV}$	$100 {\rm ~MeV}$	$5 { m MeV}$	$3 { m MeV}$
Pulso	6 ns	1 ns	1 ns	$1 \mathrm{ns}$
Blanco	Pb	U	Li	Li
$E_n \min$	$0,1 {\rm ~eV}$	10 eV	$1 \ \mathrm{keV}$	$1 \ \mathrm{keV}$
$E_n \max$	$800 { m MeV}$	$10 { m MeV}$	$0,5 {\rm ~MeV}$	$0,5 {\rm ~MeV}$
Flujo (n/s)	$2 \cdot 10^{15}$	$3,4{\cdot}10^{13}$	$1 \cdot 10^{14}$	$1 \cdot 10^{9}$
Longitud de	$185 \mathrm{m}$	$8-400 \mathrm{m}$	1 m	0,5-1 m
vuelo				

Tabla 1.3: Facilidades europeas de Tiempo de Vuelo

El método del tiempo de vuelo se viene empleando con profusión en la Astrofísica Nuclear para la obtención de secciones eficaces estelares [35]. Existe sin embargo otro método alternativo o complementario al de tiempo de vuelo para la medida de secciones eficaces estelares de determinados isótopos, que el llamado de activación neutrónica [1][2]. En este método, que se describirá en detalle en el siguiente capítulo, si tras la irradiación con neutrones sobre la muestra a medir los núcleos producidos son inestables, una posterior medida de la radioactividad inducida en la muestra nos podría permitir obtener una sección eficaz experimental. La técnica de activación ha sido ampliamente utilizada durante décadas [36][29][28] hasta la actualidad [37][38][39] [20][22].

Cuando los núcleos creados en la irradiación no sean radioactivos, o bien no poseen una actividad suficiente puede recurrirse como posible alternativa al empleo de Activación + AMS (*accelerator mass espectrometry*) para su separación y medida [22][40][41].

Capítulo 2

Descripción de la técnica experimental de activación.

2.1. Activación con neutrones de espectro quasimaxwelliano (QMNS).

2.1.1. Fundamentos del método de activación con neutrones.

El método de activación se fundamenta en que, una vez se ha irradiado una muestra con neutrones y han tenido lugar un cierto número de reacciones de captura, si los núcleos producidos son inestables, y esos núcleos poseen una actividad y tiempo de desintegración adecuados para su medida (como el caso del ¹⁹⁸Au), la medida de esta radioactividad residual presente en la muestra nos permitirá deducir una sección eficaz experimental. Esta sección eficaz experimental σ_{exp} se define y calculará como

$$\sigma_{exp} = \frac{1}{N_x} \cdot \frac{A_x}{\Phi_n} \tag{2.1}$$

donde A_x es el número de capturas o activaciones (el cual deduciremos de la radioactividad medida en la muestra), Φ_n el flujo de neutrones recibido por la muestra, y N_x el espesor másico de la muestra (el espesor que atraviesen los neutrones multiplicado por su densidad).

En la técnica de activación se realiza una medida de la radioactividad residual de la muestra una vez ha finalizado la irradiación con neutrones. La sección eficaz experimental σ_{exp} que obtendremos será por tanto una sección eficaz para el total del flujo acumulado de neutrones, es decir una sección eficaz integral. Para un flujo de neutrones de una cierta distribución en energía y tiempo $\phi(E, t)$, la relación entre las secciones eficaces integral experimental σ_{exp} y la sección eficaz diferencial $\sigma(E)$ es:

$$\sigma_{exp} = \frac{\iint \sigma \left(E \right) \cdot \phi \left(E, t \right) \, dE \, dt}{\iint \phi \left(E, t \right) \, dE \, dt} \tag{2.2}$$

y para el flujo integrado en el tiempo de irradiación $\phi(E) = \int \phi(E, t) dt$,

$$\sigma_{exp} = \frac{\int \sigma(E) \cdot \phi(E) \, dE}{\int \phi(E) \, dE} \tag{2.3}$$

Si el flujo de neutrones $\phi(E)$ con el que irradiamos nuestra muestra fuera un flujo de neutrones maxwelliano como el que se da en el interior de las estrellas, $\phi(E) = E \cdot e^{-E/kT}$, nuestra medida de sección eficaz experimental nos proporcionaría la sección eficaz estelar o MACS simplemente como $MACS = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \sigma_{exp}$. Sin embargo, teniendo en cuenta las diferencias entre un flujo maxwelliano ideal y el flujo real disponible en nuestro laboratorio, tendremos que introducir un factor de corrección experimental K_{macs} . Este se define relacionando las secciones eficaces experimentales que se obtendrían con un flujo de neutrones estelar ideal con la que se obtendría obtenida con un flujo real no ideal estelar de neutrones de laboratorio:

$$K_{macs} = \frac{\int_{E=0}^{\infty} \sigma\left(E\right) \cdot E \cdot e^{-E/kT} dE \left/ \int_{0}^{\infty} E \cdot e^{-E/kT} dE}{\int_{0}^{\infty} \sigma\left(E\right) \cdot \phi_{exp}\left(E\right) dE \left/ \int_{0}^{\infty} \phi_{exp}\left(E\right) dE} \right.$$
(2.4)

La Sección Eficaz Estelar (MACS) para una determinada kT se obtendría entonces a partir de la sección eficaz experimental como:

$$MACS = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot K_{macs} \cdot \sigma_{exp} .$$
 (2.5)

Como se discutirá más adelante, para el cálculo de este factor K_{macs} será necesario un cierto conocimiento previo o suposición de la sección eficaz diferencial $\sigma(E)$.

2.1.2. Medida de la actividad y correcciones experimentales necesarias para el cálculo de la sección eficaz experimental.

Para el cálculo o estimación del total de núcleos activados A_x a partir de la medida de radioactividad gamma de la muestra irradiada es necesario tener en cuenta las condiciones experimentales. El procedimiento de medida por activación consta básicamente de tres fases en el tiempo:

- 1. Irradiación de la muestra con neutrones, durante un tiempo t_a .
- 2. Tiempo de espera o preparación de la medida t_{w} , transcurrido entre la finalización de la irradiación y el comienzo de la medida de radioactividad.
3. Medida de la radioactividad (gamma) de la muestra con un detector (gamma), durante un tiempo t_m .

La Figura 2.1 muestra un esquema de la evolución del número de núcleos radioactivos producidos A(t) presentes en una muestra en un momento determinado t durante las tres fases del experimento. Teniendo en cuenta que los núcleos radioactivos comienzan a desintegrarse desde su producción (desde el inicio de la irradiación), podemos identificar en el esquema las cantidades A_x , que corresponde al número total de núcleos radioactivos producidos, y ΔA_x , el número de núcleos que se desintegran durante el tiempo de medida t_m .



Figura 2.1: Esquema de la evolución del numero de núcleos radioactivos presentes A(t) durante las distintas fases del experimento de activación (irradiación, espera y medida de la actividad).

La medida de la radioactividad producirá en nuestro detector (gamma) un cierto número total de cuentas gamma C_x , que podremos estimar mediante una adecuada espectrometría gamma. Adicionalmente, para obtener una expresión de la sección eficaz a partir de los datos experimentales de medida de radioactividad (del número de cuentas) tendremos que calcular una serie de factores o correcciones:

1. Las desintegraciones de ΔA_x núcleos durante el tiempo de medida t_m producirán un número de gammas igual a $\Delta A_x \cdot I_{\gamma x}$, siendo $I_{\gamma x}$ la intensidad de la gamma. Sólo una parte de esas gammas emitidas será registrada por nuestro detector, debido por una parte a la absorción y dispersión que sufrirán las gammas en materiales antes de llegar al detector, y que modelamos por un factor de transmisión $k_{\gamma x}$. Por otra parte, nuestro detector gamma tendrá una cierta eficiencia (intrínseca y geométrica), que modelaremos por el factor $\varepsilon_{\gamma x}$. La relación entre número de desintegraciones durante el tiempo de medida ΔA_x y el número de cuentas de pico gamma C_x registradas por nuestro detector vendrá dada entonces por

$$C_x = \Delta A_x \cdot I_{\gamma x} \cdot \varepsilon_{\gamma x} \cdot k_{\gamma x} \tag{2.6}$$

1. El número de desintegraciones durante la medida, ΔA_x , podremos a su vez relacionarla con el número total de activaciones producidas durante la irradiación, A_x , teniendo en cuenta la ley de desintegración radioactiva (Figura 2.1), y será posible encontrar un factor de desintegraciones f_{dx} tal que

$$\Delta A_x = f_{dx} \cdot A_x \tag{2.7}$$

El número total de activaciones o capturas producidas A_x calculado a partir de la medida de radioactividad y las correcciones vendrá dado finalmente por

$$A_x = \frac{C_x}{I_{\gamma x} \cdot f_{dx} \cdot k_{\gamma x} \cdot \varepsilon_{\gamma x}}$$
(2.8)

2.1.3. Producción de neutrones de espectro en energía cuasimaxwelliano (QMNS).

Si bien obtener en laboratorio un flujo de neutrones con espectro maxwelliano estelar absolutamente ideal no resulta en principio viable, sí pueden obtenerse flujos cuyo espectro se le aproxima bastante, a determinados kT, con la ayuda de aceleradores por medio de reacciones tipo (p,n). En concreto la reacción ⁷Li(p,n) tiene dos propiedades que la hacen especialmente interesante para el método de activación:

- 1. Para ciertas energías de protón ligeramente superiores al umbral de reacción (1880 keV) los neutrones producidos presentan un espectro en energía muy similar a un espectro maxwelliano. El mejor ajuste se produce para una energía de protón de 1912 keV, con un espectro próximo al de una maxwelliana de kT=25 keV, y corrección K_{macs} del orden de 0,96. A este espectro lo llamamos cuasi-maxwelliano o QMNS [28][29] (Figura 2.2).
- 2. A energías poco superiores al umbral, los neutrones se emiten cinéticamente colimados en la dirección del haz. Para $E_p=1912$ keV, la totalidad de neutrones se emiten dentro de un cono de apertura 140 grados. Ello permite que si colocamos la muestra que queremos irradiar suficientemente cerca del Li, esta puede recoger en principio todo el flujo de neutrones producido (Figura 2.3).

En el Anexo se detallan más características de la reacción ${}^{7}\text{Li}(p,n){}^{7}\text{Be}$ y de los flujos de neutrones producidos [42]. Además de la reacción sobre litio, existen también otras posibles reacciones (p,n), sobre ${}^{18}\text{O}$ o ${}^{3}\text{H}$, que pueden utilizarse [43] [44], con ajustes a otros kT (Figura 2.4) Su desventaja principal frente a la reacción ${}^{7}\text{Li}(p,n)$ es poseer tasas de producción de neutrones sensiblemente menores, de un orden de magnitud para ${}^{3}\text{H}(p,n)$ y de cuatro para el ${}^{18}\text{O}(p,n)$.

La técnica de activación con estos flujos de neutrones de espectro cuasi-maxweliano para la medida de secciones eficaces estelares ha sido extensivamente utilizada durante décadas, desde las medidas de Beer & Käppeler [29] hasta la actualidad [22].



Figura 2.2: Espectro experimental de neutrones QMNS (quasi-maxwellian neutron spectrum) producido por la reacción $^{7}Li(p,n)$ a $E_{p} = 1912$ keV, comparado con un espectro maxwelliano ideal de kT=25,3 keV (figura reproducida de [28]).



Figura 2.3: Esquema de producción de neutrones mediante la reacción ⁷Li(p,n).



Capítulo 2. Descripción de la técnica experimental de activación.

kT = 5.1 keV

kT = 52 keV

Figura 2.4: Espectros de energía de fujos de neutrones producidos en las reacciones ${}^{18}O(p,n)$ y ${}^{3}H(p,n)$ (tomados de [43] [44]).

Comparada con otros métodos, la técnica de activación resulta adecuada para su empleo en aceleradores que trabajen en modo de haz continuo, como aceleradores electrostáticos existentes en centros de investigación tales como IRMM [45] o CNA [46]. Una importante ventaja es que la muestra puede colocarse cerca de la fuente de neutrones, cubriendo un gran ángulo sólido, de modo que el flujo de neutrones que recibe la muestra puede resultar de varios órdenes de magnitud superior a los que recibe con otras técnicas como tiempo de vuelo. Esto a su vez permite que el experimento se pueda llevar a cabo con muestras de una cantidad de masa relativamente baja, lo cual es importante para isótopos difíciles de conseguir o sintetizar. En los que casos en que ambas técnicas de tiempo de vuelo y activación resultan viables, estas pueden resultar complementarias, como se explicará en el capítulo de discusión.

2.1.4. Medidas de activación respecto a una referencia.

En la práctica, para medir por activación la sección eficaz de un determinado núcleo, esta medida se lleva a cabo normalmente utilizando otro núcleo como referencia, para el que su sección eficaz la consideramos como bien conocida (idealmente utilizando un estándar como referencia). En estas medidas relativas, colocamos la muestra "X" cuya sección eficaz queremos medir entre dos muestras de la referencia (p.ej entre dos muestras de ¹⁹⁷Au), como se refleja en el esquema de la Figura 2.5. En ese caso, la relación entre secciones eficaces experimentales sería:

$$\frac{\sigma_X}{\sigma_{ref}} = \frac{N_{ref}}{N_X} \cdot \frac{\Phi_{nref} \cdot A_X}{\Phi_{nX} \cdot A_{ref}},\tag{2.9}$$



Figura 2.5: Esquema de experimento de medida por activación con flujo QMNS de una muestra X respecto a una referencia (oro en este caso).

Si consideramos que el flujo de neutrones recibido por la muestra a medir es el mismo que atraviesa las muestras de referencia, $\Phi_{nx} = \Phi_{nAu}$, podemos eliminarlo y es posible entonces expresar el cálculo de la sección eficaz de la muestra a medir en función de la sección eficaz de la referencia:

$$\sigma_X = \sigma_{ref} \cdot \frac{N_{Au}}{N_X} \cdot \frac{A_X}{A_{ref}},\tag{2.10}$$

$$MACS_X = MACS_{ref} \cdot \frac{K_{macsX}}{K_{macsref}} \cdot \frac{N_{ref}}{N_X} \cdot \frac{A_X}{A_{ref}}.$$
 (2.11)

La sección eficaz de la muestra X se calcula entonces a partir de las medidas de las activaciones de la muestra a medir A_x y de la muestra de referencia A_{ref} , de sus espesores másicos N y de la sección eficaz de la muestra de referencia (σ_{ref} o MACS_{ref}). En medidas de activación en astrofísica nuclear, el ¹⁹⁷Au es la referencia habitual [28].

Este método de activación respecto a una referencia y las expresiones 2.10 y 2.11 para el cálculo de la sección eficaz estelar han sido utilizadas históricamente hasta la actualidad en un gran número de medidas. Sin embargo, como se detallará más adelante, el análisis de datos y el capítulo de discusión en la presente tesis muestran la conveniencia de incorporar una corrección adicional, que no se está teniendo en cuenta en este tipo de medidas relativas por activación con espectro QMNS. Esta corrección hace referencia al distinto efecto que la apertura angular del flujo de neutrones puede tener sobre las muestras a medir (X) y de referencia (Au). Dichas correcciones por apertura angular del flujo sobre una muestra plana, que llamaremos k_{fX} y k_{fAu} y se explicarán más adelante, no se cancelarían en numerador y denominador de la expresión 2.9 y deberían por tanto ser valoradas. Una estimación de estas correcciones y del impacto de su carencia supone una aportación original de la presente tesis.

2.1.5. Medida de la sección eficaz estelar del oro.

Existe un caso más complejo, estudiado en esta tesis, de tener que realizar una medida no relativa a otra sección eficaz de referencia, sino una medida directa del propio estándar o referencia, como el caso del oro. Para este tipo de medidas, al no poder eliminar el flujo o cantidad de neutrones que atraviesa la muestra de la expresión 2.1, deberemos estimarlo. Una posibilidad es relacionarlo con el número de núcleos inestables de ⁷Be producidos, los cuales podremos estimar de la medida de su radioactividad. Considerando la reacción ⁷Li(p,n)⁷Be a $E_p=1912$ keV, el número total de neutrones emitidos Φ_N será igual al número de núcleos de ⁷Be producidos en la muestra de Li (número de activaciones A_{Be}):

$$\Phi_N = A_{Be} \tag{2.12}$$

Para un caso ideal en el que todos los neutrones producidos incidieran en la muestra, nuestro flujo total incidente sería Φ_N . Sin embargo, en el experimento real tendremos que obtener un factor de corrección experimental k_s que dé cuenta de la posible dispersión y pérdida de algunos de esos neutrones antes de incidir en la muestra, bien porque parte de los neutrones emitidos a ciertos ángulos no alcancen la muestra o bien porque sean dispersados por materiales (el propio Li y el soporte de Cu la muestra) antes de alcanzarla. De ese modo, el flujo recibido por la muestra Φ_n sería

$$\Phi_n = A_{Be} \cdot k_s \tag{2.13}$$

Por otra parte, en la eq. 2.1 la sección eficaz y espesor másico N_x se definen para un flujo de neutrones perpendicular a una muestra plana, de un espesor determinado. Sin embargo, la apertura angular del haz de neutrones producido en la reacción ⁷Li(p,n)⁷Be implica que los neutrones que no inciden perpendicularmente a la muestra tengan un mayor recorrido dentro de ella, es decir atraviesen un mayor espesor (másico), como apreciamos en el esquema de la Figura 2.6.



Figura 2.6: Representación de neutrones atravesando una muestra con distintos ángulos de incidencia.

Este efecto de mayor espesor aparente N'_x debe tenerse en cuenta introduciendo un factor de corrección, que llamaremos corrección por muestra plana k_f , como refleja la ec. 2.14, y cuyo cálculo se detallará más adelante.

$$N'_x = N_x \cdot k_f \tag{2.14}$$

Teniendo en cuenta estas dos correcciones k_s y k_f , la sección eficaz experimental de captura de neutrones σ_{exp} se expresaría entonces como:

$$\sigma_{exp} = \frac{1}{N_x} \cdot \frac{A_x}{A_{Be}} \cdot \frac{1}{k_s} \cdot \frac{1}{k_f}$$
(2.15)

Podemos ahora relacionar el flujo total de neutrones producidos o activaciones A_{Be} con la medida de la radioactividad del ⁷Be producido, ya que este es inestable: el ⁷Be se desintegra por captura electrónica a ⁷Li, con una semivida de 53,3 días, y en la desintegración se emite una gamma de 478 keV con I = 10,52 % (Figura 2.7).



Figura 2.7: Esquema de desintegración del ⁷Be [47].

La medida y recuento de esas gammas de 478 keV procedentes de la muestra de ⁷Li una vez finalizada la irradiación nos permitirá deducir el número de núcleos de ⁷Be producidos A_{Be} . Combinando (2.15) y (2.8), las expresiones finales de sección eficaz experimental y sección eficaz estelar que resultan en función de los datos experimentales y correcciones necesarias son:

$$\sigma_{exp} = \frac{1}{N_x} \cdot \frac{C_x \cdot I_{\gamma Be} \cdot f_{dBe} \cdot \varepsilon_{\gamma Be} \cdot k_{\gamma Be}}{C_{Be} \cdot I_{\gamma x} \cdot f_{dx} \cdot \varepsilon_{\gamma x} \cdot k_{\gamma x}} \cdot \frac{1}{k_s} \cdot \frac{1}{k_f}.$$
 (2.16)

$$MACS = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot k_{macs} \cdot \sigma_{exp}.$$
 (2.17)

2.2. Producción de neutrones de espectro maxwelliano (MNS).

2.2.1. Necesidad y fundamentos de la mejora del método de activación.

Como se ha descrito en apartados anteriores, existe una diferencia en la forma entre los espectros en energía de los flujos de neutrones utilizados en los experimentos clásicos de activación, como los producidos por la reacción ⁷Li(p,n) (QMNS), y un espectro estelar ideal (maxwelliano). Una diferencia evidente se aprecia en la región de energías más altas del espectro: mientras que un espectro maxwelliano posee una cola que se extiende hasta teóricamente el infinito, los flujos experimentales de neutrones sólo tienen componentes hasta una cierta energía de corte. Así por ejemplo, para una energía de protón de 1912 keV en la reacción $^{7}Li(p,n)$, dicha energía de corte se encuentra en torno a los 110 keV. Como consecuencia de esta diferencia entre la forma de espectro de un flujo QMNS y un flujo estelar maxwelliano ideal, es necesario calcular y añadir una corrección para obtener una sección eficaz estelar a partir de las medidas experimentales. Y en particular, la consecuencia del corte o truncamiento del espectro QMNS es que al no tener nuestro flujo componentes a partir de una cierta energía, a la hora de evaluar la sección eficaz estelar que estamos intentando medir perdemos la información o contribución de la sección eficaz diferencial de esa región de energía. Si para prolongar esa cola de alta energía aumentamos la energía de protón en la reacción (p,n), esto se traducirá efectivamente en una producción de neutrones de más alta energía, y el punto de corte del espectro de neutrones se desplazará por tanto a valores superiores. Sin embargo, al mismo tiempo la forma del espectro en energía de los neutrones irá perdiendo similitud con la de una distribución maxwelliana [42]. El mejor compromiso utilizando la reacción ⁷Li(p,n) se alcanza precisamente entorno a $E_p = 1912$ keV [28].

Para ofrecer una posible solución o mejora a estas limitaciones, se publica en el año 2009 el artículo "A Method to Obtain a Maxwell–Boltzmann Neutron Spectrum at kT =30 keV for Nuclear Astrophysics Studies" [48]. La idea central del método es la siguiente: si para el haz de protones incidente en lugar de utilizar un haz monocromático o estrecho en energía (ancho típico de 1 keV en un acelerador VdG), se utiliza un haz de una anchura en energía mayor, y con una determinada forma o distribución en energía (por ejemplo gaussiana), es posible generar un flujo de neutrones con una distribución en energía más próxima a una maxwelliana. El fundamento del método es que si el haz de protones es más extenso en su espectro de energía y tiene cierta proporción de componentes de más alta energía, de una determinada distribución, estas podrían generar neutrones de energías más altas, prolongando la cola del espectro pero sin perder la semejanza con una maxwelliana.

2.2.2. Descripción del método de producción de neutrones MNS.

A nivel experimental, en [48] se propone que esta conformación de energía del haz de protones a una gaussiana puede conseguirse o aproximarse en gran medida introduciendo una lámina o "degradador" en la línea del haz, antes de que estos incidan en la lámina de ⁷Li, como se muestra en el esquema de la Figura 2.8. El efecto que esta lámina provoca es una pérdida de energía de los protones al atravesarla, al mismo tiempo que su espectro en energía sufre un ensanchamiento o dispersión, que podremos aproximar por una gaussiana (GPD o gaussian proton distribution). En la Figura 2.9 se recogen los espectros incidentes y GPD de medidas experimentales realizadas en el CNA (Sevilla) para de un haz incidente de protones de 3,665 MeV, tras atravesar una lámina de aluminio de 75 µm. Los detalles de la medida pueden consultarse en [49].



Figura 2.8: Esquema de montaje experimental para la producción de neutrones de espectro maxwelliano (MNS), mediante la introducción de una lámina o degradador de Al en el haz de protones antes de su impacto en el blanco de Li.

Las propiedades o características de la gaussiana generada (energía central y FWHM) dependerán de la energía inicial del haz de protones incidente, y del material y espesor de la lámina. En [48] y [49] se describe la utilización para este fin de láminas de carbono y de aluminio respectivamente, adecuadas a este fin para los haces empleados, debido a sus características mecánicas, térmicas y reactivas a las energías implicadas. Para encontrar cuál es la combinación óptima (o suficientemente buena) de espesor de lámina y energía de haz incidente que consigue un espectro de neutrones con una buena aproximación a una determinada maxwelliana, se puede proceder de una forma iterativa, evaluando el espectro de neutrones producido por diferentes GPD. Para ello los autores de [48] y [49] programaron una rutina (que llamaremos LZ) en código FORTRAN mediante el cual se obtienen ficheros



Figura 2.9: Medida experimental realizada en CNA del espectro en energía de un haz de protones de energía central 3,665 MeV, antes (proton beam) y despúes (GPD) de atravesar una lámina de Al de 75 m de espesor [49].

conteniendo la distribución en energía (y ángulo) de los neutrones producidos por un flujo incidente gaussiano de protones (GPD). La programación de dicho código está basada en la cinemática y propiedades de la reacción ⁷Li(p,n), bien conocidas, especialmente para energías ligeramente superiores al umbral de 1881 keV, como se detalla en el Anexo, y en las expresiones analíticas para las distribuciones en ángulo y energía de los neutrones producidos para distintas energías de protón sobre Li tal como se describen en la publicación de Lee & Zhou [42]. El GPD utilizado como entrada para el código puede obtenerse de otros códigos disponibles, como SRIM, disponible online [50]. Para cada material (lámina) a estudiar, SRIM calcula cuál es la variación y dispersión de energía que sufre el haz de protones de una determinada energía al atravesarlo (Figura 2.10).

El espectro de neutrones obtenido para una determinada GPD, calculado con el código LZ, puede ser comparado con una maxwelliana ideal, mediante un coeficiente de correlación (\mathbb{R}^2). Se puede obtener una curva de esta \mathbb{R}^2 , llevando a cabo un proceso iterativo de simulación (con SRIM y código FORTRAN), en el que pueden fijarse y variarse bien el espesor de la lámina o bien la energía de haz incidente. La Figura 2.11 muestra la curva de \mathbb{R}^2 con un maxwelliana de kT=30 keV, fijada la energía de haz incidente a 5 MeV sobre una lámina de carbono, y variando la energía media de la GPD (la cual depende del espesor de la lámina de carbono). El máximo de \mathbb{R}^2 , con $\mathbb{R}^2 = 0.997$, se observa que se da para una energía media de GPD de alrededor de 1,72 MeV, que para un haz de 5 MeV corresponde a una lámina de carbono de 150,6 µm. La Figura 2.12 muestra la simulación del espectro de los neutrones generados por una GPD producida por un haz de 5 MeV al atravesar una lámina de carbono de 150,6 µm, comparado con el de una maxwelliana ideal de

kT=30 keV.



Figura 2.10: Espectro en energía obtenido con SRIM para un haz estrecho de protones de 5 MeV tras atravesar una lámina de carbono de 150,6 μ m de espesor [48].



Figura 2.11: Coeficiente \mathbb{R}^2 entre el espectro de los neutrones generados y un espectro maxwelliano de kT=30 keV, en función de la energía media de la gaussiana producida por el paso del haz tras el degradador [48].

El procedimiento iterativo descrito se puede realizar también, como se ha indicado, fijando el espesor de la lámina o degradador y variando en su lugar la energía de haz incidente. En la medida descrita en [49] se utilizó una lámina de aluminio de



Figura 2.12: Simulación del espectro de los neutrones generados por una GPD producida por un haz de 5 MeV al atravesar una lámina de carbono de 150,6 μ m, comparado con el de una maxwelliana ideal de kT=30 keV [48].

75 µm de espesor, para la que se encuentra que el mejor ajuste a una maxwelliana se da a una energía de protón próxima a 3,7 MeV. La distribución GPD resultante tras pasar los protones la lámina de aluminio se ajusta con $\mathbb{R}^2 = 0,999$ a una gaussiana de $\mathbb{E}_c = 1860 \text{ keV y FWHM} = 162 \text{ keV}$ (para energías por encima del umbral de 1881 keV). Este mismo montaje y parámetros, ya probados en dicha medida, han sido los utilizados para la presente medida de activación del oro mediante esta técnica realizada en el CNA y descrita en esta memoria.

Es importante destacar que con el código LZ empleado para la simulación de los espectros se obtiene un fichero con las distribuciones de energía y ángulo de los neutrones producidos por la reacción ⁷Li(p,n), el cual puede ser utilizado como entrada para realizar simulaciones Monte Carlo (MCNPX) completas de montajes experimentales, con las que obtener espectros en distintas regiones o partes del mismo incluyendo el efecto del transporte de los neutrones en los materiales [51][52]. En la Figura 2.13 se muestran estas simulaciones utilizando MCNPX de espectros de neutrones incidentes en las caras frontal y posterior de las láminas de Au y Ta, en este caso del experimento de activación realizado en el CNA para la medida de la sección eficaz del ¹⁸¹Ta tomando el ¹⁹⁷Au como referencia [49].

Una característica adicional a tener en cuenta en este método, especialmente en el cálculo de las correcciones experimentales, es que en el flujo de neutrones producidos aumenta la apertura angular del haz, debido a esas componentes de mayor energía necesarias para completar la cola en energía. La mayor parte de los neutrones producidos se siguen emitiendo próximos a la dirección del haz, hacia adelante, pero una pequeña parte de ellos se emiten a ángulos incluso superiores a 90 grados, como refleja la Figura 2.14.



Figura 2.13: Simulaciones de espectros de neutrones MNS incidentes en las caras frontal y posterior de las láminas de Au y Ta comparados con el ajuste a maxwelliana de kT=30 keV [49].



Figura 2.14: Distribución angular de los neutrones producidos con el metodo MNS, generada con el código Fortran LZ.

Es muy destacable finalmente como característica del método que variando las energías y espesores del degradador pueden encontrarse buenos ajustes para maxwellianas no sólo de kT=30 keV, sino para maxwellianas de energías de al menos hasta kT=55 keV.

2.2.3. Espectros simulados frente a espectros experimentales de neutrones

Como se ha indicado en apartados anteriores, el código FORTRAN citado y utilizado para las simulaciones descritas está basado en expresiones analíticas de las distribuciones en ángulo y energía de la reacción $^{7}Li(p,n)$ [42]. Tanto el código como la veracidad de los espectros producidos por el mismo pueden validarse frente a datos experimentales, como se llevó a cabo en [49], comparando simulaciones de espectros QMNS obtenidos con dicho código Fortran y simulaciones Montecarlo (MCNPX) frente a medidas experimentales disponibles de dicho espectro QMNS, como la realizada por Ratynski&Keppeler [28] y la más reciente de Lederer [53]. Las figuras 2.15 y 2.16 muestran los espectros experimentales y simulados, comparados con estas medidas experimentales. Se observa que el acuerdo entre espectros simulados y experimentales es excelente. La ligera diferencia con el espectro experimental de Lederer en la región la cola de energía entorno a los 110 keV puede ser achacable a un aspecto experimental, una error en la estimación de la energía nominal del acelerador utilizada, como se describe en la propia publicación de la medida. La comparación con ambas medidas confirman la fiabilidad del código utilizado y las simulaciones. Adicionalmente a las validaciones descritas utilizando medidas experimentales disponibles del espectro QMNS, sería también deseable disponer de una medida directa experimental del espectro de neutrones MNS generado con este nuevo método. Para llevar a cabo dicha medida, resulta imprescindible el empleo de la técnica de tiempo de vuelo (TOF), la cual requiere de un acelerador con modalidad de haz pulsado. El CNA Sevilla se encuentra (en el período de la realización de esta tesis) en proceso de incorporación de los elementos necesarios para dotar al acelerador Tandem existente de los elementos necesarios para producir un haz pulsado, posibilitando de este modo la realización de este tipo de medidas de tiempo de vuelo, y la medida directa de un espectro de neutrones MNS. A la espera de esta próxima posibilidad de realización de medidas de espectros en las nuevas facilidades de CNA, una primera toma de datos fue realizada en las instalaciones de tiempo de vuelo de IRMM [45]. Si bien el espectro completo no pudo ser derivado de los datos experimentales recogidos, debido a ciertos problemas técnicos experimentales, algunos datos sí han podido ser analizados, estando nuevamente sus resultados parciales en acuerdo con los resultados de las simulaciones citadas. En la segunda publicación anexada en esta memoria se muestran algunos de esos resultados parciales.



Figura 2.15: Espectros simulados con el código LZ para el flujo total comparados con datos experimentales disponibles de las medidas de RK y Lederer (figura tomada de [49]).



Figura 2.16: Espectro en energía para distintos ángulos generado con el código LZ (negro) comparados con datos experimentales disponibles de la medida de C. Lederer (figura tomada de [49]).

Capítulo 2. Descripción de la técnica experimental de activación.

Capítulo 3

Montaje y realización de los experimentos de activación en el CNA.

Para la consecución de los objetivos buscado en esta tesis se llevaron a cabo dos experimentos de activación sobre el ¹⁹⁷Au en el CNA de Sevilla. El primero de ellos mediante la técnica tradicional de activación con neutrones de espectro cuasimaxwelliano (QMNS), y el segundo incluyendo la mejora para la producción de espectros maxwellianos descrita (MNS). En este capítulo se detallará el desarrollo de dichos experimentos, incluyendo el estudio y cálculos previos, montaje, realización y toma de datos.

3.1. Estudio previo.

3.1.1. Viabilidad del experimento y parámetros experimentales.

Todo el trabajo previo al experimento es clave para que llegado el día de su realización éste resulte un éxito, minimizando los posibles imprevistos o contratiempos que puedan surgir, así como que las posibles variables o parámetros que hayamos seleccionado resulten ser los más convenientes para la consecución de nuestros objetivos. Tener el mayor control posible sobre todos los elementos que puedan afectar a nuestra medida, reducir aquellas incertidumbres o fuentes de error en lo que esté a nuestro alcance, es parte de un trabajo cuidadoso que debe hacerse antes, durante y después del experimento. Asimismo, la preparación del experimento, incluso cuando seguimos un método bien definido, puede ser también un proceso creativo, en el que se detecten e incorporen puntos de mejora.

El método de activación se basa en la medida de la radioactividad de la muestra tras la irradiación con neutrones. Para que el experimento sea viable, la irradiación debe producir núcleos radioactivos (en nuestro caso de ¹⁹⁸Au y de ⁷Be) en una cantidad tal que permita registrar posteriormente un número suficiente de cuentas en el detector gamma, a partir del cual estimar una sección eficaz experimental. Hay varios factores y variables que influirán o determinarán la viabilidad o no de nuestro experimento, y la calidad (o incertidumbre) de nuestra medida. De ellos, algunos serán condicionantes sobre los que tendremos poco o ningún control (por ejemplo la sección eficaz de la muestra a medir), y otros serán variables experimentales que podremos ajustar, dentro de unos determinados márgenes (por ejemplo tiempos de irradiación y medida, configuración del detector, configuración del blanco y muestras). Normalmente los ajustes óptimos simultáneos de varias variables experimentales no serán siempre posibles, por lo que frecuentemente será necesario llegar a compromisos entre ellos, buscando siempre la minimización de la incertidumbre final en la medida.

Parámetros fundamentales que debemos contemplar para evaluar la viabilidad de nuestra medida, y en su caso ajustarlos cuando sea posible, son:

- Sección eficaz estimada de la muestra a medir, para la energía o kT seleccionados. Secciones eficaces relativamente bajas producen un menor número de núcleos activados para un mismo flujo respecto a otros isótopos de mayor sección eficaz, pudiendo requerir compensación con aumento de alguno o varios de otros parámetros como el flujo de neutrones (si es posible), tiempos de irradiación y medida, cantidad de muestra o eficiencia en la detección gamma. El orden de magnitud habitual en el que se encuentran las secciones eficaces estelares es el rango de las decenas a centenas de mb (para kT=30 keV) [16] [17]. Para el caso del ¹⁹⁷Au, la MACS a 30 keV es del orden de los 600 mb.
- 2. Esquema de desintegración de los núcleos activados. Para el isótopo radioactivo producido tras la captura de neutrones, es importante que se pueda realizar una medida de su radioactividad en un tiempo experimental razonable. Normalmente el experimento es viable si su vida media es de un orden entre minutos a días, no obstante dependiendo también de la cantidad de isótopo producido. Para algunos isótopos de baja sección eficaz y tiempos del orden de segundos puede ser también posible la medida si se realizan activaciones cíclicas o repetidas [54]. En el caso del ¹⁹⁸Au, la semivida es de 2,7 días, y en el caso del ⁷Be es de 53,3 días [55], tiempos que resultan adecuados. Asimismo, debe ser posible la medida experimental de su radiactividad. En el caso del ¹⁹⁸Au y ⁷Be, tras desintegración beta y captura electrónica (Figuras 3.1 y 2.7), se emiten gammas de 412 y 478 keV con intensidades 0,96 y 0,10 respectivamente, las cuales resultan adecuadas para la medida con un detector gamma HPGe como el disponible en CNA.
- 3. Cantidad de muestra disponible (espesor másico). Para un determinado flujo de neutrones, la cantidad de núcleos radioactivos producidos es proporcional a la cantidad de muestra irradiada (a su espesor másico). Dependiendo de las



Figura 3.1: Esquema de desintegración del ¹⁹⁸Au a ¹⁹⁸Hg [47].

características del isótopo a estudiar, como su estado natural y su abundancia isotópica, puede ser costoso obtener cantidades suficientes del mismo. Especialmente complejos resultan los casos de experimentos con isótopos inestables o no presentes en la naturaleza, y que deben ser producidos previamente al experimento. Si la cantidad de isótopo disponible es muy pequeña, este factor deberá compensarse, si es posible, por ejemplo con mayores flujos de neutrones. En este aspecto la técnica de activación presenta ventaja sobre la de tiempo de vuelo, al ser normalmente mayores los flujos de neutrones disponibles. Por otro lado, también hay que tener en cuenta que mayores cantidades (espesores) de muestra también conlleva el aumento de otros efectos experimentales a tener en cuenta, como dispersión de neutrones y absorción y dispersión gamma en el interior de la misma. Para los experimentos de activación descritos, desde el punto de vista de disponibilidad no es problema encontrar muestras de oro de espesores considerables. Sin embargo, como se ha indicado, de cara a minimizar efectos de dispersión y absorción de neutrones y gammas en la muestra son recomendables bajos espesores. Al contar nuestro experimento de activación con flujos de neutrones suficientemente elevados, y poder situar la muestra de oro muy cerca de la fuente de neutrones, es posible trabajar con estos bajos espesores. En este caso las láminas utilizadas fueron de un espesor de 0,1 mm. Podemos realizar un cálculo estimado del factor de absorción gamma para este espesor mediante la fórmula 3.1 [56]. El cálculo del factor se detalla en el anexo, resultando un valor de transmisión de 0,98 para una lámina de 0,1 mm de oro.

$$K_{\gamma} = e^{-\mu \cdot \mathbf{h}} \tag{3.1}$$

4. Blanco de ⁷Li. Para el blanco de ⁷Li el espesor debe ser suficiente para que se cumpla la hipótesis de blanco grueso, es decir que este espesor sea suficiente para rebajar la energía de todos los protones incidentes por debajo del valor umbral de reacción (1881 keV), de manera que se generen los tipos de espectros deseados. Dicho requerimiento se cumple utilizando láminas de espesores del orden de las pocas decenas de micras [42]. En los experimentos realizados, se utilizaron láminas de 120 μ m de Li. El valor resultante del factor de absorción (transmisión) gamma, el cual también incluye la transmisión a través del soporte de 0,5 mm de Cu, sería de 0,92. Por otra parte, el Li puede presentarse en formas como Li metálico o LiF, con propiedades de producción de neutrones ligeramente diferentes. Formas como el Li metálico, que poseen mayores tasas de producción, requieren especial cuidado en su manejo al ser altamente reactivo a la oxidación.

- 5. Corriente de haz y flujo de neutrones disponible en el acelerador. La producción de neutrones depende de la cantidad de corriente disponible de haz y de la eficiencia de la reacción (p,n) elegida. Es deseable en principio valores altos de corriente para maximizar la producción de neutrones, si bien hay que tener en cuenta efectos como el calentamiento del blanco. En este caso en el acelerador del CNA hemos contado con corrientes de entre 1 y 2 μ A. Partiendo de este condicionante, y siendo la eficiencia en la reacción ⁷Li(p,n) de 25 n/pC para la energía de protón 1912 keV, dispusimos para el experimento de flujos del orden de magnitud de los 10⁷ n/s.
- 6. Eficiencia de la detección.Del conjunto de emisiones gamma de los núcleos radioactivos que se desintegran durante el tiempo de medida, sólo un cierto número serán registradas por nuestro detector. La capacidad y eficiencia del detector gamma y sistema de adquisición de datos juega un papel fundamental en la viabilidad y calidad de la medida. En el elemento fundamental, el detector, se distingue una componente de eficiencia intrínseca, que dependerá fundamentalmente de sus características, y una componente de eficiencia geométrica, la cual varía con la distancia y posición en la que esté colocado el detector respecto a la fuente gamma. La eficiencia geométrica (y la total por tanto) aumenta al acercar el detector a la fuente, pero a la hora de evaluar la distancia más conveniente hay que tener en cuenta otros efectos: además de que la eficiencia sea alta, es necesario para el análisis de datos conocer con la mayor exactitud posible cuál es su valor y comportamiento con la energía. Al estar más próximo el detector a la fuente, efectos como el de fuente extensa (la fuente gamma no es puntual, sino que es una muestra de un cierto tamaño) y la incertidumbre en la geometría exacta efectiva del detector (p. ej. zonas inactivas del Ge) se hacen más pronunciados, y pueden aumentar el error en la estimación del valor de la eficiencia del detector. Distancias típicas experimentales entre fuente y detector teniendo en cuenta este compromiso suelen ser del orden de decenas de milímetros [28]. En los dos experimentos realizados en el CNA, el detector se colocó a distancias de 28 y 30 mm. Para esta distancia pueden esperarse valores para la eficiencia entorno a órdenes de magnitud de 0,001 a 0,002 [57][58].
- 7. Características de la cámara de reacción o soporte. La elección del soporte para el blanco y la muestra debe tener en cuenta la posible necesidad de refrigeración para el blanco, en nuestro caso una lámina de ⁷Li con un punto

de fusión de 181^oC, así como minimizar los efectos de interferencia como la dispersión y absorción de partículas y radiación en el mismo. Deberá estar hecho asimismo de un material no reactivo a los protones de las energías del experimento. A este fin, en las activaciones realizadas se optó por un soporte de Cu, refrigerado por conductos interiores con circulación de agua, y con un espesor de Cu de 0,5 mm entre Li y Au.

8. Tiempos de irradiación y medida. Estos parámetros son en principio ajustables, si bien hay que tener en cuenta las siguientes consideraciones: como consecuencia de las desintegraciones que comienzan a producirse ya desde el inicio de la irradiación, al prolongar la irradiación el número de núcleos radioactivos presentes en la muestra tiende a un valor de saturación, el cual prácticamente se alcanza transcurrido un tiempo de irradiación de entre 4 y 6 veces el período de semidesintegración, y más allá del cuál no resulta útil continuarla [2] (Figura 3.2). Además de ello, otros condicionantes para el tiempo máximo de irradiación pueden ser la estabilidad del haz, o el propio tiempo de haz disponible en el acelerador. Respecto al tiempo de medida, durante el que estaremos almacenando datos de las cuentas registradas en el detector gamma, este vendrá limitado por la semivida de los núcleos radioactivos. Es sin embargo aconsejable, para evitar incertidumbres asociadas a las desintegraciones, no prolongar el tiempo de medida más allá de la semivida del isótopo radioactivo.



Figura 3.2: Esquema de la evolución en el tiempo del número de núcleos activados en la muestra durante las fases de irradiación y medida del experimento (tomado de [2]).

Teniendo en cuenta los parámetros y valores citados, podemos hacer finalmente

una estimación de la viabilidad y calidad de la medida del experimento realizando cálculos del número de núcleos activados y del número de cuentas de pico gammas que se registrarían para las distintas posibilidades de parámetros ajustables. En la Tabla 3.1 se reflejan los resultados de algunos de estos cálculos previos, para una corriente de 1,5 μ A, producción de 3,75 ×10⁷ n/s, eficiencia $\varepsilon = 0,0015$ y distintos tiempos de activación y medida. Como podemos observar, para los valores anteriormente expuestos de sección eficaz, espesor de muestra, corriente de haz, eficiencia del detector y correcciones, con tiempos de irradiación de alrededor de entre 3 y 6 horas y tiempos de medida de entre 6 y 12 horas podrían previsiblemente obtenerse un número de cuentas gamma de pico en el detector del orden de las decenas de miles para el ¹⁹⁸Au y de las centenas de miles para el ⁷Be, con los que conseguir una incertidumbre en su estimación (asociada a la estadística del número de cuentas) menor del 1%.

Tabla 3.1: Estimación del número de cuentas previstas en la activación de ¹⁹⁷Au mediante la reacción ⁷Li(p,n) para corriente de 1,5 μ A, producción de 3,75 ×10⁷ n/s, eficiencia $\varepsilon = 0,0015$ y distintos tiempos de activación y medida.

T_a (h)	T_m (h)	A_{Be}	A_{Au}	$C_{\gamma Be}$	$C_{\gamma A u}$
3	6	$4,05 imes10^{11}$	$1,71 \times 10^8$	190.709	14.943
6	6	$8,09 imes 10^{11}$	$3,37 \times 10^8$	381.108	29.414
3	12	$4,05\times 10^{11}$	$1,71 \times 10^8$	380.799	28.956
6	12	$8,09 \times 10^{11}$	$3,37 \times 10^8$	760.980	56.996

3.2. Montaje experimental.

3.2.1. Calibración del acelerador.

Los experimentos de activación se llevaron a cabo utilizando la línea de haz FNB (Física Nuclear Básica), una de las líneas de haz disponibles en el acelerador electrostático TANDEM de 3 MV del CNA (Centro Nacional de Aceleradores), en Sevilla [46][59]. La Figura 3.3 muestra fotografías del acelerador y del centro.



Figura 3.3: Imágenes del CNA (Centro Nacional de Aceleradores, Sevilla): exterior (sup. izq.) y acelerador Tándem (sup. der.).

En días previos a la realización del experimento, es conveniente llevar a cabo una calibración en energía del acelerador, ya que el espectro de los neutrones producidos puede variar si existen desviaciones en la energía del haz respecto a los 1912 keV con los que debemos irradiar el Li. En un acelerador TANDEM electrostático, la energía del haz está controlada por el voltaje suministrado, y viene dada en general por:

$$E = q \cdot V_{ext} + 2 \cdot q \cdot V_{real}$$

y para el caso de protones viene dada entonces por:

$$E = V_{ext} + 2 \cdot V_{real}$$

donde V_{ext} es el voltaje de extracción de la fuente. El acelerador tendrá una calibración que hará corresponder el voltaje real suministrado con nuestro voltaje nominal de control ($V_{real} = V_{nominal}$ en un sistema ideal):

$$V_{real} = a + b \cdot V_{nominal}$$

Para conocer esa correspondencia entre tensión nominal y real, un equipo del CNA formado por personal técnico e investigador, realiza medidas de calibración de manera regular. En concreto, se realizó una calibración pocos días antes de nuestro experimento. En dicha calibración se utilizaron reacciones con resonancias bien conocidas, como son ${}^{27}\text{Al}(p,\gamma){}^{28}\text{Si}$ (991,86 keV) y ${}^{24}\text{Mg}(p,p'\gamma){}^{24}\text{Mg}$ (2409 keV). La calibración obtenida del acelerador fue:

$$E = V_{ext} + 1,006 \cdot 2 \cdot V_{nominal}$$

Tras esta calibración realizada, el error esperado en el valor configurado para la energía de protones en el rango de 1 a 4 MeV es menor de 1 keV. Para otras aplicaciones del acelerador no es necesaria tal precisión, pero sí lo es para experimentos de activación con neutrones de espectro QMNS, donde desviaciones de 1 o 2 keV pueden producir cambios significativos en el espectro de los neutrones producidos. Por otra parte, como se comentará en la discusión y se describe y justifica en [49], la mejora del método propuesto para generación de espectros maxwellianos MNS necesita solo de precisiones en torno a 10 keV, por lo que es menos sensible a posibles errores o cambios en el terminal del acelerador

3.2.2. Preparación del blanco de ⁷Li, muestras de ¹⁹⁷Au y soporte.

La preparación del blanco de ⁷Li y la muestra de ¹⁹⁷Au, y del soporte o cámara de reacción en el que se colocarán ambos, resulta crucial para el experimento. Para la elección del soporte, como se ha citado en el apartado anterior, espesores pequeños en las regiones expuestas a neutrones y gammas reducirán los efectos de la dispersión de neutrones y de la dispersión y absorción de gammas, y por otra parte el soporte debe contar con unas características que permitan disipar el calor producido por el haz. Teniendo en cuenta la conjugación de estos factores y las posibilidades técnicas disponibles, se utilizó el soporte de Cu que se muestra en las fotografías de la Figura 3.4 y el esquema de la Figura 3.5. El soporte cuenta con un espacio anterior para alojar el blanco de litio y desde el que son producidos los neutrones. El soporte implica que existe un espesor de 0,5 mm de cobre que los neutrones deben atravesar, entre el blanco de Li y la muestra de oro colocada en la cara posterior del soporte. La refrigeración se lleva a cabo por medio de agua desmineralizada, en circulación a través de un conducto interior que rodea el espacio en que se aloja el blanco de litio. Dicho conducto queda fuera de la trayectoria de los neutrones entre litio y muestra, para evitar efectos de moderación de los neutrones por el agua.

Las muestras de ¹⁹⁷Au para los experimentos fueron suministradas por el fabricante Goodfellow Cambridge Ltd. [60], en forma de láminas cuadradas de dimensiones 25 x 25 mm y 0,1 mm de espesor nominal. A partir de las mismas se obtuvieron discos circulares mediante una herramienta de corte de precisión disponible en CNA. Como se describirá más adelante, es necesario el conocimiento del espesor másico de la muestra con un bajo margen de error, por lo que los espesores (másicos) de



Figura 3.4: Fotografías del soporte de Cu para el blanco de Li y muestra de Au



Figura 3.5: Esquema del diseño del blanco, sección lateral (no a escala), incluyendo láminas de Li, Au y Al.



Figura 3.6: Fotografía de la medida del peso de una de las láminas de Au utilizadas en las activaciones, mediante balanza de precisión.



Figura 3.7: Trabajos de corte y colocación de la lámina de Li dentro del soporte de Cu, realizados dentro de la cámara en atmósfera controlada de gas inerte (Ar).

las láminas se obtuvieron y comprobaron a partir de medidas precisas de las dimensiones y pesos de las mismas llevadas a cabo en el laboratorio del CNA, con un micrómetro y una balanza de precisión. La fotografía de la Figura 3.6 ilustra una de las medidas realizadas con la balanza. Los blancos de Li se obtuvieron a partir de una lámina de litio metálico de 120 µm de espesor, de la que se recortaron discos de 10 mm de diámetro. Para el corte de la lámina de Li, y su posterior colocación en el soporte de Cu, hay que tener en cuenta que el Li metálico es altamente reactivo. Para prevenir su oxidación al contacto con el aire, se trabajó en atmósfera controlada de gas inerte, en este caso Ar, en una cámara adecuada para ello, la cual se muestra en la fotografía de la Figura 3.7. La lámina de Li se sujetó cuidadosamente en el interior del soporte de Cu, y para evitar su succión debido al vacío creado en el interior del tubo del acelerador se empleó un cilindro hueco de aluminio de 10 mm de diámetro, construido a tal fin, y adherido con grafito.

El propio diseño del soporte de Cu, con una lámina plana en su cara anterior, posibilita que pueda ser colocado directamente al final del tubo del acelerador, siendo sujetado por la propia succión del vacío del tubo del acelerador, y evitando así la necesidad de utilizar una cámara de reacción adicional. Este método, además contar con la ventaja de su simplicidad, elimina la posibilidad de efectos de dispersión en la propia cámara de reacción. Las fotografías de la Figura 3.8 muestran para ambos experimentos de activación el blanco ya dispuesto al final de la línea de haz, con la lámina de oro fijada, así como las conexiones para la refrigeración por agua. Se observa asimismo en el soporte de cobre la conexión de un cable eléctrico, que prolongado hasta la sala de control del acelerador permite monitorizar la corriente recibida del haz.



Figura 3.8: Blanco de ⁷Li y muestra de ¹⁹⁷Au dispuestos para el experimento de activación QMNS (izq.) y activación MNS (der.)

3.2.3. Detector gamma HPGe y sistema de adquisición de datos.

El detector empleado en esta medida fue un detector gamma, tipo semiconductor de germanio de alta pureza (HPGe), del fabricante ORTEC, serie GMX modelo 35195-S [58]. La Figura 3.9 muestra un esquema con el detector gamma HPGe colocado frente a la muestra radioactiva, así como el sistema de adquisición de datos. En la figura se señalan las siguientes partes fundamentales del detector y sistema:

 Cristal de germanio, en forma de cilindro redondeado o bala de 57 mm de diámetro nominal, con conexión coaxial, situado en el interior de una cápsula de aluminio (fig 3.10). La cápsula de aluminio posee un frontal abierto para la entrada de la radiación gamma, protegido por una fina lámina de berilio.



Figura 3.9: Esquema del montaje del detector HPGe y sistema de adquisición de datos.

- Preamplificador integrado de bajo ruido, solidario con la cápsula de aluminio del cristal de germanio.
- Rack conteniendo el sistema de alimentación eléctrica y de adquisición de datos (fig. 3.11): para su funcionamiento, el detector necesita de un suministro de tensión de alto voltaje. La unión pn del cristal semiconductor de Ge necesita ser polarizada para crear una zona de vacío de portadores, lo más amplia posible, en la que la radiación gamma es absorbida y generados los pares electrón-hueco. Para detectores de Ge son habituales tensiones de 4000 a 4500V [61]. En nuestro caso el equipo de alimentación eléctrica de alto voltaje utilizado fue el modelo HVPS 9645 de Canberra. La tensión utilizada fue de 4299 V. Los pulsos de corriente generados por los portadores producidos en el Ge en cada absorción gamma son recogidos por el preamplificador de bajo ruido incorporado en la cápsula. La salida de este preamplificador se dirige a una segunda etapa de amplificación situada en este rack. Tras esta amplificación los pulsos son convertidos y tratados digitalmente, mediante un ADC/DSP/analizador multicanal (conversor analógico-digital y procesador de señal digital). En nuestro experimento se utilizó el DSP 9660 de Canberra.
- PC con software de control del sistema y almacenamiento de datos: el detector y sistema de alimentación y adquisición es configurado y controlado desde un paquete software específico instalado en PC. En el PC quedan también almacenados en ficheros los datos de salida generados por el DSP, para ser



Figura 3.10: Esquema del cristal semiconductor de germanio, de dopado tipo n, con forma de bala y hueco coaxial interior [58].



Figura 3.11: Rack con la electrónica para adquisición de datos y control del detector HPGe (izq.), y detalle de las tarjetas electrónicas HVPS 9645 y DSP 9660 (der.)

analizados posteriormente (espectroscopia gamma). El paquete software de control y análisis utilizado fue el GENIE2000 de Camberra [62].

 Tanque de nitrógeno líquido (fig.3.12): los detectores de Ge, debido a la pequeña diferencia de energía entre bandas de valencia y conducción en este material, a temperatura ambiente generarían altos niveles de ruido térmico y necesitan ser enfriados, en este caso mediante el nitrógeno líquido de un recipiente al que se encuentra conectado el detector. El frío del nitrógeno se transmite al detector por medio de una sonda introducida en el tanque. Previamente al experimento es necesaria la carga y comprobación del nivel de nitrógeno en el recipiente.



Figura 3.12: Fotografía del detector gamma HPGe Ortec GMX 35195-S con tanque de nitrógeno líquido para refrigeración utilizado en ambas activaciones.

Una vez finalizada la irradiación, el detector gamma se colocará a una distancia de 28 mm de la muestra activada para la el experimento con QMSN y de 30 mm para el experimento MNS. Estas distancias permitieron maximizar la eficiencia geométrica minimizando el tiempo muerto del detector. Durante la irradiación es importante que el detector se halle retirado y protegido, ya que un flujo elevado de neutrones podría dañar el cristal de Ge [58]. Es conveniente realizar pruebas y marcas de colocación del detector frente a la muestra con antelación para una vez finalizada la irradiación proceder con la medida de radioactividad lo antes posible.

3.2.4. Vacío del acelerador y refrigeración del blanco.

Una vez colocados el soporte con blanco y muestra en la línea de haz, antes de la irradiación es necesario que en el acelerador se alcancen valores suficientes de vacío (presiones del orden de 10^{-6} mbar). Previamente deben realizarse pruebas para asegurarse. El vacío se obtiene mediante dos bombas que se conectan secuencialmente, primaria y secundaria. Se muestran en la Figura 3.13.

Es necesario asimismo realizar la conexión y pruebas del circuito de agua necesario para la refrigeración a través de circulación interior en el soporte de cobre, comprobando la adecuada circulación y carencia de fugas (Figura 3.14)



Figura 3.13: Bombas de vacío e indicadores de presión en las activaciones.



Figura 3.14: Control del circuito de refrigeración de agua para el soporte de reacción.

3.2.5. Dosimetría de neutrones.

Para monitorizar que la irradiación esté produciendo neutrones, así como para registrar cómo de constante es esta producción durante la irradiación, es decir, cuál es su perfil temporal (ya que por ejemplo posibles inestabilidades del haz pueden repercutir en variaciones en esta producción), se colocó un dosímetro de neutrones dentro de la línea o flujo de producción de los mismos. El dosímetro, que se muestra en la Figura 3.15, fue colocado a unos 5 metros de la fuente de neutrones. La lectura del dosímetro durante la irradiación fue registrada y guardada (a intervalos de un minuto) para posterior análisis y en su caso aplicación de las oportunas correcciones a la medida, teniendo en cuenta esta variación en el flujo de neutrones sobre la muestra.



Figura 3.15: Dosímetro de neutrones situado en la línea del flujo de neutrones (flechas azules). El dosímetro se encuentra conectado y monitorizado desde la sala de control, donde se almacena su registro.

3.2.6. Configuración de la energía y perfil de haz del acelerador.

Una vez calibrado el acelerador, el ajuste del voltaje del terminal del acelerador (Figura 3.16) a los valores calculados proporciona un haz de la energía de protón necesaria para cada una de las activaciones.

Por otra parte, el ancho de haz debe distribuirse y ajustarse para cubrir la superficie de la lámina de litio. Un haz muy concentrado en una zona reducida de la lámina podría elevar excesivamente su temperatura, y además una distribución cuasi-uniforme del haz es necesaria para la adecuada estimación de correcciones ex-



Figura 3.16: Instrumentación en sala de control del acelerador. Izq.: panel de ajuste del voltaje del acelerador. Der.: monitorización del perfil de haz.



Figura 3.17: Izq. *View-port* situada al final de la línea de haz. Der. Monitorización por CCTV de la *view-port*.



Figura 3.18: Imagen del haz impactando en la view-port, transmitida por CCTV a un monitor situado en la sala de control.

perimentales, como se detallará más adelante. El haz, en principio de perfil gaussiano, puede enfocarse y controlarse dentro en un cierto margen en las dos coordenadas espaciales X e Y (siendo Z la coordenada correspondiente a la dirección del haz), desde la consola de control. El osciloscopio de la Figura 3.16 (derecha) asociado a estos controles nos permite una estimación de este perfil en un punto de control de la línea. Adicionalmente, en pruebas previas a la irradiación, podemos visualizar cómo será esta sección transversal del haz al final de la línea antes del impacto en el blanco, si en lugar del blanco y su soporte colocamos una *view-port* (Figura 3.17). La *view-port* consiste en una lámina gruesa de vidrio (aprox. 1 cm de espesor). Al impactar en ella el haz configurado con las condiciones del experimento, podemos visualizarlo con la ayuda de una cámara de televisión situada detrás de la misma, y cuya imagen se transmite a un monitor en la sala de control. Con ayuda de esta imagen reajustamos y guardamos la configuración del haz para asegurarnos que efectivamente se cubra la totalidad de la lámina de Li de 10 mm de diámetro.

3.2.7. Irradiación de la muestra.

Una vez configurado y probado todo el montaje experimental, se puede proceder a encender haz ya para la irradiación de la muestra, con las configuraciones probadas de acelerador, y durante el tiempo previsto en los cálculos previos. Una vez esta se inicia, desde la sala de control del acelerador (Figura 3.19) es necesario controlar que se está desarrollando adecuadamente. Para ello se monitorizan y controlan los registros de carga acumulada y dosimetría de neutrones (Figura 3.20).



Figura 3.19: Sala de control del acelerador



Figura 3.20: Instrumentación en sala de control. Izq.: carga acumulada. Der.: monitor de dosimetría de neutrones registrada en la sala durante la irradiación.

3.2.8. Medida de la actividad gamma.

Una vez finalizado el tiempo de irradiación, se procede con la medida de la radioactividad de las muestras activadas. La medida debe comenzar tan pronto como sea posible, para aprovechar la radioactividad del mayor número posible de núcleos

antes de su desintegración. A tal fin, deberemos tener preparado previamente todo el equipo de medida. Una vez detenido el haz, tras la comprobación de los niveles de radiación en la sala antes de entrar en la misma, dentro de la sala se procede a cerrar la línea de haz, cortar la refrigeración por agua, y colocar el detector HPGe en posición estudiada previamente frente a la muestra, 28 mm para la activación I y 30 mm para la activación II (Figura 3.21 izq.). Se procede entonces a encender secuencialmente las distintas etapas de alimentación de rack y detector. Una vez polarizado el Ge, desde el software de control del PC se inicia el detector y se comienza la captura. Si la irradiación ha sido exitosa, se observa en tiempo real cómo se van acumulando cuentas, y debe ser posible comenzar a identificar los picos de las gammas procedentes de las desintegraciones de Be y Au (Figura 3.21 der.), además de otros posibles picos de referencia, como el procedente de la desintegración del ⁴⁰K. A partir de ese momento es importante vigilar la toma de datos, salvando ficheros periódicamente, hasta finalizar las horas previstas para el tiempo de la medida.

En la Tabla 3.2 se resumen los tiempos de los experimentos realizados.



Figura 3.21: Izq. Colocación del detector HP Ge frente a la muestra radioactiva. Der. PC para el control del detector y monitorización y archivo de las detecciones

Tabla 3.2: Duración de las fases de los experimentos.

	Activación QMNS	Activación MNS
t_a tiempo de irradiación	$360 \min$	210 min
t_w tiempo de espera	$15,5 \min$	$15 \min$
t_m tiempo de medida	$390 \min$	$783 \min$

Capítulo 3. Montaje y realización de los experimentos.
Capítulo 4

Análisis de datos y simulaciones Monte Carlo del experimento.

El análisis de los datos recogidos durante el experimento, junto con la ayuda de un amplio conjunto de simulaciones Monte Carlo llevadas a cabo en la presente tesis, nos permitirán obtener las correcciones y factores necesarios para el cálculo de la sección eficaz estelar. La posibilidad de utilizar herramientas software con códigos basados en el método de Monte Carlo, como MCNP [51], Fluka [63] o Geant4 [64][65] ha supuesto un avance crucial en el análisis de problemas complejos en la física experimental de partículas. Para este trabajo se ha utilizado el código MCNPX 2.5.0 [66][67]. Dicho código simula el transporte y comportamiento en la materia de neutrones y gammas, teniendo incorporada una extensa biblioteca de secciones eficaces procedentes de ENDF. En el Anexo al final de esta memoria se hace una breve introducción al método de Monte Carlo y a las características del código MCNPX empleado, y se describen las funciones y ficheros escritos para las simulaciones realizadas. Estas simulaciones han incluido toda la configuración experimental, incluyendo muestras, soporte, detector gamma HPGe, emisión, transporte y captura de neutrones, y emisión, transporte y detección de la radiación gamma. El objeto primero de estas simulaciones ha sido estimar los valores de las correcciones experimentales necesarias para la obtención de la sección eficaz estelar. Adicionalmente, de las distintas simulaciones realizadas se obtiene valiosa información sobre aspectos de la física del experimento, tales como fluencias y dispersión de neutrones en los distintos materiales, espectros de neutrones en los distintos puntos, distribución de las activaciones en las muestras, eficiencia y respuesta del detector gamma HPGe. dispersión y absorción de las gammas en los distintos materiales, y la influencia de los diversos elementos experimentales sobre la medida.

Es necesario hacer notar sobre el análisis de datos y correcciones que se presentan en este capítulo, que como se verá se ha intentado un trabajo de análisis en detalle fino, tratando de mejorar o realizar aportaciones sobre un conjunto de correcciones y medidas existentes de la sección eficaz del oro ya de por sí de elevada precisión y exactitud, como no puede ser de otra manera al tratarse de un estándar o referencia.

4.1. Espesor másico de la muestra.

Para una lámina (fina) de Au sobre la que incida perpendicularmente un haz de neutrones, (Figura 4.1), el espesor másico o mass thickness (N_{Au}) de dicha lámina se define como el producto de su espesor multiplicado por su densidad [1]. Esta cantidad nos indica el número de átomos de Au por unidad de superficie de la lámina que quedan dentro del haz de neutrones, es decir, cuántos átomos (y núcleos) de oro por unidad de superficie (no superpuestos, al considerar muestra fina) están disponibles para reaccionar con ese flujo de neutrones. Normalmente se expresa en átomos/barn.

$$espesor\ m\acute{a}sico\left[\frac{at}{b}\right] = espesor\ [mm] \cdot densidad\left[\frac{at}{m^3}\right] \cdot 10^{-31}, \tag{4.1}$$



Figura 4.1: Representación de un flujo de neutrones incidiendo perpendicularmente sobre una lámina de Au.

Para las láminas de Au utilizadas en nuestros experimentos el fabricante indica un espesor de 0,1 mm, con una tolerancia del 10%. Podemos reducir esta incertidumbre y obtener de manera más exacta el espesor real de la lámina a partir de su superficie y masa (*espesor* = $\frac{masa}{superficie \cdot densidad}$) tal como se ha descrito en el capítulo anterior, pesando la muestra con una balanza de precisión, y midiendo el diámetro de las láminas circulares.

Como hemos descrito en el capítulo 1, en el experimento con QMNS los neutrones se emiten con una apertura máxima de 70 grados en la dirección del haz, lo cual para la geometría de nuestro experimento implica que la lámina no es completamente irradiada sino que las activaciones en la lámina de Au se concentran todas dentro de una región central de un radio de 8 mm (salvo un mínimo no significativo debido a neutrones dispersados). Con esta premisa, de la lámina de la activación QMNS se recortó, midió y pesó ese disco central de 8 mm de radio, tras el experimento. En la Activación MNS en cambio la totalidad de la lámina es irradiada por neutrones, por lo que se midió y pesó la lámina completa.

Los resultados de las medidas y el cálculo del espesor másico se muestran en la Tabla 4.1, teniendo en cuenta que en nuestro caso

$$densidadAu = 0,0193 \left[\frac{g}{mm^3}\right] = 5,90 \cdot 10^{28} \left[\frac{at}{m^3}\right].$$

Teniendo en cuenta las incertidumbres debidas a los aparatos y procesos de medida de peso (0,1-0,3%) y diámetro de las láminas (0,3%), obtenemos medidas de espesor másico con incertidumbres totales de entre 1,3 y 1,5 %.

Tabla 4.1: Características de las láminas utilizadas en la activaciones.

	Peso(g)	Diámetro	Espesor	Espesor	Incer.
		(mm)	(mm)	másico	(%)
				(at/b)	
QMNS	0,382	16,2	0,096	$5,67 \cdot 10^{-4}$	1,5
MNS	0,974	24,4	$0,\!108$	$6,37 \cdot 10^{-4}$	$1,\!3$

4.2. Espectrometría gamma con el detector HP-Ge.

Tras finalizar la medida de actividad gamma con el detector, los datos quedaron recogidos en un fichero, el cual contiene el número de cuentas registradas en cada canal. Representando los datos de este fichero en un histograma, observaremos un cierto número de picos, destacando sobre un fondo o continuo (Figura 4.2). Los picos corresponderán en principio a gammas de determinadas energías. Su profusión es debida a que, además de gammas procedentes de la desintegración del Au y Be, el detector durante la medida recoge un fondo procedente de radioactividad natural del entorno y de los propios componentes del detector, así como inducida por rayos cósmicos. Los núcleos de ¹⁹⁸Au producidos durante la activación son inestables con una semivida de 2,7 días, desintegrándose por transición β^- a ¹⁹⁸Hg, a su estado fundamental o a estados excitados. El ¹⁹⁸Hg se des-excita emitiendo una gamma de 411,8 keV con intensidad I = 95,5 %. Por su parte, los núcleos de ⁷Be se desintegran por captura electrónica a ⁷Li, a su estado fundamental o a un estado excitado. El ⁷Li se des-excitará mediante la emisión de una gamma de 477,6 keV, con intensidad I=10,45 % [47].

Para identificar las energías de los picos necesitamos conocer la correspondencia entre canales y energía. En el caso de un detector de Ge, como es el nuestro, esta correspondencia es lineal en buena aproximación [57]. Podemos obtener una calibración canales-energía utilizando fuentes de referencia que emitan gammas de energías conocidas, e incluso identificando líneas prominentes del fondo de radiación natural habitualmente presentes, como el 40 K (1460,8 keV) o el 208 Tl (2614,5 keV). Las rectas de calibración canales-energía que obtenemos se muestran en la Figura 4.4.

Con esa correspondencia, representamos en la Figura 4.5 los espectros ya en función de la energía, ampliando la región entre los 350 y 500 keV, donde identificamos claramente los picos de las gammas de 412 y 478 keV procedentes de las desintegraciones del 198 Au y ⁷Be.



Figura 4.2: Histograma de cuentas por canal registradas por el detector gamma HPGe en la Activación QMNS.



Figura 4.3: Histograma de cuentas por canal registradas por el detector gamma HPGe en la Activación MNS.



Figura 4.4: Correspondencia canales-energía del detector gamma en las Activaciones QMNS y MNS.



Figura 4.5: Picos gammas registrados en las activaciones I (izq.) y II (der.)

Observamos claramente en las figuras anteriores que lo picos gamma poseen una cierta anchura (FWHM ≈ 3 keV), así como la existencia de un nivel de continuo sobre el que estos aparecen. El origen de este continuo o fondo que "contamina" los picos está fundamentalmente en procesos de dispersión Compton de gammas dentro del detector. Cuando una gamma del rango de los cientos de keV incide en el detector, puede interaccionar mediante absorción por efecto fotoelétrico, dispersión Compton, o producción de pares (para E $\gamma >$ 1022 keV). En la figura 4.6 están representadas las secciones eficaces fotoeléctricas y Compton de gammas en Ge, y como podemos apreciar, la dispersión Compton cobra cada vez más importancia relativa respecto a la absorción fotoeléctrica a medida que la energía de la gamma aumenta.



Figura 4.6: Secciones eficaces fotoeléctricas, compton y producción de pares en detectores de Ge y Si [61].

En la Figura 4.7 representamos respuestas típicas de un detector de Ge para gammas de 100 keV y 1 MeV. Cuando una gamma es absorbida por efecto fotoeléctrico, toda su energía queda depositada en el detector, y su registro aparece en el *full-energy peak* o *fotopico* (los picos que se aprecian en la figura). Sin embargo, si la gamma sufre una dispersión Compton y escapa del detector, en este caso sólo deposita parcialmente su energía. Su registro aparece en una región a la izquierda del fotopico, el *Compton continuum*. El punto o canal en el que aparezca dependerá de la cantidad de energía depositada. La máxima cantidad de energía se da para un ángulo de dispersión de 180°, que corresponde al *Compton edge*. En un caso real tendremos gammas de varias energías en el detector, lo que implica que sus fondos Compton se superponen. Normalmente sólo podremos por tanto identificar y distinguir a qué gamma pertenecen las cuentas que aparezcan en los *fotopicos*, y serán



estos *fotopicos* los que utilizaremos para contar y comparar las gammas registradas.

Figura 4.7: Respuestas típicas de un detector de Ge a una gamma de 100 keV (izquierda) y de 1 MeV (derecha). Se aprecian los fotopicos y los *Compton* continuum a la izquerda de los fotopicos, así como el *Compton Edge* [58].

Por otra parte, los fotopicos podemos apreciar en las figuras 4.5 y 4.7 que tienen una cierta anchura. Esto es debido a que dos gammas de idéntica energía, y que la depositan completamente, no siempre generan la misma cantidad de corriente en el detector, ya que esto se trata de un proceso estocástico [61]. Existe una cierta fluctuación alrededor del valor más probable, lo cual provoca que las cuentas registradas de gammas de una misma energía estén dispersas en un rango de varios canales alrededor del canal estadísticamente más probable. Para obtener el número total de cuentas de los fotopicos de 412 y 478 keV, deberemos sumar o integrar las cuentas de dicho pico, tomando una anchura suficiente del mismo. Por ejemplo, para una función gaussiana, una región de ancho 3 veces el FWHM (full width at half maximum) incluye el 99,96 % de su área. Sin embargo, al hacerlo estaremos incluyendo también el fondo existente, que tendremos que estimar y restar. Una posibilidad es estimar este fondo a partir del nivel promedio del mismo en los canales adyacentes al pico [68]. Otra estrategia para estimar las cuentas de pico es realizar un ajuste del mismo por una función, tipo gaussiana, o gaussiana modificada (ya que la forma del pico no es simétrica, presenta una cola hacia la zona de menor energía). Cuando existen varios picos cercanos parcialmente superpuestos, para distinguir las cuentas que pertenecen a cada uno, este ajuste con funciones es prácticamente la única opción. De la anchura de los fotopicos producidos depende la resolución de nuestro detector, es decir la capacidad de distinguir o resolver dos picos próximos entre sí.

En general para llevar a cabo este análisis de picos en espectrografía gamma de la manera más precisa y conveniente existen varios paquetes de software disponibles. Un análisis y comparativa de algunos de ellos puede encontrarse en [69]. En nuestro caso hemos utilizado el software *GENIE 2000 Spectroscopy Software*, del fabricante Canberra [62], disponible en el CNA. En la Figura 4.8 se muestra una captura de pantalla de la medida de los picos gamma de la Activación II, realizada con dicho software. Como se puede apreciar, los picos están aparentemente aislados y bien identificados, lo que nos ha permitido estimar el número cuentas con una incertidumbre razonable, de entre el $0.3 \ge 0.7 \%$, según indica el propio software.



Figura 4.8: Captura de pantalla (activación MNS) de espectrografía gamma realizada con el software GENIE2000 disponible en el CNA.

El número de cuentas gamma obtenidas y sus incertidumbres para cada uno de los experimentos se muestra en la Tabla 4.2.

Tabla 4.2: Cuentas gamma en el fotopico obtenidas en los experimentos de activación QMNS y MNS.

	C_{Au}	Incer.	C_{Be}	Incer.
Activación QMNS	32.950	0,7%	331.900	$0{,}3\%$
Activación MNS	64.100	0,7%	546.000	0,3%

4.3. Desintegraciones radioactivas.

Durante la irradiación, tenemos un flujo de partículas (protones sobre el ⁷Li y neutrones para el ¹⁹⁷Au) incidiendo sobre las muestras y produciendo núcleos radioactivos, con una tasa de producción proporcional al flujo instantáneo recibido $\phi(t)$. Al mismo tiempo, desde el momento en que empiezan a ser producidos, los núcleos radiactivos de ¹⁹⁸Au y ⁷Be comienzan a desintegrarse. La Figura 4.9 muestra un esquema de la evolución de esta cantidad de núcleos activados presentes en la muestra A(t) a la largo de todo el experimento.



Figura 4.9: Esquema de la evolución del número de núcleos radioactivos A(t) presentes en la muestra durante las distintas fases del experimento.

Teniendo en cuenta la producción y desintegración de núcleos, el número de núcleos radioactivos A(t) presentes en un determinado momento t cumple la siguiente ecuación diferencial:

$$\frac{dA(t)}{dt} = \mathbf{k} \cdot \phi(t) - \lambda \cdot A(t) . \qquad (4.2)$$

siendo k una constante de proporcionalidad (igual a la sección eficaz de la reacción multiplicada por el espesor másico de la muestra) entre tasa de variación $\frac{dA(t)}{dt}$ y el flujo instantáneo $\phi(t)$, y λ la constante de desintegración del núcleo radiactivo.

La ecuación 4.2 es una ecuación diferencial ordinaria de primer orden, cuya solución genérica es:

$$A(t) = e^{-\lambda(t-t_0)} \cdot \left(A_0 + \int_{t_0}^t k \cdot \phi(\tau) \cdot e^{\lambda(\tau-t_0)} d\tau \right)$$

$$(4.3)$$

En nuestro caso, con $A_0=0$ y $t_0=0$,

$$A(t) = e^{-\lambda(t)} \cdot \int_0^t k \cdot \phi(\tau) \cdot e^{\lambda \tau} d\tau.$$
(4.4)

Nuestro objetivo, para poder calcular la sección eficaz experimental, es obtener el número total de activaciones producidas (A en la Figura 4.9). Este número A lo podremos relacionar con el número de desintegraciones que tienen lugar durante el tiempo de medida, ΔA en la Figura 4.9, mediante el factor o fracción de desintegración f_d tal que

$$\triangle A = A \cdot f_d \tag{4.5}$$

Si definimos entonces las cantidades reflejadas en la Figura 4.9:

A = número total de núcleos radioactivos producidos durante la irradiación.

 $A_1 = n$ úmero de núcleos activados presentes al final de la irradiación.

 $A_2 = n$ úmero de núcleos activados presentes al final del tiempo de espera.

 $A_3 =$ número de núcleos activados presentes al final del tiempo de medición. $\Delta A = A_2 - A_3$: número de desintegraciones durante la medida con el detector gamma HPGe.

Aplicando la ecuación 4.4 podemos obtener las siguientes relaciones:

$$A_{3} = A_{2} \cdot e^{-\lambda t_{m}} ; \quad A_{2} = A_{1} \cdot e^{-\lambda t_{w}} ;$$

$$A_{1} = e^{-\lambda t_{a}} \cdot \int_{0}^{t_{a}} k \cdot \phi(\tau) \cdot e^{\lambda \tau} d\tau ;$$

$$\Delta A = A_{2} - A_{3} = e^{-\lambda t_{a}} \cdot \int_{0}^{t_{a}} k \cdot \phi(\tau) \cdot e^{\lambda \tau} d\tau \cdot (1 - e^{-\lambda t_{m}}) \cdot (e^{-\lambda t_{w}}) ;$$

$$A = \int_{0}^{t_{a}} k \cdot \phi(\tau) \cdot d\tau,$$

y por tanto el factor de desintegración f_d vendrá dado por

$$f_d = \frac{\Delta A}{A} = \frac{\left(1 - e^{-\lambda t_m}\right) \cdot \left(e^{-\lambda t_w}\right) \cdot e^{-\lambda t_a} \cdot \int_0^{t_a} \phi\left(\tau\right) \cdot e^{\lambda \tau} d\tau}{\int_0^{t_a} \phi(\tau) \cdot d\tau} .$$
(4.6)

En una caso ideal, con una corriente de protones constante, y consecuentemente también un flujo de neutrones $\phi(\tau) = cte$, el factor f_d se reduciría a:

$$f_d = \frac{\left(1 - e^{-\lambda t_m}\right) \cdot \left(e^{-\lambda t_w}\right) \cdot 1 - e^{-\lambda t_a}}{\lambda t_a} \ . \tag{4.7}$$

Sin embargo, en el caso real la corriente del acelerador no es posible mantenerla absolutamente constante durante toda la irradiación, ni por lo tanto la producción de neutrones. Tendremos en cuenta esa variación temporal de la corriente y flujo $\phi(t)$, utilizando los registros del dosímetro de neutrones colocado en la sala durante el experimento. Las Figuras 4.10 y 4.11 muestran dichos registros (en los que no son relevantes para nuestros cálculos los valores absolutos, sino la variación o perfil a lo largo del tiempo).



Figura 4.10: Datos recogidos por el dosímetro de neutrones situado en la sala Tandem durante la Activación I.



Figura 4.11: Datos recogidos por el dosímetro de neutrones situado en la sala Tandem durante la Activación II.

La resolución temporal de la dosimetría es de un minuto, por tanto dentro de cada minuto i tomaremos un valor constante para el flujo $\phi(i)$. La expresión para

 f_d se transforma entonces en un sumatorio, que resulta (con $t_n = 60$ s):

$$f_d = \frac{\left(1 - e^{-\lambda t_m}\right) \cdot \left(e^{-\lambda t_w}\right) \cdot \sum_{i=0}^{i=\frac{t_a}{t_n}} \phi(i) \cdot \frac{1 - e^{-\lambda t_n}}{\lambda t_n} \cdot e^{-\lambda(t_a - i \cdot t_n)}}{\sum_{i=0}^{i=\frac{t_a}{t_n}} \phi(i)} \quad .$$
(4.8)

De acuerdo con las expresiones obtenidas, los tiempos del experimento indicados en la tabla Tabla 3.2, y las constantes de desintegración correspondientes, los factores de corrección resultantes se indican en la tabla 4.3. En ella se muestran tanto los valores obtenidos considerando flujo constante como incluyendo la variación con el perfil registrado en el dosímetro. Podemos observar que al introducir esta variación del perfil el valor de la corrección por desintegración obtenida (de la relación f_{dBe}/f_{dAu}) cambia un 0,2 % para el experimento MNS y un 0,6 % en QMNS, lo cual indica que, si bien este efecto es pequeño, debe ser tenido en cuenta.

La incertidumbre en los valores obtenidos de estos factores provendrá de las incertidumbres en las semi-vidas del ¹⁹⁸Au y ⁷Be. Para los valores tomados de 53,22(6) d para el ⁷Be y 2.6943(3) d para el ¹⁹⁸Au [55], el cálculo de estas incertidumbres o errores relativos da un resultado de 0,1 % para f_{dBe} y 0,01 % para f_{dAu} .

Tabla 4.3: Factores de desintegración f_d obtenidos.

Sin corrección de perfil de flujo de neutrones				
	f_{dAu}	Incer. $(\%)$	f_{dBe}	Incer. $(\%)$
QMNS	0,06500	0,01	0,00351	0,1
MNS	0,12775	$0,\!01$	0,00704	$_{0,1}$
	Con correcci	ón de perfil de	flujo de neutro	ones
QMNS	0,06543	0,01	0,00351	0,1
MNS	$0,\!12816$	$0,\!01$	0,00705	$_{0,1}$

4.4. Transporte y detección gamma.

4.4.1. Eficiencia en la detección gamma ϵ_{γ} .

Del total de gammas emitidas desde el Li y Au durante el tiempo de medida, sólo una parte de ellas será recogida y detectada por el detector gamma HPGe. En general esta eficiencia total en la detección, que llamaremos ϵ_{γ} , la podemos considerar el producto de dos factores: un factor de transmisión k_{γ} de las gammas a través de los materiales (función de la absorción y dispersión que sufran las gammas en Li, Cu y Au antes de llegar al detector), y un factor de eficiencia del detector para las gammas de esas energías (ε_{γ}):

$$\epsilon_{\gamma} = k_{\gamma} \cdot \varepsilon_{\gamma} \; .$$

La eficiencia del detector gamma HPGe ε_{γ} se suele considerar a su vez como un producto de su eficiencia geométrica ε_{Ω} (fracción de las gammas emitidas por la fuente que entran en el detector) y de su eficiencia intrínseca ε_i (fracción de las gammas incidentes en el detector que son registradas), expresándose como:

$$\varepsilon_{\gamma} = \varepsilon_i \cdot \varepsilon_{\Omega}$$

La eficiencia geométrica ε_{Ω} es igual al ángulo sólido cubierto por la entrada del detector vista desde la fuente gamma, si es necesario teniendo en cuenta si la emisión se produce desde fuentes extensas. Este cálculo en principio es posible realizarlo de manera analítica, y se describe en el Anexo. La eficiencia intrínseca ε_i , la cual depende en general de la energía de la gamma, $\varepsilon_i = \varepsilon_i(E)$, es posible estimarla en principio construyendo una curva de dependencia con la energía de la eficiencia partir de un ajuste de puntos obtenidos con calibraciones con fuentes gamma calibradas de referencia de distintas energías. Utilizando esta curva y extrapolando podrían obtenerse eficiencias intrínsecas relativas para las energías de las gammas de Au y Li. Sin embargo, en el experimento hay que tener en cuenta que las gammas se emiten desde fuentes extensas, y los efectos como las diferentes longitudes de recorridos que las gammas puedan realizar dentro del detector [61], tal como se muestra en el esquema de la Figura 4.12.



Figura 4.12: Esquema de ejemplos de trayectorias de rayos gamma incidentes en el detector HPGe desde una fuente extensa.

Para tener en cuenta estos efectos geométricos de fuente extensa, e incluir las absorciones y dispersiones gamma en materiales, la eficiencia total en la detección gamma se ha estimado con la ayuda de una simulación Monte Carlo completa de fuentes, materiales, geometría y detector.

4.4.2. Simulación MCNPX del detector gamma HPGe.

Una primera simulación en MCNPX del detector gamma HPGe se realizó a partir de la hoja de especificaciones del fabricante (Ortec), esquema de la fig. 4.13. El núcleo del detector simulado lo compone un cristal de germanio, de forma cilíndrica con bordes redondeados en uno de sus extremos (forma de bala). Según fabricante sus medidas son 74.4 mm de longitud y 57 mm de diámetro, con un agujero coaxial en su centro 11.8 mm de diámetro y 67.5 mm de longitud. El cristal se encuentra dentro de una cápsula de aluminio, con una abertura en su parte frontal, protegida por una capa de mylar aluminizado de 0.05 mm de espesor, y por una ventana de berilio de 0.5 mm de espesor. Los contactos exteriores e interiores están realizados mediante el dopado del germanio con iones de boro y litio, formando capas de un espesor de 0.3 micras (exterior) y 700 micras (interior). Esta geometría simulada en MCNPX se muestra en las Figuras 4.14 a 4.16.



Figura 4.13: Diagrama del detector HPGe, facilitado por el fabricante (OR-TEC)[58].

Una de las funciones de MCNPX, el tally F8 (Tabla 6.1), nos permite simular la respuesta de nuestro detector de germanio frente a la radiación. La función F8 mide el número de pulsos de corriente o cuentas que produciría en el detector una determinada radiación gamma que incidiera sobre él. Adicionalmente, el tally E permite definir intervalos de energía, de modo que en el fichero de salida se indica el número de pulsos de corriente o cuentas registradas dentro de cada uno de los intervalos de energía definidos. Con los datos de este fichero de salida podemos construir un histograma (espectro) con la respuesta del detector, similar al que se



Figura 4.14: Vista 2D de la geometría simulada en MCNPX de la cápsula del detector completa, basada en las especificaciones del fabricante.



Figura 4.15: Vista 3D de la simulación en MCPX del cristal de germanio.



Figura 4.16: Vista 3D de la simulación en MCPX del cristal de germanio.

obtiene en el detector real. La fig. 4.17 nos muestra este histograma de la simulación de la respuesta del detector para una fuente gamma de 176,3 keV, situada a 17 mm del detector, obtenida con los tally F8 y E8 entre 0 y 200 keV e intervalos de energía de 1 keV.



Figura 4.17: Respuesta del detector gamma HPGe simulado en MCNPX para una fuente gamma isotrópica en forma de disco de 6 mm de diámetro situada a 17 mm del detector.

La fuente gamma no se modeló completamente puntual, sino como un disco de 6 mm de diámetro, tamaño característico de una fuente de referencia real como las disponibles en el CNA, al objeto de poder comparar posteriormente nuestra simulación con la calibración experimental. La simulación se realizó con la emisión 10⁶ gammas desde dicha fuente. Se aprecia como la mayoría de las cuentas se registran en un pico de 176 keV, si bien se observa también un fondo de cuentas de menor energía (hacia la izquierda del pico principal) debidas a dispersión Compton. Observamos asimismo que los picos en la simulación son "ideales", es decir, ocupan sólo el intervalo de 1 keV definido, y no tienen el ensanchamiento en energía característico que un detector real de resolución limitada tendría por la fluctuación estadística de los pulsos generados para una misma energía gamma. MCNPX tiene la posibilidad de simularlo o aproximar la forma de estos picos reales introduciendo un ensanchamiento gaussiano, si bien en nuestro caso no aporta información adicional para el cálculo de la eficiencia en el que estamos interesados.

Como hemos indicado anteriormente, para la eficiencia gamma del detector se considera sólo el número de cuentas del pico principal o fotopico. Realizando sucesivas simulaciones para gammas de distintas energías y distancias, pueden construirse curvas de eficiencia de pico del detector frente a gammas de distintas energías. La Tabla 4.4 y Figura 4.18 muestran los resultados de simulaciones llevadas a cabo para este fin.

Tabla 4.4: Resultados de 39 simulaciones MCNPX para estimación de eficiencia de pico a distintas energías y distancias al detector gamma HPGe de una fuente circular de 6 mm de diámetro.

	Distancia de la	fuente al detecto	r gamma HPGe
$E_{\gamma} (keV)$	$3 \mathrm{mm}$	$17 \mathrm{~mm}$	32 mm
50	0,3410	0,1650	0,0875
80	0,3350	0,1620	0,0860
105,3	0,3200	0,1540	0,0815
176,3	0,2460	0,1160	0,0625
276,4	0,1640	0,0777	0,0423
$383,\!8$	0,1180	0,5670	0,0314
411,8	0,1110	0,5340	0,0295
427,9	0,1070	0,0521	0,0285
$477,\! 6$	0,0966	0,0468	0,0258
$600,\!6$	0,0780	0,0382	0,0209
1173,2	0,0447	0,0222	0,0126
1332,5	0,0397	0,0198	0,0112
1450	0,0364	0,0182	0,0102



Figura 4.18: Curvas de eficiencia frente a la energía del detector gamma HPGe obtenidas de simulaciones en MCNPX para varias energías y distancias entre la fuente y el detector.

4.4.3. Optimización de la simulación MCNPX del detector gamma HPGe.

Existen en la bibliografía numerosas referencias en las que se citan las diferencias que con frecuencia suelen encontrarse entre las curvas de eficiencia obtenidas a partir de simulaciones y las obtenidas experimentalmente a partir de fuentes calibradas [2][70]. La principal diferencia entre simulada y experimental la hallamos en el valor absoluto de las eficiencias, no tanto así en la forma o tendencia de la curva. El principal elemento que determina la eficiencia de un detector gamma HPGe es el volumen y forma de su cristal de germanio. Los fabricantes proveen hojas técnicas con sus especificaciones, sin embargo, numerosas veces existen discrepancias entre esas especificaciones nominales que el fabricante proporciona y la realidad. Estas diferencias suelen ser debidas fundamentalmente a dos factores:

- 1. Aumento del volumen de las *zonas inactivas* del cristal de germanio: con el paso del tiempo el dopaje utilizado en el germanio para crear los contactos tiende a difundirse, aumentando la profundidad de estas regiones inactivas.
- 2. Defectos en la fabricación de los cristales (diferencias de tamaño respecto al indicado por fabricante) o en su posición dentro de la cápsula de aluminio.

El detector HPGe Ortec GMX utilizado en el experimento fue adquirido en 1999. Estudios con detectores de antigüedad similar muestran aumentos significativos de hasta varios milímetros de espesor de la zona inactiva del germanio [71] [72].

Para nuestro experimento de activación no resulta en principio necesaria la determinación de la eficiencia absoluta del detector, sino sólo su eficiencia relativa para gammas de 478 y 412 keV de energía (las procedentes de las láminas de Li y Au). Según se indica en la literatura, las posibles diferencias en el tamaño del cristal o zonas inactivas tienen una influencia menor sobre esta eficiencia relativa, y las simulaciones con las dimensiones nominales proveen un método razonablemente fiable para el cálculo de esta eficiencia relativa [2]. No obstante, intentando obtener una posible mejora u optimización de nuestra simulación MCNPX, hemos tenido también en cuenta estas posibles diferencias. Para ello hemos recurrido a una medida experimental de la eficiencia del detector con fuentes radioactivas calibradas, comparándola con la obtenida en la simulación, y a partir de ello, mediante un procedimiento iterativo similar al utilizado por varios autores [70] [71], ir variando las dimensiones del cristal y/o zonas inactivas en sucesivas simulaciones hasta encontrar un mejor acuerdo entre eficiencia simulada y medida experimental.

Con este fin, para la calibración se utilizó un conjunto de fuentes multigamma de referencia disponibles en el CNA. En la Tabla 4.5 se indican las características de las fuentes (isótopos, vidas medias, energías de las gammas, intensidades de las gammas y actividad inicial para la fecha de referencia) según los datos facilitados por el fabricante, y en la Figura 4.19 fotografías de las mismas.

Isótopo	$E_{\gamma} (keV)$	Vida media (días)	$A_{o}(\pm 5\%)$ (Bq) 16-dic-1998	I_{γ}
155 Eu	105,3	2506, 26566	3450	0,2115
$^{125}\mathrm{Sb}$	176,3	1459,85401	6384	0,0688678
$^{125}\mathrm{Sb}$	427,9	1459,85401	6384	0,298
$^{125}\mathrm{Sb}$	$600,\!6$	1459,85401	6384	$0,\!1776676$
$^{60}\mathrm{Co}$	1173	2770,0831	5080	0,9982
$^{60}\mathrm{Co}$	1332	2770,0831	5080	0,999

Tabla 4.5: Características de las fuentes de referencia empleadas para la calibración.



Figura 4.19: Fuente de referencia utilizada para la calibración. A la derecha se puede observar en la zona central el hueco donde está depositado el material radioactivo.

Para estimar la eficiencia de modo experimental con dichas fuentes, partimos de la expresión de la eficiencia de pico para una gamma de una determinada energía:

$$\varepsilon_{\gamma} = \frac{C_{peak}}{C_T} \quad , \tag{4.9}$$

donde C_{peak} es el número de cuentas de pico registradas en nuestro detector durante un tiempo de medida t_m , y C_T el número total de gammas de esa energía emitidas por la fuente durante ese tiempo t_m . Teniendo en cuenta la ley de desintegración exponencial para el número de núcleos radioactivos, siendo N_0 es el número de núcleos radioactivos presentes en el momento de la calibración de la actividad inicial A_0 de la muestra, y t_c el tiempo que la muestra ha estado almacenada desde esa calibración hasta el comienzo de nuestra medida, entonces el número de núcleos N_1 presentes en nuestra muestra al inicio de nuestra medida es

$$N_1 = N_0 \cdot e^{-\lambda t_c} , \qquad (4.10)$$

y para una gamma de intensidad I_{γ} el número de gammas emitidas C_T se expresa entonces como:

$$C_T = I_{\gamma} \cdot (N_1 - N_{t_m}) = I_{\gamma} \cdot N_0 \cdot e^{-\lambda t_c} \cdot (1 - e^{-\lambda t_m}) .$$
 (4.11)

Teniendo en cuenta que $A_0 = \lambda \cdot N_0$, obtenemos finalmente la siguiente expresión para la eficiencia de pico de una determinada gamma:

$$\varepsilon_{\gamma} = \frac{C_{peak} \cdot \lambda}{A_0 \cdot I_{\gamma} \cdot e^{-\lambda t_c} \cdot (1 - e^{-\lambda t_m})} \quad . \tag{4.12}$$

Para estimar el número de cuentas de pico C_{peak} para cada una de las gammas a partir de la medida registrada en el detector HPGe se siguió el procedimiento que se explica con detalle en la sección anterior, utilizando el software Genie2000 disponible en el CNA (Figura 4.20).



Figura 4.20: Captura de pantalla de análisis de picos gamma mediante GE-NIE2000 de los espectros obtenidos de fuentes de referencia.

La Tabla 4.6 muestra los números de cuentas estimadas y las eficiencias calculadas (con un error dominado por la incertidumbre de las actividades iniciales de las fuentes, un 5%). Una vez obtenidas estas eficiencias experimentales, en la figura 4.21 las comparamos con las obtenidas en la simulación MCNPX para dimensiones del cristal de germanio según fabricante (radio de 57 mm y zona inactiva de 0,7 mm).

Isótopo	t_c (d)	t_m (s)	C_{peak}	E (keV)	$\varepsilon_{\gamma}(\pm 5\%)$
$^{125}\mathrm{Sb}$	4541	21501	70900	176,3	0,1683
$^{125}\mathrm{Sb}$	4541	21501	95800	427,9	$0,\!0525$
$^{125}\mathrm{Sb}$	4541	21501	41600	$600,\!6$	0,0383
$^{60}\mathrm{Co}$	4541	21501	493000	1173	0,0233
$^{60}\mathrm{Co}$	4541	21501	436000	1332	0,0206

Tabla 4.6: Número de cuentas de pico C_{peak} y eficiencias experimentales ε_{γ} para gammas de distintas energías.



Figura 4.21: Eficiencias del detector experimental obtenida con fuentes de referencia a 8 mm, y simulada con MCNPX según especificaciones del fabricante para el Ge.

Podemos observar en la figura 4.21 que la eficiencia experimental absoluta resulta menor que la simulada, en concordancia con otros estudios [70][71][72]. En la eficiencia relativa en cambio sí apreciamos un buen acuerdo, como era de esperar según se ha indicado antes [2], concretamente observando la región de los puntos 427-600 keV y en 1173-1332 keV, aunque no así para la región de más baja energía (176-427 keV). Tratando de mejorar esta concordancia, aplicamos el procedimiento iterativo descrito mediante la variación de las dimensiones y zonas inactiva del germanio. Tras un conjunto de simulaciones, logramos finalmente encontrar un mejor ajuste con las medidas de eficiencia experimental utilizando un cristal de 55 mm de diámetro y 4 mm de capa inactiva (CI) interna. Estas medidas serán las utilizadas para la simulación completa del experimento y cálculo de la eficiencia que se describen en la sección siguiente. En la tabla 4.7 se muestran los valores obtenidos con este ajuste, y se representan en la Figura 4.22.

Tabla 4.7: Eficiencias obtenidas en simulaciones MCNPX para cristales de Ge de distintas especificaciones (nominal y modificadas).

E (keV)	Simulación Ge	Simulación Ge	Simulación Ge
	capa.inac. $0,7~\mathrm{mm}$	capa.inac. 3 mm	capa.inac. 4 mm
	diam. 57 mm	diam. 55 mm	diam. 55 mm
176,3	0,1850	0,1530	0,1460
427,9	0,0804	0,0598	0,0550
$600,\!6$	0,0584	0,0430	0,0393
1173,2	0,0335	0,0232	0,0213
1332,5	0,0300	0,0206	0,0188



Figura 4.22: Eficiencias del detector experimental con fuentes de referencia a 8 mm del detector y simuladas (MCNPX) para cristal de Ge ajustado a diámetro D=55 mm y capa inactiva CI=4mm, y a otro ajuste próximo de CI=3 mm.

4.4.4. Simulación del transporte y eficiencia total de la detección de gammas.

Una vez optimizada la geometría del detector gamma, con cristal de Ge de diámetro D=55mm y capa inactiva CI=4mm, es necesario para el cálculo de la eficiencia gamma la correcta definición de las fuentes gamma en el fichero de entrada para la simulación del experimento completo. En nuestro caso se tratará de la región de la lámina de litio en la que el haz de protones haya producido la reacción ⁷Li(p,n). Para estimar la extensión de esta región tendremos en consideración lo siguiente: por una parte, en la preparación del experimento, y como se describe en el capítulo 2, el haz del acelerador se ajustó para que cubriera completamente la superficie (cara anterior) de la lámina de litio, de 1 cm de diámetro. Por otra parte, los protones del haz, al penetrar en el litio van perdiendo progresivamente energía. Cuando la energía de los protones baja del umbral de 1881 keV, la reacción ⁷Li(p,n) deja de producirse.

Para estimar a qué profundidad del litio los protones son rebajados del umbral de reacción, se utilizó el software SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter) [50]. Este código, de acceso libre, permite simular el transporte e interacción de iones ligeros y pesados en distintos tipos de materiales, y obtener la pérdida de energía de los mismos a lo largo de un rango de distancia. La fig.4.23 muestra el resultado de calcular con SRIM la transmisión de un haz de protones de 1912 keV a través de un blanco de Li de 380 µm de espesor. Se observa en ella que los protones al penetrar en el litio empiezan a perder energía, a una razón aproximada de 8 keV/µm, la cual aumenta hasta alcanzar un máximo de alrededor de 30 keV/µm en el denominado Pico de Bragg. Antes de perder toda su energía y detenerse completamente recorren aproximadamente 150 µm, pero tras recorrer tan solo 4 µm ya habrán disminuido su energía en más de 32 keV, quedando por debajo de 1881 keV, y sin posibilidad de producir nuevas reacciones ⁷Li(p,n).



Figura 4.23: Pérdida de energía en litio de protones de energía inicial Ep=1912 keV. Imagen obtenida con SRIM [50].

Los puntos o fuentes de emisión de neutrones (y gammas) quedarán entonces sólo en la parte anterior de la lámina de litio, en una zona prácticamente superficial de entre 0 y 4 μ m de profundidad. Nuestra fuente gamma la modelaremos por tanto como una distribución circular uniforme de 1 cm de diámetro en la cara anterior del litio.

Para el caso del oro, en cambio, la irradiación con neutrones (y la activación por tanto) no es homogénea en toda la lámina, debido a la dispersión y distribución angular del flujo de neutrones. La emisión gamma no se producirá con igual intensidad desde todas las regiones de la lámina de oro. En principio este efecto puede no resultar muy significativo, no obstante lo hemos estudiado también para un resultado óptimo en la simulación, para ambos casos de QMNS y MNS.

Para obtener dicha distribución de capturas o activaciones en el oro subdividimos en la simulación dicha lámina de oro en varias celdas o regiones, y calculamos mediante el tally FT8 las activaciones dentro de cada una de ellas. Dada la simetría radial del campo de neutrones, se subdividió la celda en anillos, para obtener un perfil en función de activaciones en función de la distancia al centro de la muestra. Esta subdivisión se muestra en la Figura 4.24.



Figura 4.24: Vista de perfil (izquierda, grosor no a escala) y frontal (derecha) de la subdivisión en 13 celdas en MCNPX de la lámina de oro.

En la Tabla 4.8 se muestran los resultados de la simulación de estas capturas o activaciones, para los experimentos con QMNS y MNS. Teniendo en cuenta que para los anillos $ds = 2\pi r \cdot dr$, podemos representar el perfil de activación (número de activaciones dividido entre superficie) en función de la distancia al centro de la lámina r, en la Figura 4.25. En las figuras observamos que la activación del oro es prácticamente homogénea dentro de una zona circular central de 4 mm de radio, tiene una zona de transición entre los 4 y 7 mm, y disminuye rápidamente fuera de ese radio. Para el caso del flujo QMNS, a partir de los datos de la Tabla 4.8 se obtiene que el 99% de las activaciones quedan dentro de un radio de 7 mm. Esto es debido a que para QMNS el ángulo máximo de emisión de neutrones de 70 grados. Fuera de esa región, el 1% restante de activación es debido a neutrones procedentes de dispersión en el cobre. Con el flujo MNS, el cual presenta una mayor apertura angular (>90 grados), existen activaciones en toda la lámina de oro, si bien la mayor parte se siguen concentrando dentro de un radio de 7-8 mm. En este caso MNS el porcentaje de activaciones que quedan dentro de un radio de 7 mm es del 90%.

		$ N^{\underline{0}} $ de capt	uras.
Celda	r (cm)	QMNS	MNS
1	0,02	118	110
2	$0,\!12$	3907	3688
3	$0,\!22$	9586	8847
4	0,32	15300	13858
5	$0,\!42$	20599	17382
6	0,52	16722	15633
7	$0,\!62$	2060	5624
8	0,72	323	2827
9	0,82	237	1916
10	0,92	177	1478
11	1,02	187	1222
12	$1,\!12$	136	1128
13	$1,\!22$	151	939

Tabla 4.8: Resultados de las simulaciones MCNPX de capturas por regiones en la lámina de oro.



Figura 4.25: Perfiles de activación en Au con neutrones QMNS (izq.) y MNS (der.).

Por otra parte, dado que tenemos información del espectro y distribución angular del flujo de neutrones, y de la sección eficaz del oro en función de la energía, teniendo en cuenta la geometría del experimento podría también deducirse analíticamente el perfil de activaciones. Para el experimento con fluencia QMNS se ha realizado este cálculo, comprobando que sus resultados concuerdan plenamente con el perfil obtenido con MCNPX. Se incluye como Anexo.

Para el cálculo final de la eficiencia gamma tomaremos esta distribución de activaciones calculada escribiendo en el fichero de entrada MCNPX para las fuentes gamma un histograma con una distribución de probabilidad correspondiente a los perfiles de la Figura 4.25. Incluyendo en nuestro fichero de entrada la distribución de fuentes gammas calculada, la geometría completa y el detector HPGe optimizado en la sección anterior, podemos hacer una simulación completa del transporte y detección de gammas. En la Figura 4.26 se muestra la geometría de la simulación, que incluye muestras, soporte y detector.



Figura 4.26: Geometría de la simulación MCNPX de muestras, soporte y detector para el transporte y detección de gammas.

En las Figura 4.27 y Figura 4.28 se representan las respuestas del detector obtenidas en simulaciones con 10^7 gammas por cada fuente de 412 y 478 keV, e intervalos de energía de 1 keV.

En la Tabla 4.9 se indican los números de cuentas de pico obtenidos con el tally F8 en las simulaciones realizadas, las cuales al estar normalizadas al total de gammas emitidas, corresponden a las eficiencias de pico, y las eficiencias relativas ($\epsilon_{\gamma Be}/\epsilon_{\gamma Au}$) obtenidas.

La incertidumbre para la eficiencia relativa asociada a la estadística de la simulación MCNX resulta del 0.5%. No obstante, a esto hay que añadir que a pesar del buen acuerdo entre las curvas de calibración experimental y simulada tras el ajuste realizado en las dimensiones del cristal, este no es necesariamente el óptimo ni el único posible. Diferentes ajustes podrían variar estas eficiencias relativas [70], en nuestro caso hasta en un 1.5%. Asignaremos de un modo conservador una



Figura 4.27: Simulación de la respuesta espectrométrica del detector HPGe a fuente gamma de 478 keV procedente de la desintegración del ⁷Be del montaje experimental completo.



Figura 4.28: Simulación de la respuesta espectrométrica del detector HPGe a fuente gamma de 412 keV procedente de la desintegración del ¹⁹⁸Au del montaje experimental completo.

incertidumbre total del 2% a nuestra eficiencia gamma calculada, por otra parte en concordancia con incertidumbres típicas para la eficiencia gamma reportadas en experimentos de activación [40][41].

Tabla 4.9: Eficiencias en la detección gamma obtenidas de las simulaciones MCNPX, con detector HPGe de cristal de Ge con D=55mm y CI=4mm.

	QMNS	Incert.	MNS	Incert.
Eficiencia $\epsilon_{\gamma Be}$	0,01932	$0,\!2\%$	0,01632	$0{,}2\%$
Eficiencia $\epsilon_{\gamma A u}$	0,02421	$0{,}2\%$	0,02038	$_{0,2\%}$
Eficiencia relativa $\frac{\epsilon_{\gamma Be}}{\epsilon_{\gamma Au}}$	0,798	0,5%	0,801	0,5%

4.4.5. Absorción y dispersión gamma en materiales k_{γ}

Podemos analizar por separado el efecto de la absorción gamma en los materiales si repetimos simulaciones MCNPX pero sin interacción con los materiales Li, Cu, Au, (es decir, rellenando las celdas de estos materiales con vacío), y comparamos estos resultados con los de una simulación completa. El efecto de la de absorción y dispersión en materiales se observa en la relación:

$$k_{\gamma} = \frac{\epsilon_{\gamma}}{\varepsilon_{\gamma}} \,. \tag{4.13}$$

La Tabla 4.10 muestra los resultados obtenidos en estas simulaciones y en el factor k_{γ} obtenido. Como podemos apreciar, la absorción (y dispersión) resulta del 2% para las gammas procedentes del Au y del 7% para las procedentes del Be.

Tabla 4.10: Eficiencias del detector gamma HPGe obtenidas en simulaciones MCNPX.

	ε_{γ}	Incer.	k_γ
Be	0,02079	$0,\!2\%$	0,929
Au	0,02470	0,2	0,980

Una estimación de la absorción gamma en los materiales es posible también realizarla de manera analítica. La siguiente expresión nos indica en general la intensidad I con la que emergería un haz estrecho de fotones monoenergéticos de intensidad I₀, tras atravesar un material de espesor másico N y coeficiente de atenuación másico μ/ρ [73].

$$I = I_0 \cdot e^{-(\mu/\rho)_N} . (4.14)$$

Sería necesario en ese caso estimar las posibles trayectorias de las gammas hacia el detector, e integrarlas para los distintos espesores de material que atravesarían en cada caso hasta llegar al detector. El ejercicio de cálculo analítico de esta manera se incluye en el Anexo. Sus resultados resultan coherentes con los obtenidos en las simulaciones.

4.5. Flujo y transporte de neutrones.

4.5.1. Simulación MCNPX de la fluencia y espectro en energía de neutrones sobre la muestra de Au.

Las Figura 4.29 y Figura 4.30 muestran distintas vistas de la simulación en MCNPX de la geometría del soporte de cobre con las láminas de litio y oro (y aluminio para MNS). Se simuló también el circuito interior de agua para la refrigeración, para tener en cuenta los posibles efectos de la moderación en neutrones dispersados.

Para la simulación de la fuente de neutrones contaremos con la ayuda del código Fortran LZ descrito en el capítulo de Introducción de esta memoria y en [35]. Dicho código genera la distribución angular y en energía de un flujo de neutrones producidos desde una fuente puntual mediante la reacción ⁷Li(p,n), para una energía de protón determinada. Para el experimento con QMNS, la energía de protón seleccionada en la rutina fue de 1912 keV, y para MNS fue de 1860 keV. Una vez ejecutado el código, el fichero de salida generado (.txt) contiene la distribución en ángulo y energía del flujo de neutrones, en pasos de 1 grado y 1 keV. El contenido de este fichero de salida, en el formato adecuado, se incorpora dentro del bloque *Source Card* del fichero de entrada de MCNPX, constituyendo, junto con otros parámetros que se explicarán a continuación, la fuente de neutrones de nuestra simulación. Los puntos o fuentes de emisión de neutrones, como hemos explicado en el apartado anterior la modelaremos como una distribución circular uniforme de 1 cm de diámetro en la cara anterior del litio.

Los neutrones emitidos desde el litio deben atravesar el propio litio y el soporte de cobre antes de incidir en la muestra de oro. Una parte de ellos será dispersada en estos materiales. Adicionalmente, para el caso de MNS algunos neutrones directamente se emiten fuera del ángulo sólido cubierto por la muestra de oro. El tally F1 de MCNPX proporciona la fluencia de partículas (neutrones en este caso) que atraviesa una determinada superficie de la simulación, y nos permitirá calcular de ese modo qué fluencia de neutrones recibe realmente el oro, normalizada al número de neutrones generados en la simulación. Para cada experimento (QMNS y MNS) se realizaron dos simulaciones, una primera con el montaje real completo (Li, soporte de Cu y Au), y una segunda rellenando con vacío las celdas de Li y Cu, de modo que no hubiera dispersión en Li y Cu. Esto nos permitirá, comparando ambos tipos de medidas, determinar y separar qué porcentaje de neutrones que no inciden en el Au es debido a la dispersión en Li y Cu, y cuál es debido a la geometría del experimento. En las cuatro simulaciones la celda del Au se rellenó de vacío, para no sumar a la fluencia en la cara anterior una posible retro-dispersión procedente del propio Au. Además, se estudia y analizan los resultados de las simulaciones de fluencias en la cara anterior y posterior de la muestra separadamente.



Figura 4.29: Vistas 3D de la simulación MCNPX del blanco de litio, soporte de cobre y muestra de oro. El blanco de litio está situado en la zona indicada en rosa de la figura de la izquierda. La lámina de oro corresponde al círculo de la figura de la derecha, y la región azul al soporte de cobre.



Figura 4.30: Vista en 2D de la simulación MCNPX de la sección del soporte de Cu (2) y láminas de Li (3) y Au (5).

La Tabla 4.11 recoge los resultados de las simulaciones. El tally F1 indica el flujo normalizado al total de neutrones emitidos por la fuente, por lo que este el valor se corresponde directamente con el factor k_s , que resulta ser de 0,977 para el caso del flujo QMNS, y de 0,928 para el flujo de espectro MNS. Como podemos observar en los resultados, según calculamos en nuestra simulación existe un 2% de pérdida del flujo disponible en la muestra de oro debido a la dispersión en el soporte de cobre. La importancia de esta pérdida y su comparación con la estimación de

medidas anteriores será evaluada posteriormente en las discusiones. Por otra parte, debido a que en el método MNS hay neutrones que se emiten a ángulos superiores a 90 grados, sin tener en cuenta la dispersión, el flujo en la muestra corresponde al 94,6% del total producido.

Tabla 4.11: Flujos en la muestra de oro y correcciones k_s obtenidos como resultado de las simulaciones con el tally F1.

Medida (tally F1)	Valor	Incert.
Flujo QMNS incidente en Au	0,977	$0,\!01\%$
Flujo QMNS incidente en Au sin Li-Cu.	1,000	0
Flujo MNS incidente en Au	0,930	$0{,}01\%$
Flujo MNS cara posterior de Au.	0,929	$0{,}01\%$
Flujo MNS incidente en Au sin Li-Cu.	0,946	$0{,}01\%$
Flujo MNS cara posterior de Au sin Li-Cu.	0,945	$0{,}01\%$

Utilizando el tally F1 en conjunción con el tally E, y tomando intervalos de 1 keV, podemos obtener los espectros en energía de los neutrones incidentes en el Au. Hemos realizado simulaciones para obtener tanto los espectros a la salida del Li, como para obtener asimismo los espectros de los flujos incidentes en el oro, tras la dispersión sufrida por los neutrones al atravesar el soporte de Cu. En la Figuras 4.31 y 4.32 se representan los resultados de estas simulaciones.



Figura 4.31: Distribución en energía del flujo de neutrones de la activación QMNS obtenido con MCNPX.



Figura 4.32: Distribución en energía del flujo de neutrones de la activación MNS obtenido con MCNPX.

4.5.2. Simulación MCNPX de la sala experimental.

Al objeto de descartar la posible influencia de la dispersión de neutrones en las paredes de la sala Tandem en la que se encuentra ubicado el acelerador, y del impacto de la presencia de neutrones térmicos producidos por estas dispersones, se realizaron también simulaciones incluyendo la geometría de la sala (recinto de 22 x 26 m con paredes de hormigón de 1 m de espesor), la cual se muestra en la Figura 4.33. En las simulaciones mediante el tally FT8 se calculó el número de activaciones en la muestra de oro con y sin dispersión en paredes, encontrándose diferencias del 0,1%, inferiores a la incertidumbre de las simulaciones (0,4%). Los valores obtenidos se muestran en la Tabla 4.12.

Tabla 4.12: Comparación del número de activaciones en Au obtenidas en simulación MNNPX con y sin efecto de dispersión de neutrones en las paredes de la sala.

Medida (tally FT8)	Valor	Incer.
Activaciones Au sin dispersión en paredes sala	$4,942 \times 10^{-4}$	0,4%
Activaciones Au con dispersión en paredes sala	$4,948\times10^{-4}$	0,4%



Figura 4.33: Esquema de sala Tandem del CNA simulada en MCNPX. Se indica en la figura la posición del soporte de Cu y muestra de Au.

4.5.3. Corrección por apertura angular del flujo de neutrones sobre muestra plana.

Cuando el flujo experimental de neutrones de una cierta apertura angular incide sobre una muestra plana, la longitud del recorrido del neutrón dentro de la muestra depende de su ángulo de incidencia sobre la superficie de la misma (fig. 4.34). Es necesario por tanto estimar una corrección k_f que tenga en cuenta estos diferentes recorridos y espesores de oro que se presentan al flujo de neutrones, en función de su ángulo de entrada.



Figura 4.34: Esquema indicando el ángulo de incidencia θ de un neutrón respecto a la normal a una muestra plana de Au de un cierto espesor.

Por consideraciones puramente geométricas, para una lámina de espesor d el espesor real atravesado o longitud de camino recorrida por un neutrón dentro de la lámina tiene la siguiente dependencia con el ángulo de emisión (o entrada) θ del neutrón:

$$d(\theta) = d \cdot \frac{1}{\cos \theta} \,. \tag{4.15}$$

Teniendo un flujo de neutrones de una determinada apertura y distribución angular $\phi(\theta)$, para una lámina de espesor *d* podríamos calcular el espesor o distancia media d_m recorrida por los neutrones dentro del oro como

$$d_{\rm m} = \frac{\int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^R \phi(\theta) \cdot \frac{1}{\cos\theta} \cdot r dr}{\int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^R r dr} \cdot d \quad . \tag{4.16}$$

Aplicando la ecuación anterior para la distribución angular de un flujo de neutrones QMNS obtendríamos un valor de $k_f = d_m/d = 1,18$ (es decir, un incremento de espesor efectivo del 18%). Sin embargo, para mayor complicación, el espectro de energía de los neutrones depende del ángulo de emisión, es decir $\phi = \phi(\theta, E)$. Para una fuente puntual de una cierta apertura angular y distribución $\phi = \phi(\theta, E)$, teniendo en cuenta la expresión 4.15, el número total de activaciones para una muestra plana de espesor másico N vendría dado por:

$$A_{real} = \iint \sigma(E) \cdot N \cdot \frac{1}{\cos \theta} \cdot \phi(\theta, E) \ dEd\theta \quad . \tag{4.17}$$

Para ese mismo flujo de neutrones pero sin apertura angular, perpendicular a una muestra de espesor másico N, el número de activaciones producidas en la muestra vendría dado por:

$$A_{ideal} = \iint \sigma(E) \cdot N \cdot \phi(E,\theta) \ dEd\theta \quad . \tag{4.18}$$

Para un flujo de neutrones $\phi(\theta, E)$ emitido desde una fuente puntual (o desde un determinado punto de la fuente), incidente sobre una muestra plana, proponemos entonces la siguiente expresión para el cálculo de corrección por muestra plana, que relaciona el número de activaciones producidas para un flujo de apertura angular y sin ella:

$$k_{f} = \frac{A_{real}}{A_{ideal}} = \frac{\iint \sigma \left(E\right) \cdot \frac{1}{\cos \theta} \cdot \phi \left(\theta, E\right) \, dEd\theta}{\iint \sigma \left(E\right) \cdot \phi \left(\theta, E\right) \, dEd\theta}.$$
(4.19)

Realizando los calculos en la expresión 4.19 con el espectro QMNS generado por el codigo LZ citado en el capítulo anterior y la sección eficaz diferencial estándar del oro σ (E) [74], obtenemos un factor de corrección por muestra plana de $k_f = 1, 26$.

Si realizamos el cálculo con las distribuciones en ángulo-energía reportadas en la medida experimental de [75] en lugar de con el espectro simulado LZ, obtenemos un resultado prácticamente coincidente, $k_f = 1,259$ (frente a 1,263 obtenido con el espectro simulado). En el cálculo con las distribución angular reportada por R&K en [28] se obtendría un valor inferior, de $k_f = 1,23$, sin embargo estos datos poseen una resolución angular muy inferior (de 10 grados). Consideraremos un 1,5 % como posible incertidumbre asociada a la incertidumbre en el espectro, como se tratará también en el siguiente apartado y en la discusión.

Cuando la fuente de neutrones no es puntual, sino extensa como la de nuestros experimentos, deberemos tener esto en cuenta para hallar el factor de corrección total del experimento. Con fuente QMNS, debido a la limitación en 70 grados de la apertura del haz, y de la geometría y dimensiones de las láminas, como se observa en el esquema de la Figura 4.35, el factor k_f es el mismo desde cualquiera de los puntos de emisión de neutrones, y corresponde directamente al factor total k_f del experimento. Para el haz MNS en cambio, el cual tiene una apertura mayor de 90 grados, los factores para cada punto de emisión varían ligeramente dependiendo del ángulo sólido y ángulo máximo cubierto por la muestra.



Figura 4.35: Esquemas de trayectorias de neutrones y distintos ángulos máximos de incidencia para flujos QMNS y MNS.

Si continuamos analizando con detalle la física del experimento, llegamos a la conclusión de que debemos tener en cuenta efectos adicionales a los recogidos en la corrección calculada con la expresión 4.19. En la Figura 4.36 se muestran las trayectorias de neutrones en negro que corresponden a los efectos de pérdida de flujo por dispersión y corrección por muestra plana que se han tenido en cuenta en las correcciones k_s y k_f . Sin embargo, las trayectorias en rojo muestran ejemplos de posible dispersión de neutrones dentro del cobre antes de alcanzar la muestra de oro, o incluso dentro del propio oro. Estas dispersiones pueden incrementar sus recorridos dentro de la muestra de oro, es decir, incrementar la corrección o efecto por muestra plana.

Para estimar una corrección por muestra plana que incluya estos efectos de dispersión (y que llamaremos k_n) podemos recurrir a la simulación Monte Carlo con MCNPX, ya que el tally FT8 de MCNPX nos permite obtener el número de capturas dentro de una celda de nuestra geometría simulada. La simulación utiliza para ello la sección eficaz ENDF del ¹⁹⁷Au que se encuentra incluida en las librerías de MCNPX, en concreto para la versión de MCNPX utilizada y para el ¹⁹⁷Au, la sección eficaz de la ENDF/B-VII.0 (2007). La corrección k_n la obtendremos realizando y comparando dos simulaciones: una primera de un experimento real completo, correspondiente a la figura 4.36, y una segunda de un experimento idealizado, como el que muestra la Figura 4.37, con el mismo flujo de neutrones pero sin apertura angular, sin dispersión en Li ni soporte de Cu, y sobre una muestra de Au suficientemente delgada como para no ser relevante la dispersión dentro de la propia muestra.



Figura 4.36: Esquema de posibles dispersiones de neutrones en el experimento.



Figura 4.37: Esquema de experimento idealizado de activación: fuente puntual de neutrones y sin dispersión en materiales ni efecto de muestra plana.

La corrección se obtendría del número de activaciones A de ambas simulaciones como:

$$k_n = \frac{A_{\text{exp_ideal}} \cdot N_{Au_real}}{A_{\text{exp_real}} \cdot N_{Au_delgada}} .$$
(4.20)

El espesor de oro $N_{Au_delgada}$ para la simulación del experimento idealizado se reducirá a 10 µm para minimizar el efecto de dispersión, como se justificará en el apartado siguiente. Los resultados de las simulaciones y corrección k_n se muestran en la Tabla 4.13. En ella se indican las incertidumbres asociadas a la estadística de la simulación (0,6%). Añadiendo una estimaciones de incertidumbres del 1,5%
debido a posibles diferencias en el espectro experimental de neutrones considerado y 0.5% debido a la sección eficaz, consideramos para la incertidumbre total un valor del 1.7%.

Tabla 4.13: Número de activaciones y corrección por muestra plana y dispersión de neutrones k_n obtenidas mediante simulaciones MCNPX de experimentos reales e idealizados. La incertidumbre indicada corresponde únicamente a la estadística de MCNPX.

	QMNS	Incert.	MNS	Incert.
A_{\exp_real}	$4,94 \times 10^{-4}$	0,2%	$5,39 \times 10^{-4}$	$0,\!2\%$
$A_{\rm exp_ideal}$	$3,85 imes 10^{-5}$	$0,\!4\%$	$3,08 imes 10^{-5}$	$0,\!4\%$
k_n	1,28	$0,\!6\%$	1,75	$0,\!6\%$

4.5.4. Dispersión de neutrones dentro de la muestra de oro.

Estimamos que resulta importante estudiar el efecto de la dispersión de neutrones dentro de la propia lámina de oro, al objeto de determinar qué espesor de muestra puede tener realmente un efecto significativo, estudio que no hemos encontrado en publicaciones de otras activaciones. Para ello hemos realizado simulaciones idealizadas MCNPX como la descrita en el apartado anterior (sin dispersión en Li ni Cu y con un flujo de neutrones perpendicular a la muestra) para distintos espesores de oro. A partir del número de activaciones obtenido en las simulaciones (el cual está normalizada al flujo) y normalizando por el espesor de la lámina, podemos apreciar el efecto del espesor de la muestra de oro. Los resultados se muestran en la Tabla 4.14.

Tabla 4.14: Número de activaciones obtenidas a partir de simulaciones MCNPX con distintos espesores de muestras de oro, en configuración del esquema de la fig. 4.37 (espectro QMNS sin apertura angular y sin dispersión en Li ni Cu).

Espesor	A_{Au}	Incert.
$10 \ \mu m$	$3,85 \times 10^{-5}$	$0,\!4\%$
$50 \ \mu m$	$1,93 imes 10^{-4}$	$0,\!2\%$
$100 \ \mu m$	$3,88 \times 10^{-4}$	$0{,}1\%$

Podemos observar que para un espesor de 100 μ m se multiplican por 10,08 el número de activaciones respecto a una lámina de 10 μ m. Es decir existe alrededor de un 0,8 % (entre un 0,3 y 1,3 % teniendo en cuenta las incertidumbres de la simulación) de activación adicional debida a dispersión de neutrones dentro del oro.

4.5.5. Corrección por espectro en energía del flujo de neutrones: k_{macs} .

La expresión 2.4 nos permite calcular de manera analítica el factor de corrección por espectro k_{macs} entre medidas realizadas con flujos experimentales de neutrones QMNS o MNS y flujos maxwellianos ideales, necesario para obtener la sección eficaz estelar. Llamando $\phi_{MAXn}(E)$ a la distribución maxwelliana ideal y $\phi_{EXPn}(E)$ a la distribución experimental (QMNS o MNS) normalizadas al área, escribimos k_{macs} como:

$$k_{macs} = \frac{\int \sigma\left(E\right) \cdot \phi_{MAXn}\left(E\right) \, dE}{\int \sigma\left(E\right) \cdot \phi_{EXPn}\left(E\right) \, dE} \quad . \tag{4.21}$$

Para el cálculo de esta expresión tomaremos la evaluación Estándar de la sección eficaz diferencial del oro $\sigma(E)$. En la tabla 4.15 se indican los valores de corrección obtenidos en el cálculo para espectros QMNS (experimental RK) y MNS (simulado LZ).

Respecto a la incertidumbre de esta corrección, haremos las siguientes consideraciones: dado que la sección eficaz diferencial aparece en numerador y denominador de 4.21, como ya se ha mencionado la corrección respecto a la sección eficaz depende solo de su forma o tendencia con la energía, no de su valor absoluto. La importancia del conocimiento o estimación de esta tendencia la analizaremos con más detalle en el capítulo de discusión. Para el caso del oro, esta tendencia es bien conocida en la mayor parte de su rango de energía de interés para la MACS, como muestra la figura 4.38. Las incertidumbres recomendadas en [74] se muestran en la fig. 4.39. Apreciamos en ella que para energías superiores a 2,5 KeV estas incertidumbres se encuentran compredidas entre el 1 y 2%.

Discretizando las integrales de (4.21) en N intervalos de energía, podemos escribir k_{macs} como una función de N variables σ_i tal que:

$$k_{macs} = \frac{\sum_{i=1}^{N} \sigma_i \cdot \phi_{MAXn} \left(i \right)}{\sum_{i=1}^{N} \sigma_i \cdot \phi_{EXPn} \left(i \right)} = f \left(\sigma_1, \dots, \sigma_N \right) , \qquad (4.22)$$

donde las variables σ_i tienen las incertidumbres o errores relativos $\Delta \sigma_i / \sigma_i$ mostradas en la fig. 4.35. Una estimación del error relativo (en primera aproximación sin tener en cuenta correlaciones [76]) es:

$$\Delta K_{macs} = \sqrt{\sum_{i=1}^{N} \left(\frac{\partial K_{macs}}{\partial \sigma_i}\right)^2 \cdot \Delta \sigma_i} \quad , \tag{4.23}$$



Figura 4.38: Evaluación Estándar y medidas experimentales de la sección efica
z $\sigma(E)$ de $^{197}Au(n,\gamma)$ [25].



Figura 4.39: Incertidumbres recomendadas en [74] para la sección eficaz diferencial $\sigma(E)$ de ¹⁹⁷Au(n, γ).

y derivando el cociente (4.22) obtenemos

$$\Delta K_{macs} = \sqrt{\sum_{i=1}^{N} \left(\frac{\phi_{MAXn}\left(i\right) \cdot \left(\sum_{i=1}^{N} \sigma_{i} \cdot \phi_{EXPn}\left(i\right)\right) - \left(\sum_{i=1}^{N} \sigma_{i} \cdot \phi_{MAXn}\left(i\right)\right) \cdot \phi_{EXPn}\left(i\right)}{\left(\sum_{i=1}^{N} \sigma_{i} \cdot \phi_{EXPn}\left(i\right)\right)^{2}} \right)^{2} \Delta \sigma_{i}}$$

$$(4.24)$$

Evaluando la expresión 4.24 para $E \geq 2,5$ keV, las incertidumbres relativas $\Delta k_{macs}/k_{macs}$ resultan bajas, como era de esperar, del 0,2% y 0,3% para espectro QMNS a kT=25 y kT=30 keV, y de 0,2% para MNS a kT=30 keV. Como se comentará en el capítulo de discusión, resulta relevante para el cálculo del valor de la corrección considerar energías por debajo de 2,5 keV, al menos hasta los 0,5 keV. La evaluación estándar indica una incertidumbre del 18% para 2,5 keV, y no indica valores para energías inferiores (salvo en el térmico). No obstante, de cara a la corrección, las incertidumbres relativas anteriores de $\Delta k_{macs}/k_{macs}$ sólo aumentarían al 0,4%, 0,5% y 0,4% respectivamente para un incertidumbre de la sección eficaz entre 0,5-2,5 keV del 30%, y a 0,5%, 0,6% y 0,5% para una incertidumbre del 50%.

Ahora bien, otra posible incertidumbre que debemos considerar para esta corrección, y no tenida en cuenta en la medida original de [28], es la relativa a nuestro espectro experimental de neutrones. Como se indicó en el capítulo de Introducción y se observa en las figuras 2.15 y 2.16, existe un buen acuerdo entre el espectro simulado LZ y medidas experimentales del espectro como la de Lederer [53] o Ratynski & Käppeler [28]. No obstante, en el resultado del cálculo de la integral $\int \sigma(E) \cdot \phi_{EXPn}(E) dE$ obtenemos ligeras diferencias dependiendo del espectro experimental utilizado, y que debemos considerar: obtenemos 633 mb con el espectro medido por RK [28], 636 mb con el espectro medido por Lederer [53], 639 mb con el espectro simulado con el código LZ, y 628 mb con un espectro simulado por el código SimLiT [77]. Esto supone variaciones en torno al 1% alrededor del valor obtenido con el espectro de R&K. A tener en cuenta asimismo también son las posibles modificaciones en el espectro asociadas a variaciones en la energía de los protones en la reacción $^{7}Li(p,n)$, por ejemplo por errores en la calibración del terminal del acelerador. En la fig 4.40 se muestra una comparación de espectros para energía de protón de $E_p = 1910$ y 1914 keV. Calculando la corrección para esos espectros variaría en torno a un 0,3-0,5 % respecto a la obtenida para QMNS de $E_p = 1912$ keV. Teniendo en cuenta estas consideraciones, asignaremos una incertidumbre total del 1,5% al valor de corrección k_{macs} calculado.



Tabla 4.15: Correcciones k_{macs} por diferencia con espectro estelar maxwelliano ideal, para kT=25 y 30 keV.

Figura 4.40: Comparación de espectros QMNS simulados para energías de haz $E_p{=}1910,\,1912$ y 1914 keV.

4.6. Resumen de correcciones y valores de sección eficaz estelar obtenidos.

Tabla 4.16: Resumen de factores e incertidumbres para el cálculo de la sección eficaz estelar del oro a $\rm kT{=}30~\rm keV$ y valores obtenidos.

Factor	QMNS	Incer. (%)	MNS	Incer. (%)
Intensidad gamma $I_{\gamma Be}$	0,1045	0,04	0,1045	0,04
Intensidad gamma $I_{\gamma Au}$	0,9554	$0,\!07$	0,9554	$0,\!07$
Mass thickness (at/b) $N_{\rm Au}$	$5,67 imes10^{-4}$	$1,\!5$	$6,37 \times 10^{-4}$	$1,\!5$
Cuentas gammas $C_{\rm Be}$	331.900	$0,\!3$	545.800	$0,\!3$
Cuentas gammas $C_{\rm Au}$	32.950	0,7	64.100	0,7
Factor desintegración $f_{\rm dBe}$	0,00352	0,1	0,00706	0,1
Factor desintegración $f_{\rm dAu}$	0,06545	0,01	0,12818	0,01
Eficiencia relativa				
detección $\gamma \epsilon_{\gamma Be} / \epsilon_{\gamma Au}$	$0,\!80$	2	$0,\!80$	2
Corrección muestra plana y				
dispersión de neutrones k_n	$1,\!28$	1,7	1,75	1,7
Corr. espectro k_{MACS25}	0,96	1,5	-	-
Corr. espectro $k_{MACS_{30}}$	0,86	$1,\!5$	1,01	$1,\!5$
Sección Eficaz Estelar				
(MACS) at $kT=30 \text{ keV}$	$621{\pm}22$	$3,\!5$	$612{\pm}21$	3,5

Capítulo 5

Discusión y conclusiones.

Retomando el objetivo expuesto al principio de esta tesis, recordemos que resumidamente podíamos distinguir en él dos partes relacionadas: de un lado, la aportación de una nueva medida experimental de la sección eficaz estelar de la reacción ¹⁹⁷Au(n,g), para contribuir al debate recientemente abierto sobre el valor tomado como referencia para dicha sección eficaz estelar. De otro, el análisis del método de activación tanto en su técnica tradicional con flujos de espectro cuasi-maxwelliano (QMNS) como incorporando la mejora para la producción de flujos de neutrones de un espectro en energía más próximo al maxwelliano (MNS). En los siguientes puntos discutiremos nuestros resultados respecto a ambas cuestiones.

5.1. La sección eficaz estelar del oro.

5.1.1. Resultados obtenidos y comparación con medidas anteriores.

Los resultados de los análisis de datos de los experimentos de activación llevados a cabo en el CNA para la presente tesis han arrojado un valor para la sección eficaz estelar del oro a kT=30 keV de 621 ± 22 mb en la activación QMNS, y de 612 ± 21 mb para la activación MNS. En la Figura 5.1 se muestra una comparación de estos resultados con medidas anteriores [28] [32] [78] [79] y con la evaluación ENDF/B VII [26].

Como podemos apreciar, los dos valores obtenidos en este trabajo se encuentran en buen acuerdo con los obtenidos en los más recientes experimentos de tiempo de vuelo (611 mb [32] y 613 mb [79]) y la evaluación ENDF (614 mb [26], así como con un experimento de activación anterior ([78] 634 mb).

Comparando los experimentos de activación del presente trabajo con el experimento de activación llevado a cabo en 1988 por Ratynski & Käppeler (RK) [28], podemos hacer comentarios sobre algunas de las diferencias en el método y análisis de datos y cálculo de correcciones realizados. La más significativa y característica di-



Figura 5.1: Comparación de resultados para la sección eficaz estelar del oro a kT = 30 keV [78] [28] [26] [32] [79].

ferencia en el método experimental es la utilización por parte de RK de una muestra semiesférica de oro, tal como muestra la Figura 5.2, reproducida de la publicación original.

RK utilizan esta configuración al objeto de evitar el cálculo de una corrección por muestra plana. Esta indudable ventaja, conlleva a cambio la dificultad técnica de conseguir esa forma esférica manteniendo constante el espesor de la muestra, e implica asimismo para poder eliminar la corrección por muestra plana considerar la fuente de neutrones como puntual. A este respecto, RK indican en el texto que en activaciones realizadas con diferentes láminas de Li de 3 y 6 mm no se evidenciaron diferencias significativas, y consideró la fuente de neutrones como puntual a efectos prácticos.

Respecto al análisis de datos, encontramos las principales diferencias en la estimación de correcciones por dispersión de neutrones y por la diferencia del espectro experimental neutrones frente al maxwelliano. En el experimento de RK la corrección por dispersión de neutrones se valoró experimentalmente colocando cilindros de oro alrededor de la muestra activada (como muestra también la figura) y midiendo después la actividad de estos cilindros. RK estimaron mediante esta medida una pérdida por dispersión del 1,8 % en el flujo de neutrones. Por nuestra parte, en las simulaciones para nuestro soporte de 0.5mm, las pérdidas obtenidas eran del 2,3 %, y realizando una simulación Monte Carlo para estimar la pérdida de neutrones por dispersión para un soporte de un espesor de 1 mm como el utilizado en el experimento de RK, hemos obtenido que la pérdida del flujo de neutrones que tuvieran



Figura 5.2: Esquema del montaje experimental con muestra de oro semiesférica utilizado por RK en su medida de activación [28]

que atravesar este espesor resultaría en ese caso ser del 5 %, es decir, más de un 3 % adicional respecto a la estimada experimentalmente por RK.

En el cálculo de la corrección por espectro no maxwelliano, encontramos también una diferencia en el valor calculado para la misma entre nuestro experimento y el de RK. Ratynski & Käppeler calculan la corrección de espectro QMNS para la MACS a kT=25 keV realizando la integración del espectro QMNS entre 3 keV e infinito con la sección eficaz diferencial obtenida experimentalmente por Macklin [80], obteniendo la siguiente corrección:

$$K_{macs} = \frac{\int_{3}^{\infty} \sigma(E) \cdot Ee^{-E/25} dE / \int_{3}^{\infty} E \cdot e^{-E/25} dE}{\int_{3}^{\infty} \sigma(E) \cdot \phi_{QMNS}(E) dE / \int_{3}^{\infty} \phi_{QMNS}(E) dE} = \frac{557 \, mb}{568 \, mb} = 0,98$$

Sin embargo, este cálculo como vemos no tiene en cuenta la región de energía inferior a los 3 keV, a pesar de que R & K sí tienen datos en el espectro a 0,5, 1,5 y 2,5 keV. Si bien en esa región la cantidad de neutrones disminuye rápidamente, la sección eficaz tiene mayor peso. Como se ha indicado en el análisis de datos, realizando por nuestra parte un cálculo del factor de corrección de espectro QMNS para MACS a kT=25 keV incluyendo la región inferior a 3 keV (valores a 0,5, 1,5 y 2,5 keV), obtuvimos un resultado de $K_{macs} = 0,96$, en buen acuerdo con otros estudios recientes [30]. Aparte de posibles diferencias menores por la sección eficaz empleada en el cálculo, esta mayor corrección respecto a la calculada por RK es debido fundamentalmente a que las diferencias entre espectro experimental y maxwelliano son mayores en estas regiones de baja energía, como se mostrará posteriormente.

Otras diferencias menores las encontramos en los valores de intensidades gamma y vidas medias utilizados para el cálculo, para los que en las medidas de activación de la presente tesis se ha procurado utilizar lógicamente referencias más actualizadas. Independientemente de ello, hemos observado que en el texto de la publicación de RK se indica (por dos veces) para el ¹⁹⁸Au una vida media de 2,62 días. Sin embargo, consultando la referencia que cita la propia publicación como utilizada [81], esta indicaba un valor de 2,69 días, igual a la de las referencias actuales utilizadas en la presente tesis. Desconocemos si se trató de un error en la redacción, y cuál fue el valor utilizado realmente en los cálculos. Realizando por comprobación por nuestra parte cálculos con ambos valores, la sección eficaz obtenida utilizando una vida media de 2,62 días resulta 10 mb inferior a la que se obtiene utilizando 2,69 días.

5.1.2. Nuevo valor de referencia en la sección eficaz estelar del oro.

Una primera discusión sobre el valor de referencia de la sección eficaz estelar del oro fue presentada en el trabajo fin de Master de Física Nuclear del autor de esta tesis titulado "Hacia un estándar en Astrofísica Nuclear: medida de la sección eficaz estelar de la reacción $^{197}{\rm Au}({\rm n},\gamma)"$ [82]. Resultados de un análisis de datos más profundo (con ayuda de simulaciones Monte Carlo) del experimento de activación con neutrones de espectro cuasi-maxwelliano (QMNS) realizado en el CNA fueron presentados en el 13º congreso internacional "Nuclei in the Cosmos XIII" (NIC XIII) en Debrecen, Hungría, en julio de 2014 [83], y publicados en los Proceedings of Science de dicho congreso bajo el título "Measurement of the $^{197}Au(n,\gamma)$ stellar cross section at kT=30 by activation" [84]. Posteriormente, resultados preliminares de la segunda activación realizada con el nuevo método de producción de espectros maxwellianos (MNS) fueron asimismo presentados en el congreso "Nuclear Physics in Astrophysics VII" en York, UK, en mayo de 2015 [85], y se encuentra aceptada su publicación en el Institute of Physics (IOP) Conference Series [86]. Ambos congresos, de carácter bianual, suponen dos de los más importantes puntos de reunión a nivel internacional dentro de la Astrofísica Nuclear teórica y experimental.

Uno de los temas tratados y discutidos activamente en las sesiones del "Nuclei in the Cosmos XIII" fue la cuestión del valor de referencia aceptado para la sección eficaz estelar del oro, y su posible actualización. Tras el congreso, en febrero de 2015 se publicó una nueva revisión de la base de datos online KADONIS, "The new KADONIS v1.0 and its influence on the weak s-process nucleosynthesis" [87], en la que quedó actualizado el valor de referencia para la MACS del oro de 582 mb a 612,8 mb (Figura 5.3). Esta nueva revisión cita como referencia y apoyo para este cambio a las evaluaciones ENDF/B VII.1 [88] JEFF-3.2 [89] JENDL-4.0 [90], a las últimas medidas experimentales realizadas en n_TOF [32] y IRRM [79], y a la medida de activación QMNS realizada en el CNA para la presente tesis y publicada en [84].

Con posterioridad a esta actualización, varias medidas recientes de secciones eficaces estelares relativas al Au, como las realizadas por M. Heil y A. Wallner en Karlsruhe y Viena y publicadas en el Physical Review C en 2016 [41][91] y 2017 [22], utilizan ya esta nueva referencia de 612,8 mb para el oro, y citan también la medida de activación [84] realizada por el grupo de Sevilla en el CNA para esta tesis.



Figura 5.3: Vista de la la web de la versión 1.0 de la base de datos Kadonis de Karsruhe, con el valor actualizado de la sección eficaz estelar del oro.

5.2. Activaciones con neutrones de espectro cuasimaxelliano (QMNS) y maxwelliano (MNS).

5.2.1. Corrección por espectro de energía del flujo de neutrones.

En el método de activación, la diferencia del flujo de neutrones de laboratorio con un flujo de neutrones estelar ideal (espectro maxwelliano) se traduce en la necesidad de incorporar el factor de corrección que hemos llamado corrección por espectro de energía, tal como y como se ha venido describiendo en esta memoria. El cálculo analítico de esta corrección por espectro viene dado por la expresión 2.4. En ella vemos que para su cálculo no sólo es necesario tener en cuenta la diferencia entre la forma del espectro experimental de los neutrones (QMNS) frente a un maxwelliano ideal, sino que también interviene la sección eficaz diferencial $\sigma(E)$ del isótopo implicado. Por lo tanto, el valor de esta corrección es en principio distinto para cada isótopo que se quiera medir. Ahora bien, a pesar de esta implicación de la sección eficaz $\sigma(E)$ en el cálculo, observamos sin embargo que dicha sección eficaz $\sigma(E)$ aparece en numerador y denominador de la expresión 2.4. Esto conlleva que no es realmente necesario el conocimiento de su valor absoluto, sino sólo su forma o dependencia con la energía. En tanto esta forma o dependencia sea bien conocida, podemos permitir diferencias en su valor absoluto o en un factor de normalización sin que esto afecte al cálculo de la corrección.

Para la estimación experimental de la dependencia con la energía de la sección eficaz se puede recurrir al método del tiempo de vuelo, cuando este es viable. El método de tiempo de vuelo (TOF) permite obtener esta sección diferencial para un determinado rango de energía, incluyendo resonancias y estructuras allí donde es posible su resolución. Además, cuando es posible la utilización de ambos métodos, de tiempo de vuelo y de activación, sobre un mismo núcleo, estos métodos se complementan o refuerzan mutuamente en el siguiente sentido: en las medidas de tiempo de vuelo es posible que se cometan (o no se puedan evitar) errores sistemáticos, por ejemplo en forma de un cierto factor. En este punto es donde medidas integrales como las de activación cobran especial relevancia, ya que su corrección por espectro no se ve afectada por estos errores sistemáticos, y si la medida posee bajas incertidumbre puede utilizarse para renormalizar medidas diferenciales. Es más, si se dispone de datos diferenciales, una medida de integral de activación con neutrones de *cualquier* espectro, siempre y cuando este espectro fuera bien conocido, permitiría en principio la comprobación, o renormalización en su caso de los datos diferenciales en ese rango de energía.

Una combinación de medidas diferenciales e integrales fue de hecho empleada por Ratynski & Käppeler para su medida de la sección eficaz estelar del oro. En ella, R&K utilizaron la forma de la sección eficaz diferencial obtenida por Macklin [80] para su cálculo de la corrección por espectro, y a partir de su resultado indicaron un factor de renormalización para esos datos diferenciales. R&K obtuvieron un valor de 648 mb para la MACS a kT=25 keV, frente a 655 mb que se obtienen calculando la MACS25 analíticamente [92][93] a partir de los datos diferenciales de Macklin, e indicaron por tanto que los datos diferenciales de Macklin debían ser renormalizados con un factor igual a 648/655 = 0,989.

Ahora bien, las medidas diferenciales de sección eficaz no siempre son posibles de realizar, o la incertidumbre puede ser elevada, para la totalidad o parte del rango de energía. En ese caso, para calcular nuestro factor de corrección por espectro deberemos estimar de un modo teórico la dependencia de la sección eficaz con la energía. Para esta estimación teórica de la forma o tendencia de la sección eficaz diferencial se pueden utilizar modelos estadísticos, como el de Hauser-Feshbach [2], en el que están basados códigos comúnmente utilizados como el NON-SMOKER [94]. Analíticamente, una primera aproximación con onda s para la reacción de captura del neutrón incidente a bajas energías (exceptuando resonancias) nos indica para la sección eficaz diferencial una dependencia con la velocidad del neutrón incidente del tipo $\sigma(v) \sim 1/v$ (o en términos de energía $\sigma(E) \sim 1/\sqrt{E}$). Sin embargo, no siempre la sección eficaz no-resonante sigue esta sencilla ley, por varias posibles causas, como pueden ser [2]: (i) las energías dejan de ser bajas, (ii) un nuevo canal de reacción esi accesible, o (iii) ondas parciales superiores pueden contribuir a la sección eficaz.

En ese caso, la dependencia de la sección eficaz a energías en rango astrofísico puede aproximarse de modo más genérico con la relación $\sigma(E)=A\cdot E^{-a}$, donde el exponente *a* puede tomar otros valores distintos de 0,5 dependiendo del núcleo y energías. El cálculo de la corrección de espectro tomando esta aproximación teórica vendría entonces dado por la expresión siguiente:



Figura 5.4: Secciones eficaces diferenciales de ${}^{159}Tb(n,\gamma)$ (verde), ${}^{181}Ta(n,\gamma)$ (azul) y ${}^{197}Au(n,\gamma)$ (oro) (de [26]), y ajustes exponenciales con $\sigma(E) = A \cdot E^{-a}$

$$K_{macs} = \frac{\int_0^\infty E^{-a} \cdot Ee^{-E/kT} dE / \int_0^\infty E \cdot e^{-E/kT} dE}{\int_0^\infty E^{-a} \cdot \phi_{QMNS}(E) dE / \int_0^\infty \phi_{QMNS}(E) dE}.$$
(5.1)

En general, para la mayoría de los isótopos sus tendencias se suelen corresponder con valores del exponente a que variarán entre 0,5 y 0,8 [28]. La Figura 5.4 muestra tres ejemplos de secciones eficaces diferenciales suavizadas para tres isótopos: ¹⁹⁷Au, ¹⁵⁹Tb y ¹⁸¹Ta. Se incluyen ajustes de las mismas por mínimos cuadrados a la función $\sigma(E) = AE^{-a}$. Como podemos observar, resultan valores del exponente de entre a= 0,58 y a=0,71. Observamos también que la tendencia o exponentes pueden variar dependiendo de la región de energía. Si para la forma o tendencia de la sección eficaz diferencial experimental del isótopo objeto de estudio debemos recurrir a una estimación teórica, el error que cometamos a la hora de evaluar o aproximar teóricamente su comportamiento con la energía (resonancias y posibles distintos valores del exponente a), se traducirá lógicamente en un error en el cálculo del factor de corrección de espectro, y consiguientemente en un error en la estimación de la sección eficaz estelar.

Podemos estudiar cómo errores en la estimación de esta tendencia o forma afectarían a la corrección por espectro. Para ello hemos realizando el cálculo de dicha corrección tomando secciones eficaces modeladas por $\sigma(E) = AE^{-a}$ con distintos valores del exponente *a* entre 0,5 y 0,8. Los resultados obtenidos, utilizando neutrones de espectro QMNS, se muestran en la Tabla 5.1.

Tabla 5.1: Corrección k_{macs} para QMNS y distintos valores del exponente a en $\sigma(E) = E^{-a}$.

a	0,5	$0,\!6$	0,7	0,8
kmacs25 QMNS	0,96	0,94	$0,\!93$	0,91
kmacs30 QMNS	$0,\!87$	$0,\!84$	$0,\!82$	0,79

Ratynski y Käppeler citan en el texto de [28] que la posible variación de esta corrección por espectro en medidas relativas al oro teniendo en cuenta las posibles diferencias en las formas de las sección eficaces de los distintos isótopos es pequeña y puede ser ignorada en la mayoría de los casos. Del resultado de este trabajo estimamos en cambio que esas diferencias debidas a las variaciones en los exponentes (diferentes formas de secciones eficaces) pueden ser relevantes. Realizando los cálculos tomando un espectro simulado QMNS hasta una energía mínima de 0,1 keV, las diferencias pueden ser significativas como se observa en la tabla. Por ejemplo para cambios entre exponente de a=0,5 y a=0,8, estos resultan en variaciones en la corrección del 5% para kT=25 keV y del 9% al extrapolar a kT=30 keV.

Similarmente a lo realizado para el espectro QMNS, podemos calcular cuál sería la corrección necesaria para el neutrones de espectro MNS, con secciones eficaces modeladas por $\sigma(E) = AE^{-a}$ y valores del exponente *a* entre 0,5 y 0,8. Los resultados se muestran en la Tabla 5.2.

Tabla 5.2: Corrección k_{macs} para MNS y distintos valores del exponente a en $\sigma(E) = E^{-a}$.

a	0,5	$0,\!6$	0,7	0,8
kmacs30 MNS	1,02	1,02	1,01	$1,\!00$

Podemos apreciar en la tabla que en este caso la utilización de neutrones de espectro MNS hace que el valor obtenido para la corrección por espectro a kT=30 keV sea más próxima a 1 y menos sensible a errores en la estimación de la tendencia de la sección eficaz que la utilización de neutrones de espectro QMNS (Tabla 5.1). Con MNS resulta la variación de la corrección con distintos exponentes de 0,5 y 0,8 resulta del 2%, para kT=30 keV.

Es importante como vemos la posibilidad en el método MNS de mediante combinaciones de energía de haz y degradador producir flujos con espectros que ajustan a diferentes kT dentro de un rango de kT entre 5 y 55 keV, en concreto en nuestro caso ajustado cerca de los 30 keV. El flujo QMNS sólo posee en cambio un ajuste óptimo para 25 keV, y necesita por tanto siempre la extrapolación si se desea la MACS a otros kT distintos (como kT=30), con el mayor error que ello implica.

No obstante, apreciamos también que en el método MNS, aunque sensiblemente menor, sigue existiendo en esta corrección incertidumbre asociada a la forma de la sección eficaz. Su causa podemos encontrarla fundamentalmente en la región de baja energía del espectro. En primera aproximación, la similitud del espectro MNS con una maxwelliana ideal resulta excelente: las simulaciones presentan coeficientes de correlación con maxwellianas ideales del orden de $R^2 = 0.995$. A simple vista podemos apreciar que la distribución MNS tiene una mayor similitud con la una maxwelliana que la distribución QMNS, de forma evidente en la incorporación de una "cola" de alta energía que llega hasta los 400 keV, no presente en el espectro QMNS, el cual se trunca en los 110 keV. Sin embargo, analizando la región de baja energía, por debajo de los 8 keV, observamos que sigue existiendo una cierta diferencia entre un espectro ideal maxwelliano y un espectro experimental, en ambos espectros QMNS y MNS. Debido fundamentalmente a esta diferencia en la región de baja energía, que resulta importante por la ponderación que introduce la sección eficaz, sigue siendo necesaria una corrección por espectro también para MNS. En las Figuras 5.5 a 5.9 podemos comparar la distribuciones en energía de flujos experimentales QMNS v MNS comparadas con maxwellianas de kT = 25, 30 v 33 keV, v también con ponderaciones por el factor $E^{-0.5}$.



Figura 5.5: Comparación de espectros en energía de flujos QMNS y maxwelliano de kT=25 keV, normalizados a la fluencia total (área).



Figura 5.6: Comparación de espectros en energía de flujos QMNS y maxwelliano de kT=25 keV, normalizados a la fluencia (área), y multiplicados por el factor $E^{-0.5}$.



Figura 5.7: Comparación de espectros en energía de flujos MNS y maxwelliano de kT=30 keV, normalizados a la fluencia total (área).



Figura 5.8: Comparación de espectros en energía de flujos MNS y maxwelliano de kT=33 keV, normalizados a la fluencia total (área).



Figura 5.9: Comparación de espectros en energía de flujos MNS y maxwelliano de kT=33 keV, normalizados a la fluencia total (área) y multiplicados por el factor $E^{-0.5}$.

Un aspecto experimental a considerar también en los espectros utilizados QMNS y MNS es que un posible error en la calibración del acelerador utilizado para la reacción (p,n) podría provocar una desviación de la energía de protón y por tanto del espectro de neutrones real experimental utilizado frente al teórico o deseado. En este sentido, el método de producción de neutrones MNS resulta más robusto que el QMNS, puesto que tal como se describe en [49], el espectro gaussiano de energía del haz de protones producido tras atravesar los protones la lámina degradadora es mucho menos sensible a desviaciones de la calibración del acelerador, no siendo significativo por debajo de los 10 keV de desviación en la energía de protón.

Finalmente, es también necesario considerar que un conocimiento preciso de la forma real del espectro de neutrones con que estamos irradiando la muestra es igualmente necesario para el cálculo de nuestra corrección, como ya indicamos en el análisis de datos. En principio, la reacción ⁷Li(p,n) y su cinemática ha sido bien estudiada, y el espectro en energía de los neutrones producidos es conocido para distintas energías de protón. Existen códigos como el LZ utilizado en este trabajo u otros [77][95] con el que se pueden simular y reproducir las formas de los espectros QMNS y MNS experimentales utilizados. Asimismo, el espectro experimental QMNS ha sido medido experimentalmente repetidas veces [28][53]. No obstante, como ya hemos comentado en la sección de análisis de datos, las diferencias entre los distintos espectros simulados y medidas experimentales disponibles pueden suponer unas variaciones en la corrección del 1-2%. Considerando estas diferencias, si bien no resultan de un gran peso, siguen siendo deseables nuevas medidas y simulaciones, especialmente para la zona de baja energía del espectro de los neutrones producidos, en la que las medidas experimentales resultan más difíciles e imprecisas normalmente debido a la baja estadística en esa región. En este sentido, se siguen haciendo esfuerzos, como en la reciente medida publicada en [96]. Para el espectro MNS, el cual carecía de medidas experimentales, se han realizado ya las primeras en IRMM, estando en fase de análisis los datos obtenidos, y está prevista asimismo la realización de una medida de este tipo en el CNA en Sevilla.

5.2.2. Corrección por muestra plana.

La corrección por muestra plana k_f (y la corrección k_n) introducida tiene en cuenta el hecho de que los neutrones que alcanzan la muestra debido a su diferentes ángulos de incidencia y dispersión recorren diferentes espesores o distancias dentro de la muestra. Ahora bien, al igual que ocurre con la corrección por espectro, para el cálculo de la corrección por muestra plana k_f es necesario un conocimiento previo de la forma o tendencia de la sección eficaz, debido a la distribución en ángulo y energía de la reacción Li(p,n), tal como se explicó en la sección 4.5. El valor de la corrección por muestra plana es por tanto distinto para cada isótopo. De manera similar a como hicimos para la corrección por espectro, podemos estimar cómo varía el valor de esta corrección por muestra plana para espectro QMNS modelando la sección eficaz por $\sigma(E) = AE^{-a}$ y variando el exponente *a* entre 0,5 y 0,8. Los resultados se muestran en la Tabla 5.3, y en ella apreciamos que puede haber una variación en el valor de esta corrección de en torno al 2,5 % dependiendo de la tendencia de la sección eficaz.

Con la utilización de flujos de neutrones de espectro MNS la corrección k_f tiene

Tabla 5.3: Correcciones de muestra plana k_f para neutrones de espectro QMNS y distintos valores del exponente a $\sigma(E) = E^{-a}$.

а	0,5	0,6	0,7	$0,\!8$
kf QMNS	$1,\!25$	1,26	$1,\!27$	1,28

un valor más alto, ya que en este caso el flujo de neutrones tiene una apertura angular superior a los 90 grados. En la Tabla 5.4 se recogen los resultados del cálculo de la corrección así como de su variación para distintos exponentes de sección eficaz $\sigma(E) = AE^{-a}$, para una fuente puntual MNS y una muestra que recibe neutrones con ángulos de incidencia de hasta 88 grados. Apreciamos que la variación o dependencia con la tendencia de la sección eficaz utilizando flujos de neutrones MNS es sensiblemente mayor que en el caso de QMNS, pudiendo variar el valor de la corrección para MNS en torno al 7 %.

Tabla 5.4: Correcciones de muestra plana para neutrones de fuente puntual, hasta 88 grados de ángulo de incidencia y espectro MNS y distintos valores del exponente a $\sigma(E) = E^{-a}$.

Cuando la medida de sección eficaz es absoluta, como el caso de esta tesis, sin ser relativa a otra muestra o sección eficaz de referencia, el cálculo de la corrección por muestra plana resulta imprescindible, salvo que se intente evitar este efecto por medio de geometrías experimentales con muestras semiesféricas como la utilizada por [28], con las dificultades técnicas y posibles limitaciones que ello conlleva y hemos comentado. Esta corrección experimental puede calcularse con la expresión analítica propuesta y publicada por el autor de esta tesis en [82] y [84], o estimarse (incluyendo efectos de dispersión de los neutrones) por medio de simulaciones Montecarlo, como la descrita en esta tesis (MCNPX) o en [77](Geant4). El cálculo analítico nos permite identificar este efecto y calcular su corrección de manera independiente de los efectos de dispersión de neutrones introducidos por las distintas geometrías experimentales.

En los casos de medidas relativas a una muestra de referencia, la aproximación que se ha tomado históricamente [29] es considerar que el flujo recibido por ambas es prácticamente el mismo, y que en ese caso el valor de este flujo puede cancelarse en numerador y denominador en la expresión del cálculo de la MACS, suponiendo que se cancela asimismo el efecto de muestra plana. Si debido a consideraciones geométricas experimentales, o al grosor de las muestras, la fluencia recibida entre muestras y referencias es significativamente diferente, esto se suele tener en cuenta estimando el flujo en la muestra como el promedio del recibido por dos láminas de la referencia (en modo "sandwich"). En las publicaciones de medidas de activación recientes respecto al oro se continúa empleando esta consideración en el flujo.

Ahora bien, a la luz de nuestros resultados indicados en la tabla 5.3, si la muestra a medir y la muestra de referencia tienen comportamientos distintos con la sección eficaz (exponentes *a* distintos), lo cual será un caso habitual, estas diferencias deberían ser tenidas en cuenta y calcularse la corrección por muestra plana también para el caso de medidas relativas, ya que no será la misma para la muestra a medir y para la referencia, y no se cancelarán. En general, la expresión de la sección eficaz en medidas frente a una referencia (por ejemplo el oro) estimamos que debería incluir la corrección k_n , y resultaría por tanto:

$$MACS_X = MACS_{Au} \cdot \frac{N_{Au} \cdot f_{Au} \cdot A_x \cdot k_{macsx} \cdot k_{nAu}}{N_x \cdot f_x \cdot A_{Au} \cdot k_{macsAu} \cdot k_{nx}} \quad . \tag{5.2}$$

En las medidas de activación con el oro como referencia y espectro QMNS que se han venido realizando hasta la actualidad no se ha tenido esta corrección en cuenta. En medidas recientes, como [20], sí que se tiene en cuenta la forma o tendencia de la sección eficaz del núcleo a medir para la corrección por espectro k_{macs} , y se calcula esta corrección para cada núcleo, pero no se calcula ni aplica la corrección k_n , que como hemos indicado consideramos que debería tenerse igualmente en cuenta al depender también de la sección eficaz de cada núcleo. Podría ser conveniente además plantear una revisión histórica de los análisis de datos de las medidas de activaciones relativas realizadas, para estimar e incluir esta corrección en los casos que fuera significativa, y reajustar consecuentemente los valores de sección eficaz obtenidos. Como ejemplo, hemos realizado una simulación de un experimento de activación con una muestra de ¹⁸¹Ta, y el factor de corrección obtenido tiene un valor de $k_n = 1,31$, algo más de un 2% superior a la corrección para el Au ($k_n = 1,28$), por lo que los valores experimentales estimados de sección eficaz estelar del ¹⁸¹Ta obtenidos por activación QMNS en un experimento similar deberían reducirse en ese 2%.

5.2.3. Corrección por eficiencia en la detección gamma.

Las correcciones debidas a las absorciones y dispersiones de las gammas en materiales y de la eficiencia relativa del detector para las gammas procedentes de Be y Au resultan necesarias para los dos casos QMNS y MNS. En principio podemos pensar en una posible diferencia en los valores de las eficiencias, que se debería fundamentalmente a consideraciones geométricas: para el caso MNS, debido a la mayor apertura angular del flujo de neutrones (superior a 90 grados), la totalidad de la muestra resultará irradiada, y se emitirán gammas desde toda su superficie (si bien en mayor cantidad desde la región central). Para las activaciones QMNS en cambio, esta resultará irradiada sólo en su zona central (debido a la limitada apertura angular del flujo), y se emitirán gammas desde un área menor, siendo el efecto de muestra extensa ligeramente más reducido. Sin embargo, habiendo realizado simulaciones de eficiencia con ambos tipos de distribuciones de activaciones QMNS y MNS, encontramos que según los resultados de las mismas las eficiencias estimadas difieren en menos de un 0,3%. Teniendo en cuenta además las incertidumbres asociadas a la estadística de las simulaciones, no parece que este efecto de las diferentes distribuciones en las activaciones y extensión del tamaño de la zona de emisión de gammas sea en la práctica significativo.

5.2.4. Validación experimental del método de activación con producción de neutrones MNS.

Como se ha descrito en la Introducción, esta nueva técnica de producción de neutrones MNS ha sido escasamente probada todavía. Además del análisis teórico del método y la anterior discusión expuesta de sus características, es necesaria la realización de medidas que nos permitan experimentalmente contrastar su validez. En este sentido, es posible utilizar el oro para tal fin como referencia, ya que la forma o tendencia de su sección eficaz es relativamente bien conocida, están disponibles datos experimentales de medidas diferenciales, y en principio son posibles por tanto los cálculos de correcciones por espectro y muestra plana con unas incertidumbres relativamente bajas. Diferencias en la normalización de estos datos diferenciales no afectarían al valor de estas correcciones. Esta característica del oro permite una comparación y validación del método MNS, ya que una medida realizada con este debería por tanto proporcionar valores coherentes y similares de sección eficaz a los obtenidos con el método QMNS. Los resultados en los dos experimentos de activación realizados en el CNA así lo confirman, aportándose de ese modo la validación experimental buscada.

5.2.5. Comparación de métodos QMNS y MNS.

La principal utilidad o ventaja del método MNS se propone en principio para isótopos de sección eficaz desconocida o de escasos datos experimentales, como ciertos núcleos exóticos o radioactivos, dado que tal como se ha descrito anteriormente, el posible error cometido en la corrección por espectro resultaría en ese caso en general menor. Sin embargo, del análisis realizado para la corrección por muestra plana, la cual como se ha visto también depende de la sección eficaz del isótopo a medir, se obtiene que para esa corrección el posible error cometido es mayor para el caso MNS que para el QMNS. Una evaluación global debe tener por tanto en cuenta ambos efectos o correcciones. En la Tabla 5.5 se muestra el efecto conjunto calculado de esas dos correcciones, en concreto del valor y variación de su cociente k_{macs}/k_f , para varios valores del exponente a.

En la tabla observamos que el método MNS no mejoraría en principio la incertidumbre de una medida para obtener la MACS a kT=25, aunque sí podría hacerlo ligeramente para obtener la MACS a kT=30 keV, fundamentalmente debido a que el método MNS permite ajustar directamente el espectro más cercano a la maxwelliana de kT=30 keV. Tabla 5.5: Valor de la corrección k_{macs}/k_f para varios valores del exponente a y flujos de neutrones de espectro QMNS y MNS, y variación respecto a a=0,5.

a	0,5	$0,\!6$	0,7	0,8
$kmacs25/kf \ QMNS$	0,76	0,74	0,73	0,71
kmacs30/kf QMNS	$0,\!69$	$0,\!67$	$0,\!64$	$0,\!62$
kmacs30/kf MNS	$0,\!66$	$0,\!64$	$0,\!62$	$0,\!60$

Podemos calcular a modo de ejemplo los factores de corrección necesarios para el caso de una medida de la sección eficaz estelar del ¹⁸¹Ta, con ambas técnicas QMNS y MNS, y compararlos con los del ¹⁹⁷Au. La Tabla 5.6 muestra los resultados.

Tabla 5.6: Comparación de correcciones k_{macs} y k_n para el $^{181}\mathrm{Ta}$ y $^{197}\mathrm{Au}.$

	QM	INS	MNS		
	$^{197}\mathrm{Au}$	$^{181}\mathrm{Ta}$	$^{197}\mathrm{Au}$	$^{181}\mathrm{Ta}$	
kmacs30	0,86	0,82	1,01	1,01	
kn	$1,\!28$	$1,\!31$	1,75	$1,\!84$	
kmacs30/kn	$0,\!67$	$0,\!62$	$0,\!58$	$0,\!55$	

Como era de esperar, según habíamos ya previsto por los cálculos referidos en esta discusión, las correcciones por espectro a MACS30 (k_{macs}) para Au y Ta utilizando un flujo de espectro MNS resultan prácticamente de igual valor, 1,011 y 1,013, sólo un 0,2 % de diferencia entre ellas, mientras que si utilizamos el espectro QMNS, las correcciones a MACS30 para Au y Ta resultaban 0,86 y 0,82 respectivamente (un 4,4 % de diferencia entre ellas). Respecto a la corrección por muestra plana (k_n), en cambio, para el caso QMNS vemos que hay una diferencia del 2,3 % entre la corrección para el Ta y el Au (1,31 frente a 1,28), y esta diferencia total de corrección necesaria para Au y Ta teniendo en cuenta ambas correcciones ($k_{macs}/_{kn}$) resulta del 6,5 % utilizando QMNS, y algo menor (5 %) utilizando MNS.

5.2.6. Propuesta de mejora en el método MNS.

A la luz de los resultados anteriores, se pone de manifiesto que si bien el método MNS posee la fortaleza principal de necesitar una menor corrección por espectro en energía de los neutrones y resultar menos sensible a errores o desconocimiento en la tendencia o forma de la sección eficaz, presenta en cambio la debilidad de necesitar una corrección por dispersión y apertura angular del flujo de neutrones sensiblemente mayor. La reflexión sobre este punto nos lleva a proponer una modificación en el experimento, consistente esta en colocar la muestra en un punto más alejado de la emisión de neutrones, de modo que queden limitados sus ángulos de incidencia sobre la muestra, y de ese modo se vea reducida la corrección por muestra plana necesaria. La Figura 5.10 muestra esta modificación propuesta.



Figura 5.10: Geometría experimental propuesta con la muestra (o muestras en medidas relativas) colocada a una cierta distancia de la fuente de neutrones.

Para estudiar la conveniencia de esta posible mejora, hemos de tener en cuenta dos consecuencias de la misma: por otra parte, la reducción del flujo de neutrones disponibles en la muestra, al presentar esta un menor ángulo sólido vista desde la fuente de neutrones. Por otra, la posible variación del espectro de los neutrones recibidos. Teniendo en cuenta la distribución angular del flujo de neutrones de espectro MNS, vemos que la cantidad de neutrones emitidos decrece rápidamente al aumentar el ángulo de emisión, es decir, los neutrones se emiten preferentemente a ángulos reducidos respecto a la dirección del haz incidente. Realizando cálculos de flujo estimado con MCNPX, la cantidad de neutrones recibidos para una muestra circular de 24 mm de diámetro situada a 5mm de distancia del soporte de cobre sería todavía del 84 % del total de los neutrones producidos en el Li, y del 67 % situando dicha muestra a 10mm. El flujo de neutrones en este orden de distancias se sigue manteniendo por tanto dentro del mismo orden de magnitud.

Respecto a los espectros en energía de los flujos incidentes en estas configuraciones, las distribuciones obtenidas (también con MCNPX) para estos dos casos de ejemplo, así como con una ponderación con la energía de $E^{-0,5}$, se muestran en la figuras 5.11 a fig 5.14. En ellas se aprecia que al alejar la muestra de la fuente la similitud con una maxwelliana se sigue manteniendo, si bien la máxima similitud se va desplazando a maxwellianas de kT mayores. En principio estos espectros podrían ser nuevamente aproximados una maxwelliana de kT=30 keV repitiendo para estas distancias los procesos iterativos de ajuste de energía de protón y espesor del degradador indicados en la descripción del método.

Podemos hacer una primera evaluación de cálculo analítico de la corrección necesaria de muestra plana y su sensibilidad para fuente puntual, similar a la que hicimos en el caso QMNS, para espectro MNS con dos casos de límites de emisión 60 y 30 grados (que llamaremos MNS60 y MNS30), para distintos valores del exponente a. Los resultados los reflejamos en la Tabla 5.7, donde los comparamos con los de la corrección de la muestra sin alejar (neutrones de hasta 88 grados), y podemos apreciar como la corrección se reduce considerablemente y su sensibilidad con a se hace menor del 1%.

Como ejemplo de las posibilidades de esta mejora, la cual queda propuesta en esta tesis, hemos realizado el cálculo con MCPNX de correcciones de espectro y muestra plana necesarias para dos medidas de la sección eficaz estelar del ¹⁸¹Ta tomando el Au como referencia y espectro MNS situando la muestra unas distancias de 5 y 10mm del soporte de Cu. La Tabla 5.8 muestra los resultados de dichos cálculos, en los que podemos apreciar que la sensibilidad en la corrección global k_{macs}/k_n es sustancialmente menor con estas nuevas geometrías que en los métodos QMNS y MNS originales.

Tabla 5.7: Correcciones de muestra plana para neutrones de fuente puntual y espectro MNS88, MNS60 y MNS30 para distintos valores del exponente a en $\sigma(E) = AE^{-a}$.

a	0,5	$0,\!6$	0,7	$0,\!8$
kf MNS88	$1,\!54$	$1,\!58$	$1,\!61$	$1,\!65$
kf MNS60	$1,\!16$	$1,\!16$	$1,\!16$	$1,\!17$
kf MNS30	$1,\!05$	$1,\!05$	$1,\!05$	$1,\!05$

Tabla 5.8: Comparativa de las correcciones k_{macs} y k_n necesarias para el cálculo de la sección eficaz estelar de ¹⁹⁷Au y ¹⁸¹Ta con flujo de neutrones de espectro MNS y muestra situada a 5 y 10 mm del soporte de Cu.

	Muestra a 5mm		Muestra a 10mm		
	del soporte.		del soporte.		
	$^{197}\mathrm{Au}^{-1}$	181 Ta	$^{197}\mathrm{Au}^{-1}$	181 Ta	
kmacs30	1,03	1,04	1,05	1,08	
kn	1,29	1,31	$1,\!13$	$1,\!13$	
macs30/kn	$0,\!80$	$0,\!80$	0,93	$0,\!95$	



Figura 5.12: Comparación de espectros en energía de flujos MNS a 10 mm del soporte y maxwelliano de kT=37 keV, normalizados a la fluencia.



Figura 5.11: Comparación de espectros en energía de flujos MNS a 5mm del soporte y maxwelliano de kT=35 keV, normalizados a la fluencia.



Figura 5.13: Comparación de espectros en energía de flujos MNS a 5mm y maxwelliano de kT=25 keV, normalizados a la fluencia, y multiplicados por el factor $E^{-0.5}$.



Figura 5.14: Comparación de espectros en energía de flujos MNS a 10mm y maxwelliano de kT=37 keV, normalizados a la fluencia, y multiplicados por el factor $E^{-0.5}$.

5.3. Conclusiones.

Se han realizado para esta tesis doctoral dos experimentos para la medida de la sección eficaz estelar del oro (reacción ¹⁹⁷Au(n, γ)) a kT=30 keV, mediante técnica de activación neutrónica, en el CNA en Sevilla. El primer experimento fue realizado mediante activación con neutrones producidos a través de la reacción ⁷Li(p,n) a energía de protón E_p =1912 keV, llamados neutrones de espectro cuasi-maxwelliano (QMNS), técnica esta común y ampliamente utilizada en experimentos de Astrofísica Nuclear para la estimación de la sección eficaz estelar. El segundo experimento fue llevado a cabo mediante activación con una reciente mejora propuesta en la técnica, fundamentada en la conformación de la energía del haz de protones utilizado para la reacción ⁷Li(p,n) a un perfil de energía de haz gaussiano específico, con el que se consigue una producción de neutrones con un espectro en energía más próximo aún al maxwelliano (MNS).

En la presente memoria se describe tanto el procedimiento experimental llevado a cabo en ambos experimentos como el análisis de los datos obtenidos. En el aspecto experimental, se detallan y sopesan en su importancia todas las fases y detalles de la preparación y realización de los experimentos. Se ha añadido al proceso experimental tradicional el uso de *view-ports* en pruebas de haz previas a la irradiación, para el aseguramiento de la posterior obtención de una fuente de neutrones distribuida lo más uniformemente posible en la lámina de Li. En el aspecto de análisis de los datos experimentales obtenidos, se han empleado con profusión simulaciones Monte Carlo realizadas con el código MCNPX, para el experimento completo (transporte e interacción con la materia tanto de neutrones como gammas), y se han analizado y discutido las distintas correcciones experimentales necesarias. En este análisis de datos se ha profundizado y aportado en aspectos no descritos o desarrollados en otras publicaciones o textos sobre medidas de activación. A modo de resumen podemos enumerar: aplicación de un método para la mejora de las simulaciones Montecarlo de los detectores gamma HPGe, consistente en el ajuste de la caracterización de su cristal de Ge; cálculo de la distribución de activaciones en las muestras, y su impacto en la medida; estudio del efecto de la variación en la fluencia de neutrones por posible inestabilidad o variación del haz; estudio detallado del efecto de dispersión de neutrones, tanto dentro de los materiales (Li y soporte de Cu) como en la propia lámina de Au, y análisis de su impacto en la medida y su incertidumbre; estudio de la dispersion de neutrones en la sala experimental; estudio de la incertidumbre en la corrección por espectro de energía del flujo experimental de neutrones frente a la maxweliana ideal y estudio de su sensibilidad respecto a la estimación teórica de la tendencia de la sección eficaz diferencial con el modelo $\sigma(E) \sim E^{-a}$; estudio de la corrección por apertura angular de flujo sobre muestras planas, con una propuesta de expresión analítica para el cálculo de la misma, y una valoración del posible impacto de la carencia de esta corrección en medidas relativas.

Los resultados de Sección Eficaz Estelar (MACS₃₀) de estos experimentos, que han sido de 621 ± 21 mb en la activación QMNS y 612 ± 20 mb para la activación

MNS, se han aportado como nuevas medidas experimentales del valor de la sección eficaz estelar del oro a kT=30 keV. Los datos de la medida con espectro QMNS realizada en la presente tesis fueron presentados en el congreso internacional Nuclei in the Cosmos XIII (2014), y junto con las últimas medidas de tiempo de vuelo de CERN y GELINA, han promovido un cambio el valor de referencia históricamente utilizado para el oro (582 mb). Este valor ha sido finalmente actualizado en la base datos online KADONIS a 613 ± 7 mb. Recientes publicaciones de medidas de activación realizadas respecto al oro citan ya esta nueva referencia, y citan asimismo la medida de activación realizada en la presente tesis.

Respecto a la técnica para la producción de neutrones de un espectro más próximo al maxwelliano (MNS) objeto de estudio, la coherencia entre los resultados de la medida del oro obtenidos en los dos experimentos realizados, con dicho método innovador y con el ya conocido de activación con neutrones de espectro cuasi-maxwelliano QMNS, aporta una validación experimental de dicha técnica modificada. Se ha realizado análisis, discusión y comparación entre ambas técnicas QMNS y MNS. Del mismo se desprende que para medidas sobre núcleos de escasos datos disponibles de sección eficaz diferencial, la mayor similitud del espectro de neutrones con un estelar consigue una reducción de la incertidumbre en la corrección por espectro. En cambio, la corrección e incertidumbre asociada a la mayor apertura del flujo de neutrones (corrección por muestra plana) resulta ser sensiblemente mayor para el método MNS. La incertidumbre final asociada al efecto combinado de ambas correcciones se estima que resulta algo menor para el método MNS. Se aporta a la luz de los resultados de estos análisis en la presente tesis una propuesta de mejora adicional en el método MNS, consistente en una configuración geométrica con la muestra alejada a una cierta distancia de la fuente de neutrones. En esta configuración la corrección por muestra plana se ve reducida tanto en su valor como incertidumbre. a la vez que se mantiene baja la corrección por espectro, redundando en una menor incertidumbre combinada total.

Finalmente, se subraya como aportación a raíz del estudio realizado en esta tesis, la conveniencia de revisar, y en su caso modificar, los resultados de las medidas relativas de activación realizadas hasta la fecha, incluyendo la corrección por muestra plana descrita en esta memoria.

Capítulo 6

Summary of Discussions and Conclusions (English).

Returning to the objective set out at the beginning of this thesis, let us remember that we could summarize in it two related parts: on the one hand, a new experimental measurement of the stellar cross section of the reaction ¹⁹⁷Au (n,g), to contribute to the recently opened debate on the value taken as a reference for that stellar cross section. On the other hand, the analysis of the activation method in both its traditional technique with quasi-Maxwellian spectrum neutron fluxes (QMNS) and with the improvement for the production of neutron fluxes with an energy spectrum closer to a Maxwellian one (MNS). In the following points we will discuss our results regarding both issues.

6.1. The stellar cross section of gold.

6.1.1. Results and comparison with previous measurements.

The results of the data analysis of the activation experiments carried out in the CNA for the present thesis have yielded a value for the gold stellar section at kT = 30 keV of 621 ± 21 mb for the QMNS activation, and 612 ± 20 mb for MNS activation. Figure 5.1 shows a comparison of these results with previous measurements [28][32][78][79] and with the evaluation ENDF/B-VII [26]. As we can see, the two values obtained in this work are in good agreement with those obtained in the most recent time of flight experiments (611 mb [32] and 613 mb [79]) and the ENDF evaluation (614 mb [26]), as well as with a previous activation experiment [78](634 mb).

Comparing the activation experiments of the present work with the activation experiment carried out in 1988 by R&K [28], we can comment some of the differences in the method and data analysis and calculation of corrections. The most significant and characteristic difference in the experimental method is the use by RK of a hemispherical sample of gold, as shown in Figure 5.2, reproduced from the original publication. R&K use this configuration in order to avoid the calculation of a correction by flat sample. This undoubted advantage entails, in turn, the technical difficulty of achieving that spherical shape by keeping the thickness of the sample constant, and also implies considering the neutron source as a point source. In this regard, R&K indicate in the text that in activations made with different Li foils of 3 and 6 mm diameter there were no significant differences, and considered the neutron source as point for practical purposes.

Regarding the data analysis, we find the main differences in the estimation of neutron scatter corrections and the correction for difference of the neutron experimental spectrum versus the Maxwellian one. In the R&K experiment, neutron scattering correction was experimentally assessed by placing gold cylinders around the activated sample (as the figure 5.2 also shows) and then measuring the activity of these cyliders. R&K estimated by this measure a loss by dispersion of 1.8% in the neutron flux. From our side, in the simulations for our 0.5mm backing, we obtained losses of 2.3%, and performing a Monte Carlo simulation to estimate the loss of neutrons by dispersion for a backing of a 1mm thickness, as used in the RK experiment, we have obtained that the loss of the neutron flux would in that case be of 5%, that is, more than 3% additional to that estimated experimentally by R&K.

In the calculation for the non-maxwellian spectrum correction, we also find a difference in the value calculated for it between our experiment and that of R&K. Ratynski & Käppeler calculate the QMNS spectrum correction for the MACS at kT = 25 keV by integrating the QMNS spectrum between 3 keV and infinity with the differential cross section obtained experimentally by Maclin [80], obtaining a correction of $k_{macs} = 0.98$. However, this calculation does not take into account the energy region below 3 keV. Although in that region decreases the number of neutrons, it is nevertheless important due to the higher value of the low energy cross section. As indicated in the data analysis, we have performed on our side a calculation of the QMNS spectrum correction factor for MACS at kT = 25 keV including points below 3 keV, (2,5, 1,5 and 0,5 keV) and we obtained a result of $k_{macs} = 0.96$, which is in beeter agreement with a more recent calculations by other authors [30][32].

Other differences are found in the values of gamma intensities and half-lives used for the calculation. In this thesis we have tried to use more updated references. Regardless of this, we have observed that in the text of the R&K publication there is indicated (twice) for ¹⁹⁸Au an average life of 2.62 days. However, referring to the reference cited by the publication itself [81], this indicates a value of 2.69 days, equal or very similar to that of the current references used in this thesis. We do not know if it was an error in the text, and what was the value actually used in the calculations. Performing on our part calculations with both values, the cross section obtained using a half-life of 2,62 days is 10 mb lower than that obtained using 2,69 days.

6.1.2. New reference value for stellar cross section of gold.

A first discussion on the reference value of the gold stellar cross section was presented in the Master in Nuclear Physics dissertation of the author of this thesis entitled "Towards a standard in Nuclear Astrophysics: measurement of the stellar section of the reaction ¹⁹⁷ Au (n, γ)"[82]. Results of a more in-depth data analysis (with Monte Carlo simulations) of the quasi-maxwellian spectrum neutron activation experiment (QMNS) carried out at the CNA were presented at the 13th International Conference "Nuclei in the Cosmos XIII " (NIC) XIII) in Debrecen, Hungary, in July 2014 [83], and published in the proceedings of that congress under the title "Measurement of the ¹⁹⁷ Au (n, γ) stellar cross section at kT = 30 by activation "[84]. Subsequently, preliminary results of the second activation made with the new production method of maxwellian spectra (MNS) were also presented at the 7th conference "Nuclear Physics in Astrophysics VII" in York, UK, in May 2015 [85], and it's accepted for publication in IOP Conference Series [86]. Both conferences, of biannual character, are considered two of the most important meeting points at international level within the theoretical and experimental Nuclear Astrophysics.

After the NICXIII conference, a new revision of the KADONIS online database was published in February 2015: "The new KADoNiS v1.0 and its influence on the weak s-process nucleosynthesis "[87], in which the reference value for MACS of gold was updated from 582 mb to 612.8 mb (Figure 5.3). This new revision cites as reference and support for this change the evaluations ENDF / B VII.1 [88], JEFF-3.2 [89], JENDL-4.0 [90], the last experimental measurements from n_TOF [25], IRRM [79], and our activation measurement described in this thesis and published in [84].

Subsequent to this update, new recent measures of stellar cross sections relative to Au, such as several activation measures in Karlsruhe and Vienna published in the Physical Review C in 2016 [41][91] and 2017 [22], use this new reference of 612.8 mb for gold, and cite our activation measurement made by the Seville group in the CNA [84].

6.2. Activations with neutrons of quasi-Maxwellian spectrum (QMNS) and Maxwellian (MNS).

6.2.1. Correction for the energy spectrum of the neutron flux.

In the activation method, the difference of the laboratory neutron flux with an ideal stellar neutron flux (Maxwellian spectrum) results in the need to incorporate the correction factor that we have called correction for energy spectrum k_{macs} , as it has been described in this thesis. The analytical calculation of this correction by spectrum is given by the expression 2.7. We see that for its calculation it is not only

necessary to take into account the difference between the shape of the experimental spectrum of the neutrons (QMNS) versus an ideal Maxwellian, but also the differential cross section $\sigma(E)$ of the involved isotope. Therefore, the value of this correction is in principle different for each isotope. However, in spite of this implication of the cross section $\sigma(E)$ in the calculation, we observe that the differential cross section $\sigma(E)$ appears in the numerator and denominator of the expression 2.7. This implies that knowledge of its absolute value is not really necessary, but only its form or dependence on the energy. As long as this form or dependence is well known, we can allow differences in its absolute value or a normalization factor without affecting the calculation of the correction.

For the experimental estimation of the energy dependence of the cross section, it is possible to use the time of flight method, when this is feasible. The method of time of flight (TOF) allows obtaining this differential cross section for a certain range of energy, including resonances and structures where its resolution is possible. In addition, when it is possible to use both methods, time of flight and activation on the same nucleus, these methods complement or reinforce each other in the following way: in time of flight measurements it is possible that they are committed (or can not be avoided) systematic errors, for example in the form of a certain factor. At this point it is where integral measurements such as activation ones become especially relevant, since these measurements, if they have low uncertainties, can be used to renormalize differential measurements. Moreover, if differential data are available, a measurement of the neutron activation integral of *any* spectrum, as long as spectrum and dependence were well known, would allow in principle the verification, or renormalization of the differential data in that range of energy.

However, differential cross-sectional measurements are not always possible, or the uncertainty may be high, for all or part of the energy range. In this case, in order to calculate our correction factor for the spectrum, we must estimate the dependence of the cross section with the energy. For this theoretical estimation of the form or trend of the differential cross section, statistical models can be used, such as Hauser-Feshbach, on which commonly used codes such as the NON-SMOKER are based [2][94]. Analytically, a first approximation with s-wave for the capture reaction of the incident neutron at low energies (except for resonances) indicates for the differential efficient section a dependence with the velocity of the incident neutron of $\sigma(v) \sim 1/v$ (or in terms of energy $\sigma(E) \sim 1/\sqrt{E}$).

However, not always the non-resonant cross section follows this simple law, for several possible causes [2]. In this case, the dependence of the cross-section to energies in the astrophysical range can be approximated more generically with the relation $\sigma(E) \sim E^{-a}$, where the exponent can reach other values different than 0,5 depending on the nucleus and energies. The calculation of the spectrum correction taking this theoretical approach would then be given by the expression 5.1. For most isotopes, their tendencies usually correspond to values of the exponent a between 0,5 and 0,8 [28].

We have studied how errors in the estimation of this trend or form would affect

the spectrum correction k_{macs} . In order to do that, we have made the calculation of this correction taking differential cross sections modeled by $\sigma(E)=E^{-a}$ with different values of the exponent a between 0,5 and 0,8. The results obtained, using QMNS, are shown in Table 5.1. For differences between exponent of a = 0,5 and = 0,8 we obtain variations in the correction of 5% for kT=25 keV and up to 9% for kT=30 keV.

Similar to what was done for the QMNS spectrum, we can calculate the correction needed when using a MNS neutron flux. The results are shown in Table 5.2. We can see in the table that in this case the use of MNS spectrum neutrons makes the value obtained for the spectrum correction at kT = 30 keV lower and less sensitive to errors in the estimation of the trend of the cross section than the use of neutron spectrum QMNS (Table 5.1), just 2% for differences in the exponent between 0,5 and 0,8.

Part of this improvement is due to the possibility through combinations of beam energy and degrader to produce flows with spectra that adjust to different kT within a range of kT between 5 and 55 keV, specifically in our case adjusted close to 30 keV. The QMNS flow only has an optimal setting for 25 keV, and therefore always needs extrapolation if the MACS is wanted to other different kT (like kT = 30), with the higher error that it implies.

In Figure 5.7 and 5.8 we can compare the energy distribution of the simulation of the experimental flow MNS compared with maxwellians of kT = 30 and 33 keV. At first sight we can see that the MNS distribution has a greater similarity with the maxwellian than the QMNS distribution. An obvious difference is the incorporation of a high-energy "tail" that reaches up to 400 keV, not present in the QMNS spectrum, which is truncated at 110 keV. However, when estimating how good the Maxwellian approximation of an experimental flow is, we must take into account the weighting introduced by the shape of the cross section, giving more weight to the low energy regions, for which the value of the effective section is higher. In the Figure 5.5 to 5.9 we plot the energy distributions of experimental fluxs QMNS and MNS compared with maxwellians of kT = 25, 30 and 33 keV, and also with weights by the factor f (E)=E^{-0.5}. Analyzing the region of low energy, below 8 keV, we observe that there is still a certain difference between an ideal Maxwellian spectrum and an experimental spectrum, fot both QMNS and MNS spectrum. Due mainly to this difference in the low energy region, a correction by spectrum is still necessary.

An experimental aspect to be considered also in the spectra used QMNS and MNS is that a possible error in the calibration of the accelerator used for the reaction (p, n) could cause a deviation of the proton energy and therefore of the experimental real neutron spectrum used against the theoretical or desired. In this sense, the MNS neutron production method is more robust than the QMNS, since, as described in [49], the Gaussian energy spectrum of the proton beam produced after the protons cross the degrader foil is much less sensitive to deviations from the accelerator calibration, not being significant below the 10 keV deviation in the proton energy.

Finally, it is also necessary to consider that a precise knowledge of the real shape of the neutron spectrum with which we are irradiating the sample is equally necessary for the calculation of our correction. In principle, the ⁷Li(p,n) reaction and its kinematics have been well studied, and the energy spectrum of the neutrons produced is known for different proton energies. There are codes like the one used in this work or others [77][95] with which the forms of the experimental QMNS and MNS spectra used can be simulated and reproduced. Also, the experimental QMNS spectrum has been measured experimentally several times [28][53]. However, as we have discussed, in the data analysis section, differences between differents spectra involve 1-2% difference in k_{macs} . Especially for the low energy area of the neutron spectrum produced, in which the experimental measurements are more difficult and imprecise, usually due to the low statistics in that region, new measurements and simulations are still desirable, due precisely to the greater weight that this region has the stellar cross-section in the calculation, and the possible uncertainties that it can be derived. In this regard, efforts continue to be made, as in the recent measure published in [96]. For the MNS spectrum the first measurements of the spectrum have already been made at IRMM, the data obtained are in the analysis phase, and it is also planned to carry out such a measurement at the CNA in Seville in the next future.

6.2.2. Correction for flat sample.

The correction on the neutron flux for flat sample k_f (or globally the correction k_n) take into account the angular aperture of neutrons before reaching the sample and the fact that neutrons due to its different incident angle see different thickness of the simple. As it is shown in the expression 5.19., for the calculation of the flat sample correction it is necessary a previous knowledge of the form or tendency of the cross section. The correction value for flat sample is therefore different for each isotope. In a similar way as we did for spectrum correction, we can estimate how the value of this correction varies by flat sample for QMNS spectrum by modeling the cross section by $\sigma(E) = AE^{-a}$ and varying the exponent to between 0.5 and 0.8. The results are shown in Table 5.3, and we appreciate that there may be a variation in the value of this correction of around 2.5% depending on the trend of the cross section.

With the use of neutron fluxes of the MNS spectrum the correction k_f has a higher value, since in this case the neutron flux has an angular opening greater than 90 degrees. In Table 5.4 are shown the results of the calculation of this correction as well as its variation for different exponents of cross-section $\sigma(E)=AE^{-a}$, for a point source MNS and a sample that receives neutrons with angles of incidence of up to 98 degrees. The variation or dependence with the trend of the cross-section using neutron fluxes MNS is significantly higher that in the case of QMNS, the value of the MNS correction can vary by around 7%.

If the cross section measurement is direct or absolute, as in the case of this thesis,

without being relative to another sample or reference cross section, the calculation of these corrections is essential. On the other hand, in cases of measurements relative to a reference sample, historically it is common to estimate that the flow received by both simple and reference is practically the same, and so this correction is cancelled or ignored. However, regarding our results, we consider that if the sample to be measured and the reference sample have different behaviors with the cross section, which will be a usual case, this correction can't be cancelled in numerator and denominator in the expression of the calculation of the MACS, these differences should be taken into account and this correction should be calculated and incorporated. In general, the expression of the cross section in measures against a reference (for example gold) including the correction correction k_n (which includes k_s and k_f) that we consider necessary would therefore result as written in 5.2.

The measures of activation with respect to gold have been carried out during the last decades without this correction being taken into account, so it could be necessary to propose a revision of them, to include it in cases that were significant, and consequently to readjust the obtained cross-sectional values. As an example, we have calculated that for ¹⁸¹Ta the correction factor has a value of $k_n=1.31$, 2% higher than the correction for Au($k_n=1.28$), so that the estimated experimental values of stellar cross section of ¹⁸¹Ta obtained by activation should be reduced by 2%.

6.2.3. Experimental validation of the MNS activation method.

As described in the Introduction, this new MNS neutron production technique hasn't been tested extensively with low uncertainty values. In addition to the theoretical analysis of the method and the previous exposed discussion of its characteristics, it is necessary to carry out measures that allow us to experimentally confirm its validity. In this sense, it is possible to use gold for this purpose as a reference, since the shape or trend of its cross-section is relatively well known, experimental data of differential measurements are available, and in principle is posible to obtain corrections for spectrum and flat simple with relatively low uncertainties. Differences in the normalization of the differential cross section data would not affect the value of these corrections. This characteristic of gold allows a comparison and validation of the MNS method, since a measurement made with it should therefore provide coherent and similar values of cross section to those obtained with the QMNS method. The results in the two activation experiments carried out in the CNA confirm this, thus providing the desired experimental validation.

6.2.4. Comparison of QMNS and MNS methods.

The main utility or advantage of the MNS method is proposed in principle for isotopes of unknown effective section or of Little experimental data, such as certain exotic or radioactive nuclei, since as previously described, the possible error committed in the correction by spectrum in that case would be lower. However, the analysis performed for the correction by flat sample, which as seen also depends on the effective section of the isotope to be measured, it is obtained that for that correction the posible error is higher for the MNS case than for the QMNS. A global assessment must therefore take into account both effects or corrections. In Table 5.5 shows the calculated joint effect of these two corrections, in particular the value and variation of its quotient Kmax / Kf, for several values of the exponent *a*. In the table we observed that the MNS method would not improve in principle the uncertainty of a measure to obtain the MACS at kT = 30 keV, fundamentally because the method MNS allows to directly adjust the spectrum closest to the maxwellian of kT = 30 keV .

We can calculate as an example the necessary correction factors for the case of a measurement of the stellar section of the ¹⁸¹ Ta, with both QMNS and MNS techniques, and compare them with those of the ¹⁹⁷Au. Table 5.6 shows the results. As expected, as we had already predicted by the calculations referred to in this discussion, the corrections per spectrum to MACS30 (k_{macs}) for Au and Ta using a flow of MNS spectrum are practically of equal value, only a 0,2% difference between them, while if we use the QMNS spectrum, the corrections to MACS30 for Au and Ta were 0.86 and 0.82 respectively (a 4.5% difference between them). Regarding the correction by flat sample (k_n), however, for the case QMNS we see that there is a difference of 2% between the correction for Ta and Au (1.31 vs. 1.28), and this difference increases to 5% (1.84 versus 1.75) if the MNS spectrum is used. The total correction difference needed for Au and Ta taking into account both corrections (k_{macs} /K_n) is 6.5% using QMNS, and slighty smaller (5%) using MNS.

6.2.5. Proposal for improvement of the MNS method.

Considering the above results, it is evident that while the MNS method has the main strength of needing a lower correction for spectrum and it is less sensitive to error or ignorance on the trend or shape of the differential cross section, it presents weakness is the need of a higher correction for the angular apertura of neutron flow. Taking these points into consideration leads us to propose a modification in the experiment, consisting on a setup with the simple placed further from the neutron emission point, so neutron flux has reduced angles of incidence on the sample, and thus the required flat correction is lower. The Figure 5.10 shows this proposed setup.

To examine the convenience of this possible improvement, we must consider two consequences of it: on the one hand, reducing the neutron flux at the sample. Furthermore, the possible variation of the spectrum of the received neutron flux.

Given the angular distribution of the neutron flux MNS spectrum (Figure 2.15) we see that the amount of emitted neutrons decreases rapidly with increasing angle of emission, is neutrons preferably are emitted in the forward direction of the beam.
Performing flow calculations with MCNPX, the amount of neutrons received for a circular sample 24 mm in diameter located 5mm away from the copper holder would still be 84% of the neutrons produced in the Li, and 67% placing said sample to 10mm. Therefore, the neutron flux is still maintained within the same order of magnitude.

Regarding energy spectra of the incidents neutrons in these configurations, the distributions obtained for these two scenarios, as well as a weighting with energy E $^{-0,5}$, s are shown in Figures 5.11 to Figure 5.14. It is shown that in this new setup the similarity with a Maxwellian is still maintained, although moving to slightly higher kT energy. In principle these spectra could be again approximate a Maxwellian kT = 30 keV repeating the iterative adjustment processes for proton energy and degrader thickness indicated in the description of the method.

We can make a first evaluation of analytical calculation of the required correction and sensitivity for point source, similar to what we did in the QMNS case for spectrum MNS with two cases of emission limits 60 and 30 degrees (we call MNS60 and MNS30), for different values of the exponent. The results are shown in Table 5.7. Compared to the standar setup, we can see how the correction and sensitivity are reduced very considerably.

As an example of the possibilities of this improvement, which is proposed in this thesis, we performed the calculation with MCPNX of the corrections for spectrum and flat sample needed for ¹⁸¹Ta taking the Au as reference, placing the samples at distances of 5 and 10 mm of the Cu backing. Table 5.8 shows the results of the calculations, in which we see that the sensitivity in the overall correction k $_{macs}/$ k $_{n}$ is substantially less with this new geometry tan with the original one.

6.3. Conclusions.

For this thesis, two experiments for measurement of the stellar cross section of the reaction ¹⁹⁷Au(n, γ) at 30 keV by neutron activation technique have been performed at CNA in Seville. The first experiment was performed by activation with neutrons produced by the reaction ⁷Li (p, n) at proton energy E _p= 1912 keV, called quasi-Maxwellian neutron spectrum (QMNS). This technique is common and widely used in Nuclear astrophysics experiments for estimating the stellar cross section. The second experiment was carried out by activation with a recently proposed improvement in the method, based on the utilization of the reaction ⁷Li(p,n) with a proton beam having a specific Gaussian energy profile. With this improvement the produced neutrons have an energy spectrum closer to a real stellar Maxwellian (MNS).

Herein both the experimental procedure carried out for both QMNS and MNS experiments, and the data analysis are described. In the experimental aspect, all phases and details of preparation and performing the experiments are explained. It was added to the traditional experimental process the use of *view-ports* in tests prior

to irradiation, in order to obtain a neutron source distributed as uniform as possible in the Li foil. In terms of analysis of experimental data, Monte Carlo simulations performed with MCNPX code have been used profusely for the complete experiment (transport and interaction both neutron and gamma), and have been analyzed and discussed all the necessary experimental corrections. This analysis has deepened and brought in aspects not described or developed in other publications or texts on activation measurements. We can enumerate in summary the following aspects in the analysis: application of a method for improving the Montecarlo simulation of the HPGe gamma detectors, consisting of adjusting the characterization of their crystal Ge; calculation of the distribution of activations in samples ; study of the effect of neutron scattering within the materials (Li, Cu backing and Au foil) and in the experimental room; study of uncertainty in the correction for experimental neutron energy spectrum and study of its sensitivity to the theoretical estimation of the trend of the differential cross section σ (E); study of correction for angular aperture of the neutron flux in flat samples, with a proposed analytical expression for calculating it, and an assessment of the possible impact of the lack of this correction.

The results of these experiments, which were of 621 ± 21 mb in QMNS activation and 612 ± 20 mb for MNS activation have contributed as new experimental measurements of the stellar cross section (MACS) of gold at kT = 30 keV. Data of the measurement with QMNS spectrum made in the present thesis were presented at the International Congress Nuclei in the Cosmos XIII (2014), and along with the latest time of flight measurements of CERN and GELINA have promoted a change in the reference value historically used for gold, 582 mb. This value has finally been updated in the database KADONIS to 613 ± 7 MB. Several recent publications of activation measurements relatives to gold use now this new reference, and also cite the activation measurement of this thesis.

Regarding the technique for producing neutrons with a spectrum closer to a Maxwellian (MNS), the consistency between the results obtained in the two experiments performed with this innovative method MNS and with the well known activation with quasi-maxwellian neutrons QMNS, provides experimental validation of this modified technique. It has been carried out an analysis, discussion and comparison between the two techniques QMNS and MNS. When few or poor differential cross section data are available, the greater similarity of MNS with stellar spectrum achieves a reduction of uncertainty in the spectrum correction. In contrast, the correction and the uncertainty associated with the neutron flux opening angle (flat sample correction) becomes significantly higher for the MNS method. The final uncertainty associated with the combined effect of both corrections is estimated as slightly lower for the method MNS. A proposal for further improvement in the method is provided in view of the results of the analyzes described in this thesis. The improvement is consisting in a geometric configuration of the samples with a certain distance away from the neutron source. In this configuration, the flat sample correction is reduced in its value and uncertainty, while maintaining a low spectrum correction, resulting in less combined overall uncertainty.

Finally, the analyzes described in this thesis regarding the flat sample correction for activation measurements relatives to gold stresses the convenience of a revision in the data analysis of existing activation measurements, to include this correction and update the results in the cases where it could be more relevant. Capítulo 6. Summary of Discussions and Conclusions (English).

Capítulo 7

Anexos

7.1. Introducción a MCNPX.

El método de Monte Carlo es un método no determinista para proporcionar soluciones aproximadas a problemas costosos o imposibles de evaluar con exactitud. Para ello utiliza la generación de números aleatorios (pseudoaleatorios) por una computadora. De ahí su nombre, que hace alusión al famoso casino de la capital de Mónaco, en el que en juegos de azar y ruletas se generan igualmente números aleatorios. La idea central del procedimiento de MCNPX, y en general de una simulación Monte Carlo de un proceso físico en el que intervienen un gran número de partículas, y en el que pueden ocurrir distintos tipos de eventos con distintas probabilidades, es la siguiente:

- 1. Una partícula de unas determinadas características (clase, energía, punto de origen, dirección) es generada dentro de la simulación.
- 2. A cada uno de los distintos tipos de interacciones o eventos posibles para esa partícula se le asigna un intervalo de números aleatorios (dentro de un intervalo total de 0 a 1). La extensión del intervalo de cada evento es proporcional a la probabilidad de ocurrencia de dicho evento.
- 3. Dentro de la simulación se genera un número aleatorio, entre 0 y 1. Dependiendo del intervalo dentro del que ese número resulte encontrarse, registramos qué tipo de evento ha tenido lugar en la simulación.
- 4. A partir de la situación en la que queda el sistema tras el evento, repetimos el proceso con la generación de nuevos números aleatorios para nuevos posibles eventos (de la partícula principal generada y de las posibles secundarias producidas), almacenando los eventos ya sucedidos en la historia de la partícula.
- 5. Repetimos los dos puntos anteriores, hasta que la historia completa de la partícula termina (la partícula y partículas secundarias generadas desaparecen).

6. Se genera una nueva partícula y se repite todo el proceso, hasta que la simulación completa finaliza al alcanzarse el número de partículas o tiempo de computación programados.

En la figura 6.1 se representa un ejemplo simplificado de una posible historia en una simulación: un neutrón con una determinada energía y dirección entra en una celda de un determinado material. A partir de ahí, las probabilidades que los modelos físicos indican para cada una de las alternativas, en conjunción con la generación de números aleatorios, resultan en la sucesión de eventos concretos que conforman la historia particular de ese neutrón. En este ejemplo los eventos que tienen lugar son: dispersión del neutrón con la generación de un fotón (B, evento 1), captura del neutrón y fisión con producción de dos neutrones y un fotón (C, evento 2), captura de uno de los neutrones de la fisión (D, evento 3), salida de la celda del otro neutrón (evento 4), dispersión del fotón (evento 5), salida del fotón (evento 6) y captura del fotón que había sido producido en 1 (evento 7).



Figura 7.1: Representación de una posible historia (de A a D) de un neutrón dentro de una celda en una simulación MCNP.

En resumen, teniendo implementados en el código las leyes y modelos físicos para los distintos eventos que pueden ir ocurriendo, mediante la generación sucesiva de números aleatorios es posible ir trazando una historia de esa partícula dentro del experimento. Repitiendo este proceso para sucesivas partículas y almacenando sus historias, a medida que aumente su número, el comportamiento de la simulación y el resultado de los medidores programados en nuestra simulación (p.ej. número de fisiones, número de capturas producidas, etc) se irán aproximando a los del experimento real (con muchas partículas) que se intenta simular. El número de historias que tendremos que simular dependerá de la complejidad del problema, así como del error que permitamos en los resultados de los medidores. Para un gran número de historias pueden requerirse elevadas potencias o tiempos de computación.

De los distintos códigos de Monte Carlo disponibles para simulación de procesos físicos con partículas, como Geant4 [64] FLUKA [63] o MCNPX [51], se ha utilizado MCNPX por considerarlo el más adecuado para nuestros fines, que es el análisis y simulación de un experimento de captura de neutrones. MCNPX tiene su origen en

Mnemónico	Descripción	Unidades
F1	Corriente integrada sobre una	Partículas
	superficie.	
F2	Flujo promedio sobre una su-	$Partículas/cm^2$
	perficie.	
F 4	Flujo promedio sobre una cel-	$Partículas/cm^2$
	da.	
F5a	Flujo en un detector puntual	$Partículas/cm^2$
	o de anillo.	
F6	Energía promedio depositada	MeV/g
	en una celda.	
+F6	Calentamiento por colisión.	MeV/g
F7	Energía de fisión depositada	MeV/g
	promedio en una celda	
F8	Distribución en energía de	Pulsos
	pulsos en un detector.	
$+\mathbf{F8}$	Deposición de carga.	Carga
FT8	Modificador de F8, número	Capturas
	de capturas en una celda.	

Tabla 7.1: Tabla de tally card en MCNPX 2.5.0.

MCNP, un código desarrollado y mantenido por Los Alamos National Laboratory (US) desde la década de 1950. Dicho código simula el transporte y comportamiento en la materia de neutrones y gammas, tridimensional y dependiente del tiempo, por el método de Monte Carlo. Trata también los procesos acoplados, es decir, gammas producidas en las interacciones de los neutrones, así como de los electrones primarios y secundarios creados. Simula neutrones en el rango de energías de 10^{-5} eV a 20 MeV, y electrones y gammas desde 1 keV hasta 1 GeV, teniendo incorporada una extensa biblioteca de secciones eficaces procedentes de ENDF. Permite seleccionar qué tipo de partículas se desea transportar en la simulación, así como distintas posibilidades de información a extraer de la misma, a través de funciones (medidores o "tallies") implementadas en el código, como pueden ser: flujo a través de una superficie, energía depositada, número de activaciones o reacciones de captura en una región, colisiones, pulsos en un detector, etc. Posee también distintas opciones de representación gráfica. Es un código internacionalmente reconocido, y de propósito general, empleado por ejemplo en cálculos de dosimetría y protección frente a la radiación, diseños de reactores de fisión, estudios de criticidad nuclear, aplicaciones con aceleradores y diseño de blancos, activación de materiales, medicina nuclear, etc.

Para este trabajo se utilizó MCNPX 2.5.0. MCNPX es la versión extendida de MCNP, con una primera versión 2.1 en 1997, en la que se amplía el rango de energías

y partículas tratadas, así como mejoras en los modelos físicos y en otras cuestiones. Extiende el tratamiento de neutrones, protones y bibliotecas fotonucleares hasta los 150 MeV. La versión 2.5.0 (2007) amplía el número de partículas tratadas hasta 35, incluyendo leptones, bariones, mesones e iones ligeros (deuterio, tritio, He-3 y alfa), y en la versión 2.7.0 (2011) se añade el transporte de iones pesados. MCNPX está programado en Fortran 90, y puede ejecutarse sobre distintas plataformas, como Unix, Linux o Windows.

Para llevar a cabo una simulación, el usuario debe escribir un fichero de entrada, en formato texto (.txt), y los resultados y la información sobre la simulación quedan recogidos en otro fichero de texto de salida (.txto). El fichero de entrada se estructura en tres bloques: *cell, surface* y *data card*, que a grandes rasgos contienen lo siguiente:

- 1. Primer bloque o *cell card*: especifica la geometría, mediante una serie de regiones o *celdas* que componen el espacio de nuestro experimento. Las celdas se definen como regiones interiores o exteriores de *superficies*, así como mediante uniones, intersecciones o exclusiones de las mismas.
- 2. Segundo bloque o *surface card*: en él se definen las superficies o contornos (planos, esferas, cilindros, etc) usados para crear las celdas.
- 3. Tercer bloque o *data card*: donde se especifica la física del problema y las opciones de la simulación y salida de datos. Incluye: los materiales empleados para rellenar las celdas; las fuentes de partículas: su posición, tipo de partícula y características como dirección y energía (*source especification*); los tipos de medidores (*tallies*). En la Tabla 6.1 se muestran los principales medidores o *tally card* de MCNPX 2.5.0.

Estos *tally card* principales se pueden emplear en conjunción con otros *tallies* predefinidos en MCNPX, como por ejemplo el *tally energy* E, o *tally time*, T, con los que se definen intervalos de energía o tiempo para la salida del *tally* principal. Para nuestra simulación utilizaremos fundamentalmente los siguientes *tallies*:

- F1 para el cálculo del flujo de neutrones que recibe la muestra de Au, en conjunción con el *tally* E para obtener sus espectros en energía.
- F8 y E para simular la respuesta de nuestro detector gamma HPGe a las gammas procedentes del ¹⁹⁸Au y ⁷Be.
- FT8 para simular las activaciones producidas por los neutrones en el ¹⁹⁷Au.

7.2. Características de la reacción $^{7}Li(p,n)^{7}Be$

En la reacción ⁷Li(p,n)⁷Be los protones incidentes reaccionan con el ⁷Li, y la energía del protón es distribuida entre los distintos nucleones llegando a equilibrio térmico y formando un núcleo compuesto intermedio ⁸Be, el cual se desintegra a ⁷Be emitiendo un neutrón en un tiempo de alrededor de 200·10⁻¹⁵ s. La reacción es endotérmica, en la tabla 6.2 se indican el Q-value y el umbral de reacción. El núcleo ⁷Be tiene un primer estado excitado en E^{*}=0,42908 MeV, que si se alcanza representa una segunda fuente de neutrones ⁷Li(p,n)⁷Be^{*}, pero para alcanzarlo se requiere una energía umbral de protón de E_p =2,371382 MeV, superior a las energías de protón utilizadas en los experimentos realizados en esta tesis. En la Figura 6.2 se representa la sección eficaz de la reacción ⁷Li(p,n) hasta los 3 MeV de energía de protón.

Tabla 7.2: Q-value y energía umbral de la reacción ⁷Li(p,n) [55]

Productos de la	Q-value (keV)	Umbral (keV)
reacción $^{7}\text{Li}+^{1}\text{H}$		
$\gamma + n + {}^7Be$	-1644,2402 0.0711	1880,3566 <i>0.0813</i>

Al ser una reacción de núcleo compuesto, el sistema pierde la información acerca de su formación, y en el sistema de referencia del centro de masas la emisión de neutrones se produce en todos los ángulos, con una distribución angular isótropa. Sin embargo, desde el sistema de referencia del laboratorio, tal como se muestra en la fig 6.3, los neutrones se emiten en un cono colimado en la dirección del protón incidente. El ángulo máximo de apertura del cono vendrá determinado por la energía de protón.

Un flujo de protones de una enegía E_p al incidir en una muestra de ⁷Li de va perdiendo energía progresivamente, y reaccionando con el ⁷Li en todo el continuo de energías desde E_p hasta que esta se reduce por debajo del umbral de reacción (si el grosor de la muestra es suficiente). El flujo de neutrones emitido presenta como consecuencia una distribución continua en energía, hasta una energía de corte. La Figura 6.4 muestra las distribuciones angulares y en energía de los neutrones emitidos para varias energías de protón E_p entre el umbral (1880 keV) y 2 MeV. La Figura 6.5 muestra la distribución en energía y ángulo del flujo de neutrones producido para una energía de protón de Ep=1912 keV.



Figura 7.2: Sección eficaz de la reacción $^{7}Li(p,n)$ [26]



Figura 7.3: Esquema de la cinemática de la reacción $^7\mathrm{Li}(\mathrm{p,n}).$



Figura 7.4: Distribuciones en energía (izq) y ángulo (der.) para varias energías de protón en la reacción $^7{\rm Li}({\rm p,n})$ [42].



Figura 7.5: Espectro en energía de neutrones para distintos ángulos de emisión, de [75].

7.3. Cálculo analítico de distribución de activaciones en la muestra de Au.

A partir de la distribución angular de neutrones $\frac{dN}{d\theta}$ de un flujo QMNS podemos calcular la distribución de activaciones $\frac{da}{d\theta}$ que producirían en el ¹⁹⁷Au esos neutrones de una fuente puntual, en función del ángulo de emisión θ :

$$\frac{da}{d\theta} = \int_0^{105} \sigma\left(E\right) \cdot \frac{d^2 N}{dE d\theta} dE \cong \int_0^{105} E^{-0.6} \cdot \frac{d^2 N}{dE d\theta} dE \quad , \tag{7.1}$$

La geometría para una fuente puntual la representamos en la Figura 6.6, y en ella vemos que

$$ds = 2\pi r \cdot drr = D \tan \cdot (\theta) \tag{7.2}$$



Figura 7.6: Geometría del experimento.

Teniendo en cuenta esta geometría, cambiamos de representación la distribución en función de la distancia r al centro de la muestra de Au, y obtenemos el perfil de activaciones $\frac{da}{ds}$ que produciría en el Au una fuente puntual de neutrones y lo representamos en la Figura 6.7.

$$\frac{da}{ds} = \frac{1}{2\pi r} \cdot \frac{da}{dr} \tag{7.3}$$

Este perfil lo podemos representar en 3D con la ayuda del software Octave [97], obteniendo la densidad buscada de activaciones por fuente puntual, $\frac{d^2a}{rd\varphi dr}$. Se muestra en la Figura 6.8.

A partir de esta distribución, mediante el software Octave [82] obtenemos finalmente las activaciones $\frac{d^2 A_{Au}}{rd\varphi dr}$ producidas en el ¹⁹⁷Au, como una suma de las activaciones producidas por fuentes puntuales uniformemente distribuidas en un disco de ⁷Li de 5mm de radio. La representamos en la Figura 6.9.

El perfil $\frac{dA_{Au}}{ds}$ lo representamos en la Figura 6.10, comparado con el un perfil uniforme de la lámina de ⁷Li,



Figura 7.7: Perfil de activaciones da/ds producidas en Au por fuente puntual de neutrones.



Figura 7.8: Representación 3D de la densidad de activaciones en Au por fuente puntual de neutrones, generado con OCTAVE [97] .



Figura 7.9: Representación 3D de activaciones en la lámina de Au.



Figura 7.10: Perfil de activaciones en láminas de Au y Li.

7.4. Cálculo analítico de la absorción gamma en materiales.

Un haz estrecho de fotones monoenergéticos de intensidad I₀, tras atravesar un material de espesor másico N y coeficiente de atenuación másico μ/ρ emerge con una intensidad I, dada por la expresión [56]:

$$I = I_0 \cdot e^{-(\mu_{/\rho})N} . (7.4)$$

El factor de absorción gammas para una distancia h en un material sería por tanto:

$$K_{\gamma} = \frac{I}{I_0} = e^{-\mu \cdot \mathbf{h}}$$
 (7.5)

Siendo d el espesor del material, y teniendo en cuenta el ángulo sólido cubierto por el detector HP Ge, el factor de absorción para nuestra geometría de las gammas del ⁷Be se calculará integrando la expresión anterior para las posibles trayectorias en función del ángulo θ :

$$K_{\gamma 478} = \frac{\int_0^{\frac{\pi}{4}} 2\pi e^{-\frac{\mu d}{\cos\theta}} sen\theta d\theta}{\int_0^{\frac{\pi}{4}} 2\pi sen\theta d\theta} \quad .$$
(7.6)

En el caso de las gammas del ¹⁹⁸Au, las activaciones se encuentran distribuidas en todo el espesor de oro, por lo que tendremos que integrar la expresión 8.2 en ese espesor d para calcular el factor de corrección:

$$K_{\gamma412} = \frac{\int_0^d \int_0^{\frac{\pi}{4}} 2\pi e^{-\frac{\mu x}{\cos\theta}} \sin\theta d\theta dx}{\int_0^d \int_0^{\frac{\pi}{4}} 2\pi \sin\theta d\theta dx} \quad .$$
(7.7)

En la Figura 6.11 se muestran los valores de μ/ρ relevantes para nosotros, obtenidos de [73].

Los resultados del cálculo se muestran en la Tabla 6.3.

Material	${f E}_\gamma~({f keV})$	$\mu \ [1/cm]$	d (mm)	$\mathbf{K}_{\gamma 478}$
Li	478	0,040874	$0,\!38$	0,99817
Cu	478	0,768768	0,50	0,95554
Au	478	3,188360	0,10	0,96298
Au	412	4,053000	0,10	0,9764

Tabla 7.3: Transmisiones gamma en materiales

La transmisión sucesiva de la gamma 478 keV del $^7\mathrm{Be}$ a través del Li, Cu y Au se calculará como:

$$K_{\gamma 478} = K_{\gamma 478 \text{Li}} \cdot K_{\gamma 478 \text{Cu}} \cdot K_{\gamma 478 \text{Au}} = 0,9185$$

En la Tabla 6.4 se resumen los resultados obtenidos.



Figura 7.11: Curvas de de $\mu/\rho,$ elaboradas con datos de NIST [73].

Tabla 7.4: Factores totales de transmisión de gammas de 7Be y ^{198}Au

$$\frac{\mathbf{K}_{\gamma 478} (Be)}{0,9185} \quad \mathbf{K}_{\gamma 412} (Au) \quad \frac{\mathbf{K}_{\gamma 478} (Be)}{\mathbf{K}_{\gamma 412} (Au)}$$

7.5. Cálculo analítico de la eficiencia geométrica del detector gamma.

La eficiencia geométrica viene dada por el ángulo sólido Ω cubierto por la entrada del detector frente a la fuente gamma. En el caso de una fuente gamma puntual que situásemos en el eje del detecto el ángulo sólido Ω_0 vendría dado por la expresión:

$$\Omega_0 = 2\pi (1 - \cos\left(\frac{\theta_p}{2}\right)).$$

Con la geometría de nuestro experimento el ángulo θ_p tendría un valor de $\theta_p = 90^{\circ}$, y $\Omega_0 = 1,8403$. Cuando la fuente gamma no es puntual sino que tiene una cierta extensión, como el caso de nuestro experimento, emisiones desde distintos puntos de la muestra verán ángulos sólidos distintos. En ese caso el ángulo sólido visto desde un punto situado a una distancia r del centro (independiente de φ , dada la simetría de la geometría) es:

$$\Omega(\mathbf{r}) = 2\pi \left(1 - \cos\left(\frac{\theta(r)}{2}\right)\right) \,, \tag{7.8}$$

con

$$\theta\left(r\right) = \tan^{-1}\left(\frac{R-r}{D}\right) + \tan^{-1}\left(\frac{R+r}{D}\right) .$$
(7.9)

Suponiendo una fuente extensa con una *distribución uniforme* de la emisión gamma, es decir una distribución uniforme de núcleos activados en la muestra, la eficiencia geométrica vendrá dada por el *ángulo sólido promedio*:

$$\bar{\Omega} = \frac{\iint \Omega(r) \ r dr d\varphi}{\iint r dr d\varphi} \quad . \tag{7.10}$$

En general, si la distribución de la emisión gamma no es uniforme en toda la superficie, sino que la densidad de núcleos activados es $\frac{d^2A}{rd\varphi dr}(r,\varphi)$, la expresión de la eficiencia geométrica será:

$$\bar{\Omega} = \frac{\iint \Omega\left(r\right) \frac{d^2 A}{r d\varphi dr} r dr d\varphi}{\iint \frac{d^2 A}{r d\varphi dr} r dr d\varphi} \quad . \tag{7.11}$$

Capítulo 7. Anexos

Capítulo 8 Publicaciones.





Measurement of the ¹⁹⁷Au(n, γ) stellar cross section at kT=30 keV by activation.

Pablo Jiménez-Bonilla¹

Atomic, Molecular and Nuclear Physics Department, University of Seville Seville, Spain E-mail: jimenezbpablo@gmail.com

Javier Praena

Atomic, Molecular and Nuclear Physics Department, University of Seville Centro Nacional de Aceleradores Seville, Spain E-mail: jpraena@us.es

The Maxwellian-averaged cross-section (MACS) of ¹⁹⁷Au(n, γ) at kT=30 keV is used in Nuclear Astrophysics as a reference for activation measurements relevant to the s-process. The traditionally adopted value, (582±9) mb, corresponds to an accurate activation measurement carried out by Ratynski & Käppeler in 1988. Recently, new measurements with the time-of-flight technique have reported values about 5 % higher than Ratynski&Käppeler. Moreover, the evaluations of different data base provide values from 613-618 mb. In our work we have measured the MACS of ¹⁹⁷Au(n, γ) at kT=30 keV by activation, at 3 MV Tandem Pelletron accelerator at CNA (Seville). We have found a value equal to (626±25) mb. We describe the experiment and we discuss the analysis, including MCNPX simulations and a correction proposed for flat samples, and a comparison with previous and recent measurements.

XIII Nuclei in the Cosmos 7-11 July, 2014 Debrecen, Hungary

1

Speaker

Pablo Jiménez-Bonilla

1. Introduction.

Neutron capture processes (s-process and r-process) are the main responsible for the nucleosynthesis of the main part of the heavy elements beyond iron [1]. In the helium-burning phase in red giants stars, neutrons are produced via (α ,n) reactions. Neutrons are quickly thermalized through elastic scattering, and their velocities are represented by a Maxwell-Boltzmann distribution (or maxwellian in unit of energy). A Maxwellian- averaged crosssection (MACS) or stellar cross-section of the involved isotopes is used as a key parameter for modeling the stellar nucleosynthesis processes. This MACS can be calculated analytically at any kT if the differential neutron-capture cross-section, measured as a function of the energy (i.e. using time-of-flight technique) is known (Eq.1).

$$MACS \equiv \langle \sigma \rangle = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{\int_0^\infty \sigma(E) \cdot E \cdot e^{-\frac{E}{kT}} dE}{\int_0^\infty E \cdot e^{-\frac{E}{kT}} dE}$$
(1)

However, as shown by Beer & Käppeler [2], MACS at kT≈25 keV can be measured almost directly for many isotopes using activation technique. In this method, a quasi-Maxwellian neutron spectrum is generated using the ⁷Li(p,n)⁷Be reaction. The best approach to a Maxwell spectrum is achieved when the proton energy is adjusted to E_p =1912 keV [3]. With the criterion of overlapping of areas the optimal kT was selected equal to 25 keV. After irradiating the sample, if the nucleus produced by the neutron capture reaction is radioactive (with a convenient half-life), the subsequent gamma activity measurement will allows us to obtain the experimental neutron capture cross section. This experimental cross section is then a quasi-Maxwellian averaged cross section, and this value must be corrected later, taking into account the different between the quasi-maxwellian spectrum and a true Maxwellian one. In addition to this, if the MACS at kT=30 keV is needed an extrapolation from 25 to 30 keV is necessary. For both, correction and extrapolation, the knowledge or assumption of the cross-section as a function of the energy is mandatory. This activation method has been extensively used for MACS measurements of many isotopes relevant to the s-process [4].

A temperature of T=348·10⁶ K, typical of helium-burning in red giants stars, corresponds to an energy of kT=30 keV. For activation measurements, the MACS of ¹⁹⁷Au(n, γ) at kT=30 keV is used as a reference [5]. Its traditionally adopted value was obtained by Ratynski & Käppeler, in an accurate activation measurement using a spherical segment gold sample [3]. They reported a value equal to (582±9) mb. Recently, new measurements of the ¹⁹⁷Au(n, γ) cross section with time-of-flight (TOF) technique at n_TOF facility at CERN reported a value of (611±22) mb [6]. The evaluations performed in different data base show values ranging from 613 to 618 mb [7]. In this work, we have measured the MACS of ¹⁹⁷Au(n, γ) at kT=30 keV by activation at the Centro Nacional de Aceleradores (CNA). A gold flat sample was used and a so-called "flat sample correction" is proposed and is used for the comparison with Ratynski & Käppeler.

2. Experimental procedure.

2.1 Experimental setup and activation.

The activation was carried out at the 3MV Tandem Pelletron accelerator at CNA (Seville). The proton energy was adjusted to $E_p=1912$ keV. The accelerator terminal and the 90° analyzing magnet were carefully calibrated before the experiment, using the 991.86 keV 27 Al(p, γ) 28 Si and 2409 keV 24 Mg(p,p' γ) 24 Mg resonances, and with the Rutherford backscattering technique for alpha beam of higher terminal voltages. The energy spread for proton beam at these energies was less than 1 keV.

The setup consisted of a copper backing that held the metallic lithium target and the gold sample. The dimensions of the backing were $3x3x0.8 \text{ cm}^3$ with a centered cylinder hole of 1 cm in diameter and 0.75 cm in height to place the thick lithium layer (of 380 µm thickness). The backing contains an internal cooling water circuit (centered toroid). The gold sample, 2.5cm diameter and 0.1mm thickness, was secured to the back surface of the backing. The copper backing between the lithium layer and the gold sample was 0.5 mm thickness. At the proton beam energy of the experiment, $E_p=1912 \text{ keV}$, all the neutrons produced by the ⁷Li(p,n) reaction are kinematically collimated into a forward cone of about 140° opening angle. So, except for scattered neutrons at high angles, the entire neutron flux is completely impinging on the gold sample. Metallic lithium reacts both with nitrogen and oxygen at room temperature. Therefore, the lithium foil was always stored and manipulated in inert gas to avoid its degradation. Neutron irradiation time was 4 h 45 min. During the irradiation, neutron dosimetry and proton current on the target was recorded in order to correct possible beam instabilities.

2.2 Activity measurement.

The produced ⁷Be and ¹⁹⁸Au have a half-life of 53,29 and 2,6947 days respectively. After the irradiation, a HPGe Ortec GMX gamma detector was placed at 28 mm distance from the backing, in order to measure the gamma-rays lines of 477,6 keV and 411,8 keV emitted in the decay of the beryllium and gold, respectively. Activity was measured during 6 h 30 min. Time between end of irradiation and beginning of activity measurement was 15 min.

3. Data analysis.

The cross section can be deduced if the number of activated nuclei *A*, the neutron fluence through the sample Φ , and the sample mass thickness *N* are known (eq. 2).

$$\sigma_{exp} = \frac{1}{N_{Au}} \cdot \frac{A_{Au}}{\Phi} \quad (2) \qquad \sigma_{exp} = \frac{1}{N_{Au}} \cdot \frac{C_{Au}}{C_{Be}} \cdot \frac{\left[f_{d} \cdot I_{\gamma} \cdot \varepsilon \cdot K_{\gamma}\right]_{Be}}{\left[f_{d} \cdot I_{\gamma} \cdot \varepsilon \cdot K_{\gamma}\right]_{Au}} \cdot \frac{1}{K_{n}} \cdot \frac{1}{K_{f}} \quad (3)$$

A, the number of activated nuclei, can be determined from the γ -ray spectra measured with the HPGe detector. In eq 3, C is the number of events registered by the detector, I_{γ} is the gamma intensity of the 477,6 keV and 411,8 keV lines, corresponding to 10,44% and 95,54% respectively; ε is the HPGe gamma detector efficiency (including energy efficiency and geometric efficiency that takes into account the extended samples effects); K_{γ} is the correction due to the gamma absorption and scattering in materials, before the gammas reach the detector; K_n reflects the neutron scattering (meanly due to Cu backing); K_f is a correction due to the flat sample used in our experiment. It must be noticed that the Au sample thickness as seeing by neutrons passing through Au depends on the entering angle θ inside the sample. Ratynski & Käppeler [3] used a semi-spherical sample to appear equally thick to all neutrons. The factor f_d relates the number of the decay nuclei during the measurement time (t_m) with the total number of activated nucleus (during irradiation time, t_a). It also includes the decay nuclei during the waiting time (t_w), thus the time between the end of neutron irradiation and the beginning of activity measurement with the HPGe detector, and $\phi(t)$ is the neutron flux (eq. 4).

$$f_{d} = \frac{e^{-\lambda t_{a}} \cdot \left(\int_{0}^{t_{a}} \phi(\tau) \cdot e^{\lambda \tau} d\tau\right)}{\int_{0}^{t_{a}} \phi(\tau) \cdot d\tau} \cdot \left(e^{-\lambda t_{w}}\right) \cdot \left(1 - e^{-\lambda t_{m}}\right)$$
(4)

 C_{Au} and C_{Be} were counted using Canberra GENIE2000 software (fig 1) connected to the acquisition system consisting of HPGe, a high voltage supply HVPS 9645 Canberra and digital signal processor DSP 9660 Canberra.



Figure 1: Au and Be gamma peaks (Genie2000).

Figure 2: MCNPX simulation.

Mass thickness N_{Au} was obtained with accurate measurements of mass (0.3820 g) and surface (206,12 mm²) of the gold sample, cutting the gold sample after irradiation for a more precise measurement of the activated region. The curve of the gamma energy efficiency of the HPGe was first experimentally calculated using calibrated point sources. Then, a series of MCNPX simulations for those point sources and the HPGe detector were carried out, adjusting the geometry and dead layer thickness of the germanium crystal from its nominal value provided by the manufacturer to a value that fits better with the experimental point sources efficiency. This allowed getting a more reliable modelling of the HPGe [8] for a subsequent full MCNPX simulation (fig 2) to calculate ε and K_{γ} .

For the K_n calculation, a Fortran code [9] was used to generate the energy-angle distribution of the neutrons for the ⁷Li(p,n) reaction, as the input for MCNPX. The code and the MCNPX simulations for the proton energy (1912 keV) involved in this experiment were tested with experimental data, see details in [10]. For K_f calculation, the angle-energy distribution of the neutron spectrum $\phi(\theta, E)$ and the energy dependence of the ¹⁹⁷Au(n, γ) cross section must be taken into account. We propose this analytical calculation for K_f (eq. 5):

$$K_f = \frac{\iint \sigma(E) \cdot \frac{1}{\cos \theta} \cdot \phi(\theta, E) \, dE \, d\theta}{\iint \sigma(E) \cdot \phi(\theta, E) \, dE \, d\theta} \tag{5}$$

Pablo Jiménez-Bonilla

Finally, in order to obtain the MACS, we need to correct our experimental cross-section (σ_{exp}) due to the difference between a quasi-maxwellian neutron spectrum and a true maxwellian neutron spectrum at kT=25 keV (eq. 6 and 7), so-called K_{max} factor.

$$MACS = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot K_{max} \cdot \sigma_{exp} \quad (6) \qquad \qquad K_{max} = \frac{\int_{0}^{\infty} \sigma(E) \cdot E \cdot e^{-\frac{E}{kT}} dE}{\int_{0}^{\infty} \sigma(E) \cdot \phi(E) dE} / \int_{0}^{\infty} \phi(E) dE} \quad (7)$$

To perform the calculation of K_{max} and K_f we needed the experimental neutron spectrum and the energy-dependence of the cross-section. For the neutron spectrum, few experimental measurements are available [6,11,12]. For the gold cross-section we used ENDF/B-VII.1. For kT=25 keV, we find this correction to be K_{max25} = 0,955. Taken into account that energy dependence of the cross-section, we can extrapolate a MACS calculated for kT=25 to MACS at kT=30 keV, resulting MACS_(kT=30)=0,901*MACS_(kT=25).

	Value	Uncert.(%)	
C _{Au}	32950	0,7	$\varepsilon_{\rm Be}/\varepsilon_{\rm Au}$
C _{Be}	332000	0,3	N _{au}
$f_{\rm dAu}$	0,06718	0,01	$K_{ m f}$
$f_{\rm dBe}$	0,00353	0,01	K _n
$K_{\gamma \mathrm{Au}}$	0,9801	0,3	K_{max25}
K _{γBe}	0,9286	0,3	Total u

We resume the experimental data and corrections in table 1.

	Value	Uncert.(%)
$\varepsilon_{\rm Be}/\varepsilon_{\rm Au}$	0,834	1,8
N _{au}	5,67E-4 at/b	1,5
K _f	1,263	2
K _n	0,977	0,3
K_{max25}	0,955	1,5
Total uncont	~ 404	

incert.

Table 1.Experimental data and corrections

4. Results and conclusions

We obtain for the MACS (at kT=30) a value of (626±25) mb. This value is in good agreement with n_TOF differential measurement (611±22) mb, the ENDF/B-VII.1 evaluation value (614 mb), a very recent TOF measurement performed with a truncated neutron spectrum from 3.5 to 84 keV at GELINA 613 mb [13], and it is higher than the reference Ratynski & Käppeler activation measurement [5]. Our experimental cross section at kT=25 keV, σ_{exp} = (645 ± 25) mb, is also consistent with the result provided in recent activation measurements, (616±17) mb [12].

Comparing with Ratynski & Käppeler experiment [5], apart from the flat sample correction, which in principle was not necessary for the R&K measurement due to the spherical Au sample (although the neutron source wasn't perfectly punctual), we found an important difference for the estimated neutron scattering term K_n . For our setup, with 0.5 mm thick Cu backing between Li and Au, with MCNPX we checked that the distortion in the spectrum is not significant, and we found a total of 2,3% neutron loss due to scattering. However, Ratynski &

Käppeler indicates only 1,8% neutron loss at the Au sample for a 1 mm thick Cu backing. We performed a MCNPX simulation of the Ratynski & Käppeler setup and the calculation indicates more than 5% neutron loss for a 1 mm thick Cu backing. Therefore, one of the possible factors contributing to the difference between Ratynski& Käppeler measurement and recent ones could be an underestimation of this neutron loss.

New measurements are on-going at CNA to confirm this result, including measurements with an improved method of generation of maxwellian neutron spectra as showed in [9]. With a controlled proton energy-shaped beam it is possible to generate a true maxwellian spectrum at different kT from 30 to 60 keV [14].

References

- E. M. Burbidge, G. R. Burbidge, W. A. Fowler, F. Hoyle, "Synthesis of the elements in stars" Rev. Mod. Phys., vol. 29, nº 4, pp. 547-650, 1957.
- [2] H. Beer, F.Käppeler. "Neutron capture cross sections on ¹³⁸Ba, ^{140;142}Ce, ^{175;176}Lu, and ¹⁸¹Ta at 30 keV: Prerequisite for investigation of the ¹⁷⁶Lu cosmic clock". Phys. Rev. C, vol. 21, nº 2, p. 534–544, 1980.
- [3] W.Ratynski, F.Käppeler. "Neutron capture cross section of ¹⁹⁷Au: A standard for stellar nucleosynthesis" Phys. Rev. C, vol. 37, nº 2, p. 595–604, 1988.
- [4] KADoNiS v0.3 The third update of the "Karlsruhe Astrophysical Database of Nucleosynthesis in Stars" I. Dillmann, M. Heil, F. Käppeler, R. Plag, T. Rauscher, and F.-K. Thielemann AIP Conf. Proc. 819, 123; online at http:// www.kadonis.org.
- [5] Rolfs, C. E. & Rodney, W. S., Cauldrons in the Cosmos: University of Chicago Press, 1998.
- [6] C. Lederer et al. (n_TOF collaboration). ⁽¹⁹⁷Au(n,γ) cross section in the unresolved resonance region". Phys. Rev. C, vol. 83, n° 034608, 2011.
- [7] ENDF/B VII: M. Chadwick et al., Nucl. Data Sheets 112, (2011) 2887
- [8] F. Courtine, T. Pilleyre, S. Sanzelle, D. Miallier, "Ge well detector calibration by means of a trial and error procedure using the dead layers as a unique parameter in a Monte Carlo simulation", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 596, pp. 229-234 (2008).
- [9] P. F. Mastinu, G. Martín-Hernández and J. Praena. "A method to obtain a Maxwell-Boltzmann neutron spectrum for astrophysics studies". Nucl. Inst. and Meth. A 601 (2009) 333-338.
- [10] J. Praena, P.F. Mastinu, M. Pignatari, J.M. Quesada, J. García-López, M. Lozano, N. Dzysiuk, R. Capote and G. Martín. "*Measurement of the MACS of* ¹⁸¹*Ta*(n, γ) at kT=30 keV as a test of a method for maxwellian neutron spectra generation", Nucl. Inst. and Meth. A, 727 1-6 (2013).
- [11] C. Lederer, F. Käppeler ed ad., «Definition of a standard neutron field with the ⁷Li(p,n)⁷Be reaction» Phys. Rev C, vol. 85, 055809, 2012.
- [12] G. Feinberg, M. Friedman, A. Krása ed ad., «Quasi-stellar neutrons from the ⁷Li(p,n)⁷Be reaction with an energy-broadened proton beam,» Phys. Rev. C vol. 85, nº 055810, 2012.
- [13] C. Massimi et al., "Neutron capture cross section measurements for ¹⁹⁷Au from 3.5 to 84 keV at GELINA". Eur. Phys. J. A (2014) 50: 124
- [14] P. F. Mastinu, J. Praena, G. Martín-Hernández, M. Pignatari, G. Prete. "Status of the Legnaro Neutron Source facility (LENOS)", Physics Procedia 26 (2012) 261 – 273.

Maxwellian Neutron Spectrum generation and Stellar Cross-Section measurements: measurement of the $^{197}Au(n,\gamma)$ MACS.

P Jiménez-Bonilla^{1,3,*}, J Praena^{2,3}, J M Quesada¹

¹Atomic, Molecular and Nuclear Physics Department, University of Seville, Spain. ²Atomic, Molecular and Nuclear Physics Department. University of Granada, Spain. ³Centro Nacional de Aceleradores (US-JA-CSIC), Spain.

E-mail: jimenezbpablo@gmail.com

Abstract. Maxwellian-averaged cross-sections (MACS) are needed as an input for the models of stellar s- and r-processes nucleosynthesis. MACS can be obtained from activation measurements, irradiating a sample with the neutron field generated by the $^{7}Li(p,n)^{7}Be$ reaction at 1912 keV proton energy. At this energy, the neutron energy spectrum is close ($R^2 \leq 0.9$) to a Maxwellian one of kT=25 keV. However, it was shown that shaping the energy of the incident proton beam is possible to generate a neutron field with an energy spectrum much closer to a real Maxwellian (R²>0.995), therefore avoiding or minimizing corrections in the MACS calculation. We show a preliminary result of an experiment performed at JRC-IRMM (Geel) to confirm our method. We have measured the MACS₃₀ (kT=30 keV) of the $^{197}Au(n,\gamma)$ reaction, at CNA (Seville). We obtained 612 mb, in good agreement with the latest measurements.

1. Introduction

Neutron capture is the main process responsible for the nucleosynthesis of the major part of the elements beyond iron [1]. In the helium-burning phase in red giants stars, neutrons are produced via (α,n) reactions. These neutrons are quickly thermalized through elastic scattering, and their velocities are represented by a Maxwell-Boltzmann distribution (or Maxwellian in unit of energy). A temperature of T=3.48·10⁶ K, typical of He-burning in red giants stars, corresponds to a Maxwellian distribution with kT=30 keV. The Maxwellian-averaged cross-section (MACS) or stellar cross-section of the involved isotopes is a key parameter for modeling the stellar sites. The MACS is defined as the ratio between $\langle \sigma v \rangle$ (reaction rate per particle pair) and v_T (particle most probably thermal velocity for a temperature T). Its expression is showed in eq. 1.

$$MACS \equiv \langle \sigma \rangle = \frac{\langle \sigma v \rangle}{v_T} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{1}{(kT)^2} \cdot \int_0^\infty \sigma(E) \cdot E \cdot e^{-\frac{E}{kT}} dE \qquad . \tag{Eq. 1}$$

MACS can be obtained by time-of-flight (TOF) and activation techniques. In case of activation, a neutron flux with an energy spectrum close to a Maxwellian at 25 keV (MACS₂₅) (\approx 90% area

Content from this work may be used under the terms of the Creative Commons Attribution 3.0 licence. Any further distribution of this work must maintain attribution to the author(s) and the title of the work, journal citation and DOI. Published under licence by IOP Publishing Ltd

To whom any correspondence should be addressed.

overlapping) can be generated using the ⁷Li(p,n)⁷Be near the threshold [2,3]. To obtain the MACS, the experimentally measured cross-section value must be corrected for spectrum difference. In addition to this, if the MACS₃₀ is needed an extrapolation from the MACS₂₅ is necessary. For both, correction and extrapolation, the $\sigma(E)$ knowledge or assumption is mandatory (including resonances). However, it was shown [4] that it's possible to generate a more realistic (>99% area overlapping) Maxwellian, avoiding $\sigma(E)$ assumption and minimizing the corrections.

2. Maxwellian Neutron Spectrum generation method: experiment and simulations.



Figure 1. Simulated neutron spectrum for a GPD (Ec=1851 keV, FWHM=154 keV) on Li target.



Figure 2. Normalized TOF spectra at 0° (black) and 90° (red).



Figure 3. 0° TOF spectrum compared to SIMPRO procedure.

Our method for the production of Maxwellian Neutron Spectra is based on the shaping of the proton beam to a Gaussian-like distribution (GPD), introducing a foil degrader upstream of the lithium target [4]. The method was checked in [5,6]. Different combinations of proton energy and degrader material and thickness are suitable for generating Maxwellian-30. The GPDs were measured [5] and neutron spectra were obtained by means of analytical descriptions of the differential neutron yield in angle and energy of the ⁷Li(p,n) reaction and Monte Carlo (MC) simulations of the neutron transport through the experimental setup (SIMPRO procedure) [5,6]. Fig.1 shows the neutron spectrum integrated over the Au sample (see Section 3) obtained with SIMPRO and compared to Maxwellian-30.

For an experimental confirmation of our method, we carried out an experiment at Van de Graaff at JRC-IRMM, briefly described here; more details will be given in a forthcoming paper. The proton beam energy was 3.7 MeV and the Al degrader 75 µm in thickness. We used the usual setup at IRMM for neutron spectrometry by time-of-flight (TOF) technique in this energy range that consisted of 625 kHz and 1-2 ns pulsed proton beam, with ⁶Li-glass detectors located at 52 cm, more details of the electronic chain, detectors and materials can be found for similar experiments at IRMM [7].

Our experiment suffered from a contamination due to the proton beam halo at the accelerator source. At source, the beam was chopped by means of deflection plates sweeping it across a small aperture. When the proton beam was not passing across the aperture, a small part of the halo passed through it and was bunched. This effect is clearly shown in Fig.2, where the black line corresponds to TOF spectrum at 0° and red line at 90° (same detector). The highest peak in both spectra (t=0-50 ns) corresponds to prompt γ rays (so-called γ -flash) from reactions in the Al degrader, LiF (thick) target and Cu backing. Then, for higher times, neutrons are detected at 0° (from ≈80-400 ns) and not at 90°. The lack of separation between the γ -peak and the neutron

doi:10.1088/1742-6596/940/1/012044

"panettone" is due to the beam halo, producing a larger γ -peak in time than usual proton beam with no halo, and the high energy neutrons (up to 250 keV or 76 ns). Since the system was based on the pulseheight information of the detector, it was not possible to distinguish the γ -n contamination by combined pulse-shape analysis and TOF information. However, the neutron contamination is three orders of magnitude lower than the γ one, the same ratio than γ -flash and neutron "panettone" in Fig.1, therefore a reasonable clean TOF spectrum can be obtained by the subtraction of the 90° to 0° spectrum, both normalized to a long counter used as neutron monitoring. Fig.3 shows a clean 0° TOF spectrum compared to a time spectrum obtained with our SIMPRO procedure. In this case, SIMPRO consists of the inclusion in a MCNP file of the analytical description of the differential neutron yield in angle and energy of the ⁷Li(p,n) for GPD (Ec=1851 keV, FWHM=154 keV). The MCNP file contains a detailed description of the ⁶Li-glass detector at 52 cm from LiF target and Cu backing. Then, the time spectrum is obtained by means of Tally Time Card and a Tally Multiplier Card for the ⁶Li(n,t)⁴He reaction on the cell which contained the ⁶Li-glass. The good agreement between the clean TOF spectrum and the SIMPRO suggests a preliminary experimental confirmation of our method and to continue cleaning all the measured angles.

3. ¹⁹⁷Au(n,γ) Stellar Cross Section measurement at kT=30 keV.

Gold is not a standard in the astrophysical energy range. However, it is commonly used as reference for neutron-capture cross-section measurements with $MACS_{30}=582\pm9$ mb[8]. A large effort has been made to solve the $MACS_{30}$ discrepancies between different experiments and techniques [8], in particular between TOF ones and the activation of [3]. Recently, we carried out the experiment of [3], quasi-Maxwellian, with Au flat sample and we obtained a value slightly higher, 626±25 mb [9]. The main difference between $MACS_{30}$ value in [3] and [9] is associated to the use of MC simulations for the neutron scattering correction. In [8] a new recommend value is given, 613±7 mb. Here, we

Table 1. Measured values and corrections.					
Value ε (%)					
C _{Au}	64100	0.7	Gamma counts.		
C _{Be}	545800	0.3	Gamma counts.		
IγAu	95.54	0.1	Gamma intensity		
$I_{\gamma Be}$	10.45	0.04	Gamma intensity		
N _{Au}	6.4E-4	1.5	Mass thickness.		
fdAu	0.1281	0.01	Decay correction.		
$f_{\rm dB}$	0.0070	0.1	Decay correction.		
$\mathcal{E}_{\mathrm{Be/Au}}$	0.80	1.9	Gamma efficiency.		
$K_{\rm n}$	1.75	1.3	Neutron flux corr.		
$K_{\rm macs}$	1.01	1.6	Maxwellian correct.		

measure the MACS₃₀ with our method for Maxwellian-30 generation by means of GPD. Our measurement was carried out at the 3MV Tandem accelerator at CNA (Seville) with the same setup and procedure detailed in [5],[6] and [9]. Irradiation time was 210 min and measured time was 13h. A complete MCNPX simulation (gammas and neutron transport) of the setup and HPGe was carried out for the needed corrections [9]. Eq. 2, 3 and table 1 indicate the measured values and corrections. The obtained result for the ¹⁹⁷Au(n,
$$\gamma$$
) MACS₃₀ is 612 ± 20 mb, very similar to our previous measurement [9] and the new recommend value 613±7 mb [8].

$$MACS = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot K_{macs} \cdot \sigma_{exp}$$
 (Eq. 2) $\sigma_{exp} = \frac{1}{N_{Au}} \cdot \frac{A_{Au}}{\Phi}$

$$\sigma_{exp} = \frac{1}{N_{Au}} \cdot \frac{A_{Au}}{\Phi} = \frac{1}{N_{Au}} \cdot \frac{C_{Au}}{C_{Be}} \cdot \frac{\left[f_{d} \cdot I_{Y} \cdot \varepsilon\right]_{Be}}{\left[f_{d} \cdot I_{Y} \cdot \varepsilon\right]_{Au}} \cdot \frac{1}{K_{n}}$$
(Eq.3)

References

- [1] E.M.Burbidge, G.R.Burbidge, W.A.Fowler, F.Hoyle, Rev.Mod.Phys., v 29, n 4, 547-650 (1957).
- [2] H. Beer, F. Käppeler. Phys. Rev. C, vol. 21, nº 2, p.534–544 (1980).
- [3] W. Ratynski, F. Käppeler, Phys. Rev. C, 37 (1988) 595.
- [4] P. F. Mastinu, G. Martín-Hernández and J. Praena. Nucl. Inst. and Meth. A 601 (2009) 333-338.
- [5] J. Praena, P.F. Mastinu, M. Pignatari *et al.*, Nucl. Inst. and Meth. A, 727 1-6 (2013).
- [6] J. Praena, P.F. Mastinu, R. Capote et al., Nuc. Data Sheets 120 (2014) 205–207.
- [7] G. Feinberg, M. Friedman, A. Krása, et al., Phys. Rev. C, 85, 055810 (2012).
- [8] I. Dillmann, R.Plag, F.Käppeler, A.Mengoni, C.Heinz, M. Pignatari. "The new KADoNiS v1.0 and its influence on the weak s-process nucleosynthesis". PoS (NIC XIII Conf.) 057 (2014)
- [9] P. Jiménez-Bonilla and J. Praena. Proceedings of Science PoS (NIC XIII) 102 (2014).

CHARATERIZATION OF THE EPITHERMAL NEUTRON FIELD PRODUCED BY p+⁷Li REACTION IN A TANDEM ACELERATOR USING A BONNER SPHERE SPECTROMETER

M. Romero-Expósito^{1,*}, S. Viñals¹, O. Ortega-Gelabert¹, B. Fernández², P. Jiménez-Bonilla³, J. Praena⁴, C. Domingo¹

¹Grup de Recerca en Radiacions Ionitzants, Departament de Física, Universitat Autònoma de Barcelona, E-08193, Bellaterra, Spain

²Centro Nacional de Aceleradores (U. Sevilla, CSIC, Junta de Andalucía), E-41092, Sevilla, Spain

³Departamento de Física Atómica, Molecular y Nuclear, Universidad de Sevilla, E-41012, Sevilla, Spain

⁴Departamento de Física Atómica, Molecular y Nuclear, Universidad de Granada, E-18071, Granada, Spain

The proton beam produced in the Nuclear Physics line of the tandem accelerator of the *Centro Nacional de Aceleradores* was used to generate a neutron field. In particular, 1.912 MeV protons were used to produce well known epithermal neutrons through the $p+^7Li \rightarrow n+^7Be$ reaction. The aim of the work was to characterize this field while testing the performance of a Bonner sphere spectrometer (BSS) in the epithermal range. Measurements were performed in four locations at different angle (0°, 30°, 60° and 90°) from beam incidence direction in order to study the angular dependence of the field. Both a parametric and numerical unfolding methods were tested to process the counts of the central detectors and obtain the energy distribution of the neutron fluence. In addition, a Monte Carlo simulation was carried out to complete the study and provide a guess spectrum for numerical unfolding. It was found that the fluence rate and mean energy decrease as the angle from beam direction increases. Total fluence was 2.75, 1.36, 0.366 and 0.216 cm⁻² per charge in the target at 0°, 30°, 60° and 90°, respectively. Mean energy of the field ranges from 46 to 17 keV at 0° and 60°, respectively. In all cases, given that the irradiation room is so large, the contribution of thermal neutrons to the field is small. Regarding the unfolding, the use of a Gaussian function as a guess spectrum led in general to a good agreement to results using the simulated spectrum as a guess.

INTRODUCTION

The Centro Nacional de Aceleradores (CNA) is a joint centre depending on the University of Seville, the Junta de Andalucía and the Spanish High Council of Scientific Research (CSIC). It has the mission of carrying out research in particle accelerators and their multiple applications. During the last years, they have been implementing the production of different neutron fields via nuclear reactions using a linear accelerator. First studies of viability of the new facility were carried out using the $p+^7Li \rightarrow n+^7Be$ and $d+d \rightarrow n+^3He$ reactions in the Nuclear Physics line. In the case of the lithium reaction the use of protons at energies close to the reaction threshold produces an epithermal neutron field [1-3]. This type of field is of interest for studies of the maxwellian-averaged cross-section of $^{197}{\rm Au}(n,\gamma)$ which is used as a reference for activation measurements relevant to the s-process in Nuclear Astrophysics [4].

In order to characterize the neutron field produce by the nuclear reaction, an experimental campaign was performed by the Grup de Recerca en Radiacions Ionitzants (GRRI) of Universitat Autònoma de Barcelona (UAB). A Bonner sphere spectrometer (BSS) was used to measure the neutron fluence spectrum at several points around the lithium target to check the angular dependence of the field. The kinematics of the nuclear reaction predicts that neutrons are ejected with an energy ranging from 0.4 to 108 keV, and with a maximum angle of emission of 63° [5]. However, the target used is thick enough to produce a continuous neutron spectrum which will be additionally affected by the scatter with the backing of the target itself, the walls and the rest of elements inside the irradiation room. In addition to measurements, some Monte Carlo (MC) simulations of the reaction and neutron transport were carried out.

The work also explores the unfolding process of detector readings which follows the measurements with a BSS system. This unfolding requires some kind of *a priori* information of the unknown field. Although MC

simulation is commonly used to obtain this information, the so-called guess spectrum, there are some unfolding codes that allow starting the process with less pre-information [6]. For example, the Frascati unfolding interactive tool (FRUIT) code [7] has the option of a parametric approach, which is based on varying the parameters, which describe a physically meaningful spectrum for the situation studied. This approach is advantageous when MC simulation is not available and for well-known environments, such as for example, medical linear accelerators, has led to results in agreement with an unfolding based on a MC guess spectrum [8]. Therefore, the additional purpose of this work was to test the options when MC guess spectrum is not available. Different environments were considered and then compared with the solution obtained using a MC guess spectrum.

MATERIAL AND METHODS

Protons of 1912 keV impacted on a thick natural lithium layer (100 um), which was cooled by water circulating inside a copper backing $(3x3x0.8cm^3)$ with a centered hole of 1 cm diameter and 0.75 cm height to place the Li. Water circulated around the Li to avoid the moderation of neutrons. The produced neutron field at these conditions is well known because has been measured many times [1-3]. The stability of the proton beam was checked measuring the current on the target as function of the time. The accelerator terminal and the analyzing magnet were calibrated by using 991.86 keV ${}^{27}Al(p,\gamma)$ and 2409 keV ${}^{24}Mg(p,p'\gamma)$ resonances and the ${}^{7}Li(p,n)$ reaction threshold (1880.4



keV). The energy spread of the protons at these energies was lower than ± 1 keV, and the precision of the calibration lower than 1 kV for the terminal.

Figure 1. Scheme of the accelerator hall and measurement points.

Four points around the target at a different angle from the proton beam direction $(0^{\circ}, 30^{\circ}, 60^{\circ} \text{ and } 90^{\circ})$ were

selected for characterization of the field (Figure 1) through measurements and a calculation method, denoted by LZMC. LZMC is based on [9] in which the experimental energy and angular distributions of the ⁷Li(p,n) reaction were parameterized from threshold to 2.5 MeV. We included those distributions MCNPX 2.7.0 code [10] for simulating the transport of the neutrons throughout the setup. Then, the neutron spectrum at the selected four points was determined. This method has been successfully checked with its comparison with data of similar experiments [1, 2, 3], see [11, 12] for details.

The experimental determination of the spectra was carried out using the UAB BSS [13]. The UAB spectrometer is based on a cylindrical (9 mm diameter, 10 mm high) ³He filled (partial pressure of 800 kPa) proportional counter (model 05NH1 from EURISYS) and includes 9 high density polyethylene spheres with diameter ranging from 2.5" to 12". It also includes three polyethylene spheres (2.5", 3", and 4.2") with a 1.5 mm thick Cd shell. The response matrix of the spectrometer was evaluated using MCNPX v 2.7.0 [10] and validated in reference beams providing a total uncertainty of \pm 3%. More details can be found in [8].

FRUIT [7] was used to process the sphere counts and to obtain the energy distribution of the neutron fluence. FRUIT allows unfolding through two different methods: one based on a parametric approach (FRUIT-PAR) and the other employing a special gradient method (FRUIT-SGM) [14]. While the FRUIT-PAR option is based on varying the parameters which describe a physically meaningful spectrum for the situation studied and does not require a guess spectrum, the FRUIT-SGM option unfolds the data by iteratively altering a guess spectrum according to a special gradient method [6]. Both methods were used for all measurements. For FRUIT-PAR, the code allows selecting some predetermined neutron environments to start the process. Given that an epithermal field is not considered by the code, a narrow source (0.3 MeV) and a moderated ²⁵²Cf source were selected. For FRUIT-SGM, a Gaussian function centered at the neutron energy expected by the kinematics of the reaction was used as a guess spectrum. These energies were 108, 79 and 15 keV, at 0°, 30° and 60°, respectively. For the point at 90°, where neutrons are not expected, the same energy of 60° was used.

For all the three cases commented, the initial energy distribution of neutrons may seem to be unphysical, especially if we assume that some neutrons have energy exceeding the maximum in the reaction. However, it has to be noticed that the aim was studying situations where there is no previous information and test the performance of the unfolding code, even when an *a priori* wrong starting point is used. Just if necessary, a maximum energy cut-off was also considered during unfolding.



Figure 2. Neutron spectra in point #1 obtained by FRUIT-PAR (narrow source and moderated ²⁵²Cf source) and FRUIT-SGM (Gaussian guess function with and without an energy cut-off and LZMC guess). No uncertainties are shown in order to allow the comparison.

In order to evaluate the obtained results using the presented approaches, the calculated spectra using the LZMC method was also used as guess spectra for FRUTI-SGM. Results obtained from this unfolding will be considered the reference for comparisons.

RESULTS AND DISCUSSION

Figure 2 shows the neutron energy spectra obtained in point #1 by FRUIT-PAR (narrow source and moderated ²⁵²Cf source) and FRUIT-SGM (Gaussian function as a guess with and without energy cut-off and MC guess). Table 1 collects the global dosimetric quantities and the fraction of neutrons in the different energy ranges. Results are expressed in terms of the collected charge in the target. As can be noticed in figure, spectra obtained by FRUIT-PAR are very different from the ones obtained by FRUIT-SGM. First, there is a shift of the maximum energy; while it is located around 30 and 40 keV, the expected maximum by LZMC guess is 79 keV. In addition, the parametric unfolding introduce a higher amount of thermal neutrons. On the other hand, the use of a Gaussian function as a guess allows to reproduce the peak with a tail at lower energies. However, the energy cut-off was needed in order to avoid a solution with neutrons more energetic than the ones produced in the nuclear reaction. In fact, the solution with the energy cut-off reproduces the position of the maximum. Conversely, in the thermal range, the Gaussian guess does not predict any neutron. All the spectral differences are reflected in the fluence fractions and mean energy reported in table 1. Despite the different energy distribution, total fluence is in agreement within the uncertainties in all cases. Given that ambient dose equivalent relies on the spectrum, the differences are higher but all FRUIT-SGM results are compatible.

able 1. Total fluence and ambient dose equivalent per
ollected charge in the target and spectral information in
oint #1 obtained by the different unfolding methods.

	FRUIT-PAR		FRUIT-SGM		
Ns	larrow M source	Moderated ²⁵² Cf	Gaussian without energy cut-off	Gaussian with energy cut-off	LZMC
Fluence (×10 ⁴ cm ⁻² ·mC ⁻¹)	$\begin{array}{c}4\\2.90\pm\\0.65\end{array}$	$\begin{array}{c} 2.87 \pm \\ 0.64 \end{array}$	$\begin{array}{c} 2.63 \pm \\ 0.59 \end{array}$	$\begin{array}{c} 2.69 \pm \\ 0.60 \end{array}$	$\begin{array}{c} 2.75 \pm \\ 0.62 \end{array}$
Ambient dose equivalent (µSv·mC ⁻¹)	0.70 ± 0.16	$\begin{array}{c} 0.73 \pm \\ 0.18 \end{array}$	$\begin{array}{c} 1.39 \pm \\ 0.31 \end{array}$	$\begin{array}{c} 0.97 \pm \\ 0.23 \end{array}$	1.10 ± 0.25
Mean energy (keV)	29.1	29.4	60.2	41.2	46.4
Thermal fraction ¹	8.0%	7%	-	-	3.0%
Epithermal fraction ²	92%	92%	86%	100%	97%
Fast fraction ³	-	-	14%	-	-

 $^{1}E < 0.4 \text{ eV}$; $^{2}0.4 \text{ eV} < E < 100 \text{ keV}$; $^{3}100 \text{ keV} < E < 20 \text{ MeV}$

For the rest of points FRUIT-SGM with the Gaussian guess also led to the best agreement with LZMC result. Therefore, the former approach allows the estimation of the dosimetric quantities when a simulation is not available. Table 2 collects the dosimetric quantities and spectral information obtained by FRUIT-SGM with LZMC guess for points #2, #3 and #4.

In figure 3 the final (unfolded) spectra are depicted together with the spectra obtained directly by simulation. Spectra are normalized to unit area to allow the comparison. The kinematics of the nuclear reaction in lithium predicts a reduction in the energy of the emitted neutron as its angle increases. Accordingly, as can be noticed in figure the maximum of the peak decreases from point #1 (79 keV) to #3 (20 keV). Fluence and ambient dose equivalent also decreases (see table 2). In point #4, no neutrons were expected from the nuclear reaction. However, scatter inside the target and its backing allows neutrons to arrive up to 90° from beam direction. These scatter neutrons appear also in point #3 as a small shoulder at higher energies.

In general, the unfolding process introduces small differences, except in the case of point #4, for which the unfolding reduces the thermal component from 27% to 4%. It has to be taken into account that simulation only includes the walls, but the room is plenty of elements that may interfere with the thermalization and absorption of neutrons and this

ROMERO-EXPÓSITO ET AL

effect is highlighted in a point with a low contribution of direct neutrons from target and its backing. On the other hand, unfolded results in the other points also show a low proportion of thermal neutron as a consequence of the small difference in the counts in the smallest spheres (2.5", 3" and 4.2") with and without the Cd shell (a thermal neutron absorbent). The mean value was only 6%. The geometry of the irradiation room can explain the result. Although the line is close to a wall, the high size of the room makes that multiple scatter cannot contribute.

CONCLUSIONS

A BSS has been used to characterize the neutron field produced through the ${}^{7}\text{Li}(p,n){}^{7}\text{Be}$ reaction using a proton energy close to the reaction threshold. The energy distribution of neutrons presents a peak centered at 79 keV in the position behind the target. This maximum decreases to 20 keV at 60° from the beam direction. Total fluence ranges between 2.75 and $0.216 \times 10^4 \text{ cm}{}^{-2} \cdot \text{mC}{}^{-1}$ approximately; being smaller as the angle from the incident direction increases. The scatter in target and its backing has as a consequence that neutrons can arrive up to 90°, not expected by the kinematics of the reaction.

In addition to characterizing the field, the measurement campaign allowed to test the performance of the spectrometer together with the unfolding code in an epithermal field. In contrast with the experience in other types of environments, such as neutron radioactive sources or medical linear accelerators, the use of a parametric method does not converge to the expected energy distribution. The use of a Gaussian function as a guess spectrum for the numerical unfolding led to the closest results to the expected ones.

Table 2. Total fluence and ambient dose equivalent per collected charge in the target and spectral information in points #2, #3 and #4 obtained by FRUIT-SGM with LZMC guess.

	#2	#3	#4
Fluence (×10 ⁴ cm ⁻² ·mC ⁻¹)	1.36 ± 0.30	0.366 ± 0.082	0.216 ± 0.048
Ambient dose equivalent rate $(\mu Sv \cdot mC^{-1})$	0.50 ± 0.11	0.062 ± 0.015	0.050 ± 0.011
Mean energy (keV)	44	17	25
Thermal fraction ¹	0%	6%	4%
Epithermal fraction ²	100%	94%	96%
Fast fraction ³	0%	0%	0%

 $^{1}E < 0.4 \text{ eV}$; $^{2}0.4 \text{ eV} < E < 100 \text{ keV}$; $^{3}100 \text{ keV} < E < 20 \text{ MeV}$



Figure 3. Final neutron spectra in points #1, #2, #3 and #4.

In any case, it is worth to notice that all methods are valid for estimation of total fluence when simulation is not available. Nevertheless, for this type of field is advisable a LZMC simulation to provide the starting point for numerical unfolding.

ACKNOWLEDGES

The research presented in this paper has been financed by the Spanish Ministry of Economy and Competivity under grant numbers FIS 2012-39104-C02-01 and FPA2013-47327-C2-1-R.

REFERENCES

- 1. Ratynski, W. and Kaeppeler, F. Phys. Rev. C 37, 595 (1988).
- 2. Lederer, C., et al., Phys. Rev. C 85, 055809 (2012).
- 3. Feinberg, G., et al., Phys. Rev. C 85, 055810 (2012).
- 4. Jiménez-Bonilla, P. and Praena, J. PoS (NIC XIII) 102 https://pos.sissa.it/204/
- http://skisickness.com/2010/04/relativistic-kinematicscalculator/
- 6. Matzke, M., Radiat. Prot. Dosim. 107, 155-174 (2003).
- 7. Bedogni, R., *et al.* Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 580, 1301-1309 (2007).
- 8. Mares, V., et al., Phys. Med. Biol. 61, 4127-4140 (2016).
- 9. Lee, C. L. and Zhou, X.-L., Nucl. Instr. and Meth. in Phys. B 152, 1-8 (1999).
- 10. Pelowitz, D.B. LA-UR-11-02295 Report, Los Alamos (2011).
- 11. Praena, J. *et al.*, Nucl Instr and Meth in Phys Res A 727, 1-6 (2013).
- 12. Praena, J. et al., Nuclear Data Sheets 120 205-207 (2014).
- 13. Bouassoule, T., et al., Radiat. Meas. 34, 199-202 (2001).
- Amgarou, K., et al., Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 654, 399-405 (2011).

Colloquia: UCANS-V

Epithermal neutron beams from the ${}^{7}\text{Li}(p,n)$ reaction near the threshold for neutron capture therapy

I. $PORRAS(^1)$, J. $PRAENA(^1)(^2)$, F. ARIAS DE SAAVEDRA(^1), M. $PEDROSA(^1)$, P. L. $ESQUINAS(^3)$ and P. $JIMÉNEZ-BONILLA(^2)(^4)$

- (¹) Departamento de Física Atómica, Molecular y Nuclear, Universidad de Granada Granada, Spain
- ⁽²⁾ Centro Nacional de Aceleradores (CNA) Sevilla, Spain
- ⁽³⁾ Department of Physics and Astronomy, University of British Columbia Vancouver, Canada
- (4) Departamento de Física Atómica, Molecular y Nuclear, Universidad de Sevilla Sevilla, Spain

received 22 February 2016

Summary. — Two applications for neutron capture therapy of epithermal neutron beams calculated from the ${}^{7}\text{Li}(p,n)$ reaction are discussed. In particular, i) for a proton beam of 1920 keV of a 30 mA, a neutron beam of adequate features for BNCT is found at an angle of 80° from the forward direction; and ii) for a proton beam of 1910 keV, a neutron beam is obtained at the forward direction suitable for performing radiobiology experiments for the determination of the biological weighting factors of the fast dose component in neutron capture therapy.

1. – Description

Boron Neutron Capture Therapy (BNCT) [1] is an experimental form of radiotherapy based on the selective uptake of a boron compound by tumor cells and the subsequent irradiation of the tumor with a low energy neutron beam producing a thermal neutron field in the tumor. Thermal neutrons are captured by the boron atoms by means of a (n, α) reaction in which high-energy heavy charged particles are delivered locally to the tumor. These particles have a significantly higher linear energy transfer to the medium (tumor) than photons or electrons, and therefore are more biologically effective than conventional radiotherapy. Up to now, all clinical trials of BNCT have been performed from research reactor neutron sources. These neutron sources are scarce and are not practical for construction in hospitals. For this reason, accelerator-based neutron sources (ABNS) are in development in several countries, and in Kyoto (Japan), an ABNS is ready for medical applications [2]. The ABNS in Japan is based on collisions of 30 MeV protons from a cyclotron with a Be target. Another option, which requires a lower energy proton beam, is based on the (p, n) reaction on ⁷Li near the threshold. This produces a less energetic neutron beam thus requiring minor moderation for use in patient irradiation [3].

For BNCT, the spectrum of the neutron beam is critical. The neutrons should have enough energy to penetrate deeply in the body, but not so high as to produce a large background radiation dose, while also being able to thermalize within the body. These features require an initial epithermal spectrum for the neutrons, but the exact requirements should be determined with Monte Carlo simulations.

All the neutrons beams used in BNCT up to now have been obtained with some moderation from the source, in order to obtain a spectrum in which more than 90% of the neutrons are in the epithermal range. This is defined as the interval [0.5 eV, 10 keV]. However the upper bound is just a reference value and slightly greater energies can be also suitable for BNCT. For example, it has been shown by MC simulation how a monoenergetic beam of 13.5 keV can be very appropriate for BNCT [4].

The optimization of the neutron spectrum for BNCT is a question of compromise. Higher energies than 20 keV produce an undesirable maximum of the absorbed dose in the surface of the phantom (which raises steeply when increasing the neutron energy), and energies below 1 keV would reduce strongly the penetrability of the beam in order to reach deeper located tumors. The moderation of a neutron beam necessarily produce a strong broadening of the spectrum. Our aim in this work is trying to obtain a neutron spectrum as close as possible to epithermal energies around 10 keV. For this purpose we have analyzed the neutron spectrum obtained from the ⁷Li(p, n) reaction near the neutron production threshold (between 1.88 MeV and 2 MeV) and at certain angles from the beam direction. Although the neutron yield reduces strongly when decreasing the proton energy from the 2.5 MeV resonance, and also at increasing angles from the forward direction, the possibility of not needing moderation could be enough for certain BNCT applications when a very high current accelerator (20–30 mA) as those recently available is used.

In this work we will perform calculations of an entire procedure for an acceleratorbased BNCT application starting from the ${}^{7}\text{Li}(p,n)$ reaction. We will explore, for proton energies near the threshold and different exit angles, the possibility of obtaining an epithermal neutron spectrum which produces a depth-dose distribution in a body model appropriate for a BNCT treatment. A second problem would be obtaining a suitable beam for BNCT basic research (cell culture irradiation by epithermal neutrons), even with a low current accelerator. This is interesting for the experimental determination of the relative biological effectiveness (RBE) factors of epithermal neutrons.

$\mathbf{2.} - \mathbf{Methods}$

The form of the neutron spectrum as a function of the neutron energy and the exit angle, important ingredient in our simulations, is the thick target differential neutron yield that can be calculated as

(1a)
$$\frac{\mathrm{d}^2 Y}{\mathrm{d}\Omega \mathrm{d}E_n}(\theta, E_n) = f_{^7Li} \frac{\frac{\mathrm{d}\sigma_{pn}}{\mathrm{d}\Omega'} \frac{\mathrm{d}\Omega'}{\mathrm{d}E_n}}{\frac{1}{n} \frac{\mathrm{d}E_p}{\mathrm{d}x}},$$

where $\Omega(\Omega')$ is the solid angle in the laboratory (center of mass) system of reference, $E_n(E_p)$ is the neutron (proton) energy in the laboratory system, $f_{\tau_{Li}} = 0.925$ is the fraction of ⁷Li in natural lithium metal (target composition), $\frac{\mathrm{d}\sigma_{pn}}{\mathrm{d}\Omega'}$ is the differential cross section of the reaction in the center-of-mass system, n is the density of atoms in the target and the whole denominator is the mass stopping power of protons in the medium.

In the same way as Lee and Zhou [5], we have adjusted a cubic spline to the experimental data of the differential cross section from Lisken and Paulsen [6] and we have used analytical expressions for the mass stopping power [7]. Further details can be consulted in [5].

2[.]1. A. Near threshold beam for BNCT. – With the neutron spectra obtained from these calculations, we have performed MC simulations using the MCNPX code, version 2.5.0 [8]. For this application we have considered the geometry illustrated in fig. 1. The neutron field obtained from a proton beam of 1920 keV on a thick lithium target is transported in a cylindrical phantom of 8 cm radius, 10 cm height. The material in this cylinder is a representative soft tissue called 4-component soft tissue as defined by the International Commission on Radiation Units (ICRU) with the following mass composition: 10.12% H, 76.18% O, 11.10% C and 2.60% N. The axis of the cylinder is placed at an angle with respect to the proton beam direction of 80° and at a distance of 5 cm. This situation has been selected from different choices of angles because it has shown to be adequate for the depth-dose distribution inside the phantom.

2[•]2. *B. Epithermal beam for in-vitro radiobiology experiments.* – The dose in a BNCT treatment is usually decomposed in different contributions: boron, thermal (mainly due to the protons emitted in the Nitrogen capture reaction), fast (mainly due to the recoiling protons from elastic collisions of the neutrons at epithermal energies) and photon dose. Our goal is designing a method to evaluate separately the RBE factors of the fast and thermal dose for the same type of cells. The RBE factors are defined as the ratio between the dose required for a photon irradiation and the actual field, producing both the same biological effect.

For obtaining these factors we can measure the biological effect after the irradiation with two different neutron beams, one producing much more thermal than fast dose and another just the opposite. The former case happens under thermal beams as those obtained from reactors after neutron moderation. In this work we will design an experimental condition producing much more epithermal dose than thermal, which would be the second case required.

The situation studied, representing the irradiation of adherent cells, is the following:



Fig. 1. – Schematics of the neutron irradiation of the cylindrical phantom of 8 cm radius, 10 cm height. The distance between the phantom and the center of the Li target is 5 cm.



Fig. 2. – Schematics of the neutron irradiation of culture cells. The dimensions are as follows: beam diameter 6 mm, Li thick target of 2 cm diameter, distance target-cells 1 cm, diameter of culture 2 cm, 1 cm water beyond the cells.

the neutron field produced by a proton beam of $1910 \text{ keV} (\pm 1 \text{ keV})$ on a thick lithium target is directed to a very thin layer of cells (represented by the same 4-component ICRU tissue). This cells are in a box of basis $6 \times 6 \text{ cm}$, and 2 cm height, filled by water (representing the culture medium). The situation is illustrated in fig. 2.

3. – Results

3[•]1. Application A. – The absorbed dose depth profile at the phantom axis is illustrated in fig. 3. In both panels, the solid line corresponds to the tumor dose assuming a concentration of boron of 40 ppm, while the dotted line, representing the normal tissue dose, is found assuming a concentration of 10 ppm. In the left panel, it is noticed how the tumor absorbed dose is greater than the maximum of the normal tissue dose (horizontal dotted line) up to a depth of about 8 cm (advantage depth), and how in the range between 2 and 5 cm depth, the tumor dose exceeds twice the maximum normal tissue dose (horizontal solid line). In the right panel the biological dose is estimated using the weighting factors of use in BNCT: 3.2 for the fast and thermal doses, 1.0 for the gamma dose, and for the boron dose values of 3.8 (tumor) and 1.8 (normal tissue). We can see in the plot the important enhancement of the weighted dose delivered to the tumor compared to the normal tissue one.

The results are illustrated for a reference proton beam intensity of 1 mA. The low dose rates obtained for this intensity are expected because the low neutron yield near



Fig. 3. – Absorbed (left) and weighted (right) dose rate depth profile in the phantom axis at tumor cells (solid curve) and normal cells (dotted curve). The horizontal lines represent the maximum value of the normal tissue dose rate (dotted) and twice this value (solid).
TABLE I. – Dose rate components at the cell culture, for a proton beam of 1910 keV and a thick Li target for different beam currents.

Component	Gy/min (1 mA)	Gy/h $(10\mu A)$
D_f	1.370	0.822
D_t	8.34×10^{-4}	5.00×10^{-4}

the threshold and at this angle. However, with a high current accelerator (30 mA) the weighted dose rate at the tumor could reach values between 10 and 20 Gy/h (3.8 Gy/h maximum for normal tissue).

The reason of the high differences between the tumor and normal tissue dose can be addressed to the low values of the fast dose component, which is due to the low-energy spectrum of the neutrons. This is a difference with respect to previous calculations of the dose produced by this reaction in the forward direction, where a high peak at the surface of the phantom usually appears due to the higher energy delivered by the most energetic neutrons in their first elastic collision in the medium.

3[•]2. Application B. – The results of the MC calculation of the absorbed dose rate produced at the cells represented by the disk of 2 cm in fig. 2 with the MCNPX code above mentioned are shown in table I. The fast dose component is much greater than the thermal one, which is the situation pursued. The values of the fast dose rate is high enough as to measure survival effects in cells (usually starting from 0.1 Gy) in a reasonable time, even if a low current accelerator (in the μ A range) is available. This measurements then would complement those performed with a thermal beam in which the situation is the opposite (in terms of relative dose contributions).

4. – Conclusions

Epithermal neutron beams obtained from the ⁷Li(p, n) reaction near the threshold can be useful for neutron capture therapy, both for basic research and for therapy. In the first case, with an energy of the proton beam of 1910 keV, the neutron beam at the forward direction is adequate for radiobiology experiments even if the accelerator has a low current. For the latter, in this work it has been analyzed a very simplistic case, but the results for a proton beam energy of 1920 keV and a phantom located at 80° are promising. Therefore it seems interesting to research further in this direction with more realistic calculations and experimentation.

* * *

The authors acknowledge financial support from the Junta de Andalucía under project P11-FQM-8229 and the CEI Biotic of the University of Granada (P-BS-64) and Plan Estatal 2013-2016 Retos FPA2013-47327-C2-1-R. M. Pedrosa acknowledges a grant under the program Becas de Iniciacion a la Investigación from the Universidad de Granada (Plan Propio de Investigación).

REFERENCES

- [1] SAUERWEIN W. A. G., WITTIG A., MOSS R. and NAKAGAWA Y., *Neutron Capture Therapy: Principles and Applications* (Springer-Verlag, Berlin) 2012.
- [2] TANAKA H., SAKURAI Y., SUZUKI M., MASUNAGA S. et al., Appl. Radiat. Isot., 69 (2011) 1642.
- [3] KOBAYASHI T., BENGUA G. TANAKA K. and NAKAGAWA Y., Phys. Med. Biol., 52 (2007) 645.
- [4] PORRAS I., Appl. Radiat. Isot., 69 (2011) 1838.
- [5] LEE C. L. and ZHOU X.-L., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 152 (1999) 1.
- [6] LISKEN H. and PAULSEN A., At. Data Nucl. Data Tables, 15 (1975) 57.
- [7] ANDERSEN H. H. and ZIEGLER J. F., *Hydrogen: Stopping powers and ranges in all elements* (Pergamon Press, New York) 1985.
- [8] PELOWITZ D. B., MCNPX User's Manual, Version 2.5.0. Publication LACP-05-0369 (Los Alamos, NM, USA) 2005.

Lista de Figuras

1.1.	Abundancia isotópica relativa de elementos en el sistema solar [5]	14
1.2.	Recorrido de una estrella tipo solar en un diagrama de Hertzsprung-	
	Russell, que relaciona su luminosidad o magnitud absoluta con su	
	clase espectral (color) o temperatura de la superficie, y en el que se	
	mueve conforme a los cambios sufridos por la estrella en sus distintas	
	fases de ciclo vital [10]. \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	17
1.3.	Situación de los principales procesos de nucleosíntesis estelar en la	
	carta de isótopos [5]. \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	18
1.4.	Izquierda: nebulosa planetaria M57 (fotografía de P. Jiménez Bonilla	
	desde Sierra Nevada). Derecha: nebulosa M1, remanente de la ex-	
	plosión de una supernova en el año 1054 (fotografía del Telescopio	
	Espacial Hubble).	19
1.5.	Esquema de producción de distintos isótopos mediante sucesión de	
	capturas de neutrones y desintegraciones β en el proceso s en su	
	recorrido por una región de la carta de isótopos	20
1.6.	Esquema de niveles de energía y transiciones en una reacción de cap-	
	tura radiativa de neutrón.	21
1.7.	Representación de la función $E \cdot e^{-\frac{E}{kT}}$ para kT=30 keV	23
1.8.	Incertidumbres en los datos de secciones eficaces estelares disponibles	
	para el proceso s, a kT=30 keV [19] \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	26
1.9.	Sección eficaz diferencial $d\sigma/dE$ de la reacción ¹⁹⁷ Au(n, γ) [27]	27
1.10.	Esquema de la facilidad de tiempo de vuelo n _TOF, en CERN $[34].$	29
9.1	Esquema de la evolución del numero de núcleos radioactivos presentes	
2.1.	Esquema de la evolución del número de núcleos radioactivos presentes $\Lambda(t)$ durante las distintas fasos del experimente de activación (irra	
	diación, ospora y modida do la actividad)	33
<u>?</u> ?	Espectro experimental de neutrones OMNS (quesi maxwellian neu	00
2.2.	tron spectrum) producido por la reacción $^{7}Li(n,n) \ge E_{-} = 1012 \text{ keV}$	
	comparado con un espectro maxwelliano ideal de $kT-25.3 \text{ keV}$ (figura	
	reproducida de $[28]$	35
23	Esquema de producción de neutrones mediante la reacción 7 Li(n n)	35
2.0.2	Espectros de energía de fuios de neutrones producidos en las reaccio-	00
⊿.ч.	$^{18}O(p n) \times {}^{3}H(n n)$ (tomados de [43] [44])	36
	$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	00

2.5.	Esquema de experimento de medida por activación con flujo QMNS	
26	de una muestra X respecto a una referencia (oro en este caso) Perpresentación de neutrones atravesendo una muestra con distintos	. 37
2.0.	ángulos de incidencia	. 38
2.7.	Esquema de desintegración del ⁷ Be [47]	. 39
2.8.	Esquema de montaje experimental para la producción de neutrones de espectro maxwelliano (MNS), mediante la introducción de una	
	lámina o degradador de Al en el haz de protones antes de su impacto	41
2.9.	en el blanco de Li	. 41
	y despúes (GPD) de atravesar una lámina de Al de 75 m de espesor [49].	. 42
2.10.	Espectro en energía obtenido con SRIM para un haz estrecho de pro-	
	tones de 5 MeV tras atravesar una famina de carbono de 150,6 µm de espesor [48]	43
2.11.	Coeficiente \mathbb{R}^2 entre el espectro de los neutrones generados y un es-	. 10
	pectro maxwelliano de kT=30 keV, en función de la energía media de	49
2.12.	Simulación del espectro de los neutrones generados por una GPD	. 43
	producida por un haz de 5 MeV al atravesar una lámina de carbono	
	de 150,6 µm, comparado con el de una maxwelliana ideal de $kT=30$	11
2.13.	Simulaciones de espectros de neutrones MNS incidentes en las caras	. 44
	frontal y posterior de las láminas de Au y Ta comparados con el ajuste	
9.14	a maxwelliana de $kT=30 \text{ keV} [49]$. 45
2.14.	generada con el código Fortran LZ.	. 45
2.15.	Espectros simulados con el código LZ para el flujo total comparados con datos experimentales disponibles de las medidas de RK y Lederer	
0.10	(figura tomada de $[49]$)	. 47
2.16.	Espectro en energia para distintos angulos generado con el codigo LZ (negro) comparados con datos experimentales disponibles de la	
	medida de C. Lederer (figura tomada de [49])	. 47
3.1.	Esquema de desintegración del ¹⁹⁸ Au a ¹⁹⁸ Hg [47]	. 51
3.2.	Esquema de la evolución en el tiempo del número de núcleos acti-	
	experimento (tomado de $[2]$)	. 53
3.3.	Imágenes del CNA (Centro Nacional de Aceleradores, Sevilla): exte-	
3 /	rior (sup. 12q.) y acelerador Tándem (sup. der.)	. 55 57
0.4.	Totogramas del soporte de ou para el blanco de di y indestita de Au	. 51

e e	3.5.	Esquema del diseño del blanco, sección lateral (no a escala), inclu- vendo láminas de Li, Au y Al.	57
ç	3.6.	Fotografía de la medida del peso de una de las láminas de Au utili-	
		zadas en las activaciones, mediante balanza de precisión	58
ę	3.7.	Trabajos de corte y colocación de la lámina de Li dentro del soporte	
		de Cu, realizados dentro de la cámara en atmósfera controlada de gas	
		inerte (Ar).	58
ę	3.8.	Blanco de ⁷ Li y muestra de ¹⁹⁷ Au dispuestos para el experimento de	
		activación QMNS (izq.) y activación MNS (der.)	59
ę	3.9.	Esquema del montaje del detector HPGe y sistema de adquisición de	
		datos	60
ę	3.10.	Esquema del cristal semiconductor de germanio, de dopado tipo n,	
		con forma de bala y hueco coaxial interior [58]	61
ę	3.11.	Rack con la electrónica para adquisición de datos y control del detec-	
		tor HPGe (izq.), y detalle de las tarjetas electrónicas HVPS 9645 y	
		DSP 9660 (der.)	61
į	3.12.	Fotografía del detector gamma HPGe Ortec GMX 35195-S con tanque	
		de nitrógeno líquido para refrigeración utilizado en ambas activaciones.	62
ę	3.13.	Bombas de vacío e indicadores de presión en las activaciones	63
ę	3.14.	Control del circuito de refrigeración de agua para el soporte de reacción.	63
ę	3.15.	Dosímetro de neutrones situado en la línea del flujo de neutrones	
		(flechas azules). El dosímetro se encuentra conectado y monitorizado	
		desde la sala de control, donde se almacena su registro	64
ę	3.16.	Instrumentación en sala de control del acelerador. Izq.: panel de ajuste	
		del voltaje del acelerador. Der.: monitorización del perfil de haz	64
ę	3.17.	Izq. View-port situada al final de la línea de haz. Der. Monitorización	
		por CCTV de la <i>view-port</i>	65
ę	3.18.	Imagen del haz impactando en la view-port, transmitida por CCTV	
		a un monitor situado en la sala de control.	65
ę	3.19.	Sala de control del acelerador	66
ę	3.20.	Instrumentación en sala de control. Izq.: carga acumulada. Der.: mo-	
		nitor de dosimetría de neutrones registrada en la sala durante la irra-	
		diación.	66
	3.21.	Izq. Colocación del detector HP Ge frente a la muestra radioactiva.	
		Der. PC para el control del detector y monitorización y archivo de	
		las detecciones	67
4	4.1.	Representación de un flujo de neutrones incidiendo perpendicular-	
		mente sobre una lámina de Au.	70
4	4.2.	Histograma de cuentas por canal registradas por el detector gamma	
		HPGe en la Activación QMNS.	72
4	4.3.	Histograma de cuentas por canal registradas por el detector gamma	
		HPGe en la Activación MNS.	72

4.4.	Correspondencia canales-energía del detector gamma en las Activa- ciones QMNS y MNS.	73
4.5. 4.6.	Picos gammas registrados en las activaciones I (izq.) y II (der.) Secciones eficaces fotoeléctricas, compton y producción de pares en	73
4.7.	detectores de Ge y Si [61]	74
	Edge [58]	75
4.8.	Captura de pantalla (activación MNS) de espectrografía gamma rea- lizada con el software GENIE2000 disponible en el CNA.	76
4.9.	Esquema de la evolución del número de núcleos radioactivos $A(t)$ presentes en la muestra durante las distintas fases del experimento.	77
4.10.	Datos recogidos por el dosímetro de neutrones situado en la sala Tan- dem durante la Activación I	79
4.11.	Datos recogidos por el dosímetro de neutrones situado en la sala Tan- dem durante la Activación II.	79
4.12.	Esquema de ejemplos de trayectorias de rayos gamma incidentes en el detector HPGe desde una fuente extensa.	81
4.13. 4.14.	Diagrama del detector HPGe, facilitado por el fabricante (ORTEC)[58]. Vista 2D de la geometría simulada en MCNPX de la cápsula del	82
	detector completa, basada en las especificaciones del fabricante.	83
4.15.	Vista 3D de la simulación en MCPX del cristal de germanio.	83
4.16.	Vista 3D de la simulación en MCPX del cristal de germanio	83
4.17.	Respuesta del detector gamma HPGe simulado en MCNPX para una fuente gamma isotrópica en forma de disco de 6 mm de diámetro	
4.18.	situada a 17 mm del detector	84
	entre la fuente v el detector	85
4.19.	Fuente de referencia utilizada para la calibración. A la derecha se puede observar en la zona central el hueco donde está depositado el	
	material radioactivo.	87
4.20.	Captura de pantalla de análisis de picos gamma mediante GENIE2000 de los espectros obtenidos de fuentes de referencia	88
4.21.	Eficiencias del detector experimental obtenida con fuentes de refe- rencia a 8 mm, y simulada con MCNPX según especificaciones del	
	fabricante para el Ge.	89
4.22.	Eficiencias del detector experimental con fuentes de referencia a 8 mm del detector y simuladas (MCNPX) para cristal de Ge ajustado a diámetro D=55 mm y capa inactiva CI-4mm y a otro ajuste próvimo	
	de $CI=3 \text{ mm} \dots \dots$	90

4.23. Pérdida de energía en litio de protones de energía inicial $Ep=1912$	
keV. Imagen obtenida con SRIM [50].	91
4.24. Vista de perfil (izquierda, grosor no a escala) y frontal (derecha) de	
la subdivisión en 13 celdas en MCNPX de la lámina de oro	92
4.25. Perfiles de activación en Au con neutrones QMNS (izq.) y MNS (der.).	93
4.26. Geometría de la simulación MCNPX de muestras, soporte y detector	
para el transporte y detección de gammas	94
4.27. Simulación de la respuesta espectrométrica del detector HPGe a fuen-	
te gamma de 478 keV procedente de la desintegración del $^7\mathrm{Be}$ del	
montaje experimental completo	95
4.28. Simulación de la respuesta espectrométrica del detector HPGe a fuen-	
te gamma de 412 keV procedente de la desintegración del $^{198}\mathrm{Au}$ del	
montaje experimental completo	95
4.29. Vistas 3D de la simulación MCNPX del blanco de litio, soporte de	
cobre y muestra de oro. El blanco de litio está situado en la zona	
indicada en rosa de la figura de la izquierda. La lámina de oro corres-	
ponde al círculo de la figura de la derecha, y la región azul al soporte	
de cobre	98
4.30. Vista en 2D de la simulación MCNPX de la sección del soporte de	
Cu (2) y láminas de Li (3) y Au (5). \ldots \ldots \ldots \ldots	98
4.31. Distribución en energía del flujo de neutrones de la activación QMNS	
obtenido con MCNPX	99
4.32. Distribución en energía del flujo de neutrones de la activación MNS	
obtenido con MCNPX	100
4.33. Esquema de sala Tandem del CNA simulada en MCNPX. Se indica	
en la figura la posición del soporte de Cu y muestra de Au	101
4.34. Esquema indicando el ángulo de incidencia θ de un neutrón respecto	
a la normal a una muestra plana de Au de un cierto espesor	101
4.35. Esquemas de trayectorias de neutrones y distintos ángulos máximos	
de incidencia para flujos QMNS y MNS	103
4.36. Esquema de posibles dispersiones de neutrones en el experimento.	104
4.37. Esquema de experimento idealizado de activación: fuente puntual de	
neutrones y sin dispersión en materiales ni efecto de muestra plana.	104
4.38. Evaluación Estándar y medidas experimentales de la sección eficaz	
$\sigma(\mathbf{E}) \text{ de}^{19} \operatorname{Au}(\mathbf{n}, \gamma) [25]. \dots \dots$	107
4.39. Incertidumbres recomendadas en [74] para la sección eficaz diferencial	
$\sigma(\mathbf{E}) \operatorname{de}^{197}\operatorname{Au}(\mathbf{n},\gamma).$	107
4.40. Comparación de espectros QMNS simulados para energías de haz	100
$E_p = 1910, 1912 \text{ y } 1914 \text{ keV}.$	109
5.1. Comparación de resultados para la sección eficaz estelar del oro a	
kT = 30 keV [78] [28] [26] [32] [70]	119
$\mathbf{x} = \mathbf{y} = \mathbf{x} \mathbf{y} = $	114

5.2.	Esquema del montaje experimental con muestra de oro semiesférica
•	utilizado por RK en su medida de activación [28]
5.3.	Vista de la la web de la versión 1.0 de la base de datos Kadonis de
_ ,	Karsruhe, con el valor actualizado de la sección eficaz estelar del oro. 115
5.4.	Secciones eficaces diferenciales de $^{133}Tb(n,\gamma)$ (verde), $^{161}Ta(n,\gamma)$ (azul)
	y ¹⁹⁷ $Au(n, \gamma)$ (oro) (de [26]), y ajustes exponenciales con $\sigma(E) = A \cdot E^{-a} \Pi 7$
5.5.	Comparación de espectros en energía de flujos QMNS y maxwelliano
-	de kT=25 keV, normalizados a la fluencia total (area). $\dots \dots \dots$
5.6.	Comparación de espectros en energía de flujos QMNS y maxwelliano
	de kT=25 keV, normalizados a la fluencia (area), y multiplicados por $L_{1} = -0.5$
	el factor $E^{(0,0)}$
5.7.	Comparación de espectros en energia de flujos MINS y maxwelliano $\frac{1}{20}$
FO	de $KI = 30 \text{ keV}$, normalizados a la nuencia total (area)
5.8.	Comparación de espectros en energía de nujos MNS y maxwelliano $d_{2} kT_{2} = 22 keV_{2}$ normalizadas a la fluencia total (área)
5.0	de $K1 = 55$ keV, normalizados a la nuelicia total (area)
5.9.	kT-33 keV normalizados a la fluoncia total (área) y multiplicados
	por al factor $F^{-0,5}$ 121
510	Geometría experimental propuesta con la muestra (o muestras en
0.10.	medidas relativas) colocada a una cierta distancia de la fuente de
	neutrones
5.12.	Comparación de espectros en energía de fluios MNS a 10 mm del
	soporte y maxwelliano de kT=37 keV, normalizados a la fluencia 129
5.11.	Comparación de espectros en energía de flujos MNS a 5mm del so-
	porte y maxwelliano de kT=35 keV, normalizados a la fluencia 129
5.13.	Comparación de espectros en energía de flujos MNS a 5mm y max-
	welliano de kT=25 keV, normalizados a la fluencia, y multiplicados
	por el factor $E^{-0,5}$
5.14.	Comparación de espectros en energía de flujos MNS a 10mm y max-
	welliano de $kT=37$ keV, normalizados a la fluencia, y multiplicados
	por el factor $E^{-0,5}$
71	Bepresentación de una posible historia (de A a D) de un neutrón
1.1.	dentro de una celda en una simulación MCNP 146
7.2.	Sección eficaz de la reacción ⁷ Li(p,n) [26]
7.3.	Esquema de la cinemática de la reacción ⁷ Li(p,n)
7.4.	Distribuciones en energía (izq) y ángulo (der.) para varias energías de
	protón en la reacción ⁷ Li(p,n) [42]. \ldots 151
7.5.	Espectro en energía de neutrones para distintos ángulos de emisión,
	de [75]
7.6.	Geometría del experimento
7.7.	Perfil de activaciones da/ds producidas en Au por fuente puntual de
	neutrones

7.8.	Representación 3D de la densidad de activaciones en Au por fuente
	puntual de neutrones, generado con OCTAVE [97]
7.9.	Representación 3D de activaciones en la lámina de Au
7.10.	Perfil de activaciones en láminas de Au y Li
7.11.	Curvas de de μ/ρ , elaboradas con datos de NIST [73]

Lista de Figuras

Lista de Tablas

 1.1. 1.2. 1.3. 	MACS a kT=30 keV para varios isótopos en el entorno del ¹⁹⁷ Au [16]. Reacciones consideradas Estándares IAEA para secciones eficaces de captura de neutrones, y rangos de energía para el que se los considera [23]	25 27 30
3.1.	Estimación del número de cuentas previstas en la activación de ¹⁹⁷ Au mediante la reacción ⁷ Li(p,n) para corriente de 1,5 μ A, producción de 3,75 ×10 ⁷ n/s, eficiencia $\varepsilon = 0,0015$ y distintos tiempos de activación y medida	54
3.2.	Duración de las fases de los experimentos.	$\frac{54}{67}$
4.1. 4.2.	Características de las láminas utilizadas en la activaciones Cuentas gamma en el fotopico obtenidas en los experimentos de ac-	71
4.9	tivación QMNS y MNS.	76
4.3. 4.4.	Factores de desintegración f_d obtenidos	80
4.5.	una fuente circular de 6 mm de diámetro	85
	ción	87
4.6.	Número de cuentas de pico C_{peak} y eficiencias experimentales ε_{γ} para	80
4.7.	Eficiencias obtenidas en simulaciones MCNPX para cristales de Ge	09
	de distintas especificaciones (nominal y modificadas).	90
4.8.	Resultados de las simulaciones MCNPX de capturas por regiones en	0.0
4.0	la làmina de oro	93
4.9.	con detector HPGe de cristal de Ge con D=55mm v CI=4mm.	, 96
4.10.	Eficiencias del detector gamma HPGe obtenidas en simulaciones MCNPX	. 96
4.11.	Flujos en la muestra de oro y correcciones k_s obtenidos como resultado	
	de las simulaciones con el tally F1. \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	99

4.12.	Comparación del número de activaciones en Au obtenidas en simu- lación MNNPX con v sin efecto de dispersión de neutrones en las	
4.13.	paredes de la sala. \dots Número de activaciones y corrección por muestra plana y dispersión de neutrones k_n obtenidas mediante simulaciones MCNPX de experimentos reales e idealizados. La incertidumbre indicada corresponde	. 100
4.14.	únicamente a la estadística de MCNPX	. 105
4.15.	dispersión en Li ni Cu)	. 105
4.16.	ideal, para kT=25 y 30 keV	. 109
	eficaz estelar del oro a $kT=30$ keV y valores obtenidos	. 110
5.1.	Corrección k_{macs} para QMNS y distintos valores del exponente a en $\sigma(E) = E^{-a}$.	. 118
5.2.	Corrección k_{macs} para MNS y distintos valores del exponente a en $\sigma(E) = E^{-a}$	118
5.3.	Correcciones de muestra plana k_f para neutrones de espectro QMNS v distintos valores del exponente a $\sigma(E) = E^{-a}$	193
5.4.	Correcciones de muestra plana para neutrones de fuente puntual, has- ta 88 grados de ángulo de incidencia y espectro MNS y distintos ya-	. 120
5.5.	lores del exponente a $\sigma(E) = E^{-a}$. 123
5.6	a $a=0,5$. 126
5.0. 5.7.	Correcciones de muestra plana para neutrones de fuente puntual y espectro MNS88, MNS60 y MNS30 para distintos valores del exponente	. 120
5.8.	$a \text{ en } \sigma(E) = AE^{-a}$. 128 . 128
7.1.	Tabla de tally card en MCNPX 2.5.0.	. 147
7.2. 7.3	Q-value y energía umbral de la reacción ${}^{7}\text{Li}(p,n)$ [55]	. 149 155
7.4.	Factores totales de transmisión de gammas de 7Be y ^{198}Au	. 156

Bibliografía

- [1] Rolfs, C. E. & Rodney, W. S., Cauldrons in the Cosmos, Chicago: University of Chicago Press, 1998.
- [2] C. Illiadis, Nuclear Physics of the Stars, John Wiley & Sons, 2008.
- [3] S. Weinberg, Los tres primeros minutos del Universo, Madrid: Alianza Ensayo, 1999.
- [4] "NuGrid Nucleosynthesis Grid.," [En línea]. http://www.nugridstars.org/.
- [5] G. Martínez Pinedo, D. Cortina Gil, "Núcleos en el Universo," Revista Española de Física, Vol. 1 Enero-Marzo, 2008.
- [6] A. Eddington, Report of the British Association for the Advancement of Science., p. 34, 1920.
- [7] H.A. Bethe, "Energy production in stars," *Physical Review*, vol. 55, n⁰5, p. 434, 1939.
- [8] E. M. Burbidge, G. R. Burbidge, W. A. Fowler, F. Hoyle, "Synthesis of the elements in stars," *Review of Modern Physics*, vol. 29, n⁰4, pp. 547-650, 1957.
- [9] A.G.W.Cameron, "Stellar evolution, nuclear astrophysics and nucleogenesis," de *Atomic Energy of Canada Limited*, Ontario, 1957.
- [10] "Australia Telescope National Facility," [En línea]. www.atnf.csiro.au.
- [11] R. Gallino, C. Arlandini, M. Busso, M. Lugaro, O. Straniero y M. Limongi, "Evolution and nucleosynthesis in low-mass asymptotic giant branch stars. Neutron capture and the s-process.," *The Astrophysical Journal*, vol. 497, pp. 388-403, 1998.
- [12] M. Arnould, S. Goriely y K. Takahashi, "The r-Process of Stellar Nucleosynthesis: Astrophysics and Nuclear Physics Achievements and Mysteries," *Physics Reports*, n⁰450, p. 97, 2007.
- [13] J. Audouze, J.W. Truran, "p-Process Nucleosynthesis in Postshock Supernova Envelope Environments", *The Astrophysical Journal*, 202 204–213, 1975.
- [14] C. Lederer, "Neutron induced reactions for the s process, and the case of Fe and Ni isotopes," *PoS Proceedings of Sciencie*, vol. NIX XII, n⁰23, 2012.

- [15] B. J. Allen, G. C. Lowenthalt and J. R. de Laeter, "s-process branch at ¹⁷⁶Lu". Journal of Physics G, Nuclear Physics 7 (1981) 1271-1284.
- [16] "Karlsruhe Astrophysical Database of Nucleosynthesis in Stars (KA-DoNiS)," [En línea]. http://nuclear-astrophysics.fzk.de/kadonis.
- [17] Z. Y. Bao, H. Beer, F. Kappeler, F. Voss, K. Wissshak, "Neutron Cross Sections for Nucleosynthesis Studies," *Data and Nuclear Data Tables*, vol. 70, n^o1, pp. 70-154, 2000.
- [18] NNDC, "Maxwellian Averaged Cross Sections and Astrophysical Reaction Rates," [En línea]. http://www.nndc.bnl.gov/astro/.
- [19] I. Dillmann, C. Domingo-Pardo, F. Käppeller, A. Mengoni y K. Sonnabend, "Nuclear Physics of the s-process," *Publications of the As*tronomical Society of Australia, n^o25, pp. 18-29, 2008.
- [20] J. Marganiec, I. Dillmann, C. Domingo-Pardo and F. Käappeler, "Stellar (n,) cross sections of neutron-rich nuclei: completing the isotope chains of Yb, Os, Pt, and Hg", *Physical Review C* 90, 065801 (2014).
- [21] C. Lederer, C.Massimi and nTOF Collaboration, "Neutron Capture Cross Section of Unstable ⁶³Ni: Implications for Stellar Nucleosynthesis", *Physical Review Letters* 110, 022501 (2013).
- [22] A. Wallner, K. Buczak, T. Belgya, M. Bichler, L. Coquard, I. Dillmann, R. Golser, F. Käppeler, A. Karakas, W. Kutschera, C. Lederer, A. Mengoni, M. Pignatari, A. Priller, R. Reifarth, P. Steier, and L. Szentmiklosi, "Precise measurement of the thermal and stellar ⁵⁴Fe(n,)⁵⁵Fe cross sections via accelerator mass spectrometry", *Physical Review C* 96, 025808 (2017).
- [23] IAEA (International Atomic Energy Agency) "Neutron Capture Standards," [En línea]. http://www-nds.iaea.org/standards/.
- [24] NNDC (National Nuclear Data Center), "Evaluated Nuclear Data File," [En línea]. http://www.nndc.bnl.gov/endf/project.html
- [25] A.D.Carlson, V.G.Pronyaev, D.L.Smith, N.M.Larson, Zhenpen Chen, G.M.Hale, F.-J.Hambsch, E.V.Gai, So-Youl Oh, A.Badikov, T.Kawano, H.M.Hofmann, H.Vonach, S.Tagesenk, "International Evaluation of Neutron Cross-Section Standards", *Nuclear Data Sheets* Volume 110, Issue 12, Pages 3215-3324, December 2009.
- "In-[26] IAEA (International Atomic Energy Agency ternational Evaluation of Neutron Cross-Section http://www-Standards", Vienna, 2007.[En línea pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/Pub1291web.pdf.
- [27] NNDC (National Nuclear Data Center), [En línea]. http://www.nndc.bnl.gov/exfor/endf00.jsp.
- [28] W.Ratynski, F.Käppeler, "Neutron capture cross section of ¹⁹⁷Au: A standard for stellar nucleosynthesis.," *Physical Review C*, vol. 37, n⁰2, p. 595–604, 1988.

- [29] F. Käppeler, H. Beer, "Neutron capture cross sections on ¹³⁸Ba, ^{140;142}Ce,^{175;176}Lu, and ¹⁸¹Ta at 30 keV: Prerequisite for investigation of the ¹⁷⁶Lu cosmic clock," *Physical Review C*, vol. 21, n⁰2, p. 534–544, 1980.
- [30] V.G. Pronayev, "¹⁹⁷Au(n,g) standard cross section and experimental data," *IAEA working paper, comunicación privada.*
- [31] V. Pronayev. J. A. Carlson, "An update of the nuclear data standard activities," *Korean Physical Society*, vol. 59, p. 1390, 2011.
- [32] C. Lederer et ad. (n_TOF collaboration), "¹⁹⁷Au(n, γ) cross section in the unresolved resonance region," *Physical Review C*, vol. 83, n⁰034608, 2011.
- [33] IAEA Nuclear Data Section, "Summary Report from the Consultants' Meeting on International Neutron Cross-Sections Standards: Extending and Updating," 2011.
- [34] C. Guerrero ed ad. (n_TOF collaboration), "Performance of the neutron time-of-flight facility n TOF at CERN," *The European Physical Journal A*, vol. 49, n^o27, 2013.
- [35] F. Käppeler, A. Mengoni, "The nTOF Facility at CERN: A New Approach to Quests in Astrophysics and Technology", *Nuclear Physics News* 19 Iss. 3, (2009) 21-27.
- [36] W. Pönitz. "The (n,y) Cross Section of ¹⁹⁷Au at 30 and 64 keV neutron energy", *Journal of Nuclear Energy* Parts A/B, 1966, Vol. 20, pp. 825 to 834.
- [37] I. Dillmann, M. Heil, F. Käppeler, T. Faestermann, G. Korschinek, K. Knie, M. Poutivtsev, G. Rugel, A. Wallner, T. Rauscher, "First measurements of the total and partial stellar cross section to the s-process branching-point ⁷⁹Se", *Proceedings of Science* PoS(NIC-IX)089. (2006).
- [38] G. Rugel, I. Dillmann, T. Faestermann, M. Heil, F. Kaäppeler, K. Knie, G. Korschinek, W. Kutschera, M. Poutivtsev and A. Wallner, "Measurement of (n,c) reaction cross sections at stellar energies for ⁵⁸Ni and ⁷⁸Se", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 259 (2007) 683–687.
- [39] E. Uberseder, R. Reifarth, D. Schumann, I. Dillmann, C. Domingo Pardo, J. Görres, M. Heil, F. Kaäppeler, J. Marganiec, J. Neuhausen, M. Pignatari, F. Voss, S. Walter and M. Wiescher, "Measurement of the ⁶⁰Fe n,) ⁶¹Fe Cross Section at Stellar Temperatures", *Physical Review Letters* 102, 151101 (2009).
- [40] I. Dillmann, C. Domingo-Pardo, M. Heil and F. Käppeler, "Determination of the stellar (n,γ) cross section of ⁴⁰Ca with accelerator mass spectrometry," *Physical Review C* vol. 79, n^o065805, 2009.

- [41] A. Wallner, M. Bichler, K. Buczak, I. Dillmann, F. Käppeler, A. Karakas, C. Lederer ed ad., "Accelerator mass spectrometry measurements of the ¹³C(n, γ)¹⁴C and ¹⁴N(n, p)¹⁴C cross sections," *Physical Rewiew C* vol. 93, n⁰045803, 2016.
- [42] X.-L. Zhou, C.L. Lee, "Thick target neutron yields for the Li(p,n)Be reaction near threshold.," *Nuclear Instruments and Methods in Phy*sics Research B, vol. 152, pp. 1-11, 1999.
- [43] M. Heil, S. Dababneh, A. Juseviciute, F. Käppeler, R. Plag, R. Reifarth, and S. O'Brien "Quasistellar spectrum for neutron activation measurements at kT=5 keV" *Physical Rewiew C* vol. 71, n⁰025803, 2005.
- [44] F. Käppeler, A. A. Naqvi, and M. Al-Ohali "Stellar krypton cross sections at kT=25 and 52 keV" *Physical Rewiew C* vol. 35, n^o936, 1987.
- [45] "Institute for Reference Materials and Measurements," [En línea] http://irmm.jrc.ec.europa.eu/about_IRMM/Pages/index.aspx.
- [46] "Centro Nacional de Aceleradores," [En línea] http://acdc.sav.us.es/cna.
- [47] "Decay Data Evaluation Proyect," [En línea] http://www.nucleide.org/DDEP.htm.
- [48] J. Praena, P.F. Mastinu, G. Martín Hernández, "A Method to Obtain a Maxwell-Boltzmann Spectrum al kT=30 keV fon Nuclear Astrophysics Studies.," *Publications of the Astronomical Society of Australia* vol. 26, pp. 225-231, 2009.
- [49] J. Praena, P.F. Mastinu, M. Pignatari, J.M. Quesada, J. García-López, M. Lozano, N. Dzysiuk, R. Capote and G. Martín-Hernández, "Measurement of the MACS of ¹⁸¹Ta(n,γ) at kT=30 keV as a test of a method for maxwellian neutron spectra generation," *Nuclear Instruments and Methods A* vol. 727, pp. 1-6, 2013.
- [50] J. Ziegler, "SRIM Stopping and Range of Ions in Matter software," [En línea]. www.srim.org.
- [51] Los Alamos National Laboratory, "MCNP, A General Monte Carlo N-Particle Transport Code," [En línea]. https://mcnp.lanl.gov/.
- [52] I. Porras, J. Praena, F. Arias De Saavedra, M. Pedrosa, P. Esquinas y P. Jimenez-Bonilla, "Epithermal neutron beams from the ⁷Li(p,n) reaction near the threshold for neutron capture therapy.," *Il Nuovo Cimento C* vol. 38, nº179, 2015.
- [53] C. Lederer, F. Käppeler ed ad., "Definition of a standard neutron field with the ⁷Li(p,n)⁷Be reaction," *Physical Review C* vol. 85, n^o055809, 2012.

- [54] E. Uberseder, M. Heil, F. Kappeler, J. Gorres and M. Wiesche, "New measurements of the ¹⁹F(n,)²⁰F cross section and their implications for the stellar reaction rate", *Physical Review C* 75, 035801 (2007).
- [55] NNDC, "Nuclear Structure and Decay Data," [En línea] http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/.
- [56] K. Wisshak, G. Walter, F.Käppeler, "Self-Absortion of neutron capture gamma-rays in gold samples," *Nuclear Instruments and Methods* in *Physical Research* vol. 219, pp. 136-140, 1984.
- [57] G. K. Knoll, Radiation Detection and Measurement, New York: John Wiley & Sons, Inc, 1979.
- [58] Ortec GMX Series Coaxial HPGe Detector Product Configuration Guide, "GAMMA-X: N-type Coaxial HPGe Detectors for High-Performance Gamma Spectroscopy in the Energy Range of 3 keV and Upward," [En línea]. www.ortec-online.com.
- [59] J. García-López, F. Ager, M. Barbadillo Rank, F. Madrigal, M. Ontalba, M. Respaldiza y M. Ynsa, "CNA: the firs accelerator-based IBA facility in Spain," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* vol. 161, pp. 1137-142, 2000.
- [60] "Goodfellow Cambrige Ltd.," [En línea]: http://www.goodfellow.com/sp/.
- [61] W. R. Leo, Technniques for Nuclear and Particle Physics Experiments, Springer-Verlag, 1994.
- [62] "GENIE 2000 software family," [En línea]. www.canberra.com.
- [63] "FLUKA a fully integrated particle physics MonteCarlo simulation package," [En línea]. http://www.fluka.org/.
- [64] "Geant4. A toolkit for the simulation of the passage of particles through matter.," [En línea]. http://geant4.web.cern.ch/geant4/.
- [65] E. Agostinelli ed. ad., "Geant4—a simulation toolkit," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A vol. 506, pp. 250-303, 2003.
- [66] D. B. Pelowitz, MCNPX User's Manual. Version 2.5.0., Los Alamos National Laboratory, 2005.
- [67] J. Shultis, "An MCNP Primer," Dept. of Mechanical and Nuclear Engineering, Kansas State University, Manhattan, KS 66506.
- [68] J. L. Parker, General Topics in Passive Gamma-Ray Assay, Los Alamos National Laboratory. [En linea] http://www.lanl.gov/.
- [69] M. M. Guilherme S. Zahn. Frederico A. Genezini, "Evaluation of peak-fitting software for gamma spectrum analysis," de International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2009, Rio de Janeiro, 2009.

- [70] E. Chham, F. Piñero García, T. El Bardouni, M. Á. Ferro-García y M. Azahara, "MonteCarlo analysis of the influence of germanium deadlayer thickness on the HPGe gammadetector experimental efficiency measured by use of extended sources," *Applied Radiation and Isotopes* vol. 95, pp. 30-35, 2015.
- [71] G. J. de S. Correa, W. F. Rebello, R. K. Morales, D. O. Cardoso, S. C. A. Correa y A. X. Da Silva, "Computational modelling of a high purity germaniun (HPGe) detector using MCNPX code," de International Nuclear Atlantic Conference INAC 2011, Belo Horizonte, Brasil, 2011.
- [72] C. Su Park, G. Min Su y H. Choi, "Experimental and simulated efficiency of a HPGe detector in the energy range 0,06 - 11 MeV.," *Journal of the Korean Nuclear Society*, vol. 35, n^o3, pp. 234-242, 2003.
- [73] "NIST Physical Measurements Laboratory," [En línea]. www.nist.gov/pml/data/xraycoef/index.cfm. .
- [74] IAEA, "¹⁹⁷Au cross section standards data," [En línea]. http://www-nds.iaea.org/standards/Data/standards-197Au_xs-data.txt.
- [75] "EXFOR # O1983.004 2012 G.Feinberg. Institute for Reference Materials and Measurements (IRMM)".
- [76] N. Otukaa, B. Lalremruatac, M.U. Khandakerd, A.R. Usmand, L.R.M. Puntec, "Uncertainty propagation in activation cross section measurements", *Radiation Physics and Chemistry* 140 (2017) 502–510.
- [77] G. Feinberg, M. Friedman, A. Krása ed ad., "Quasi-stellar neutrons from the ⁷Li(p,n)⁷Be reaction with an energy-broadened proton beam," *Physical Review C 85, 055810 (2012)*, vol. 85, n^o055810, 2012.
- [78] S. J. Zhou ed ad., Journal of Nuclear Physics, vol. 6, $n^{0}23$, 1984.
- [79] C. Massimi, B. Becker, E. Dupont, S. Kopecky, C. Lampoudis, R. Massarczyk, M. Moxon, V. Pronyaev, P. Schillebeeckx, I. Sirakov, and R. Wynants "Neutron capture cross section measurements for ¹⁹⁷Au from 3.5 to 84 keV at GELINA," *The European Physical Journal A*, vol. 50, nº124, 2014.
- [80] R. L. Macklin, J. Halperin y R. R. Winters, *Physical Rewiew C*, vol. 11, p. 1270, 1975.
- [81] C. M. Lederer y C. S. Shirley, "Table of Isotopes," Wiley, New York, 1978.
- [82] P. Jiménez-Bonilla, Trabajo de Fin de Master: "Hacia un estándar en Astrofísica Nuclear: medida de la sección eficaz estelar de la reacción $^{197}Au(n,\gamma)$ ", Universidad de Sevilla, 2014.

- [83] "NIC XIII Nuclei in the Cosmos Conference. Debrezen, Hungary.," 2014. [En línea]. http://www.nic2014.org/.
- [84] P. Jimenez-Bonilla y J. Praena, "Measurement of the ¹⁹⁷Au(n, γ) stellar cross section at kT=30 by activation.," *Proceedings of Science* PoS(NIC XIII)102, Nuclei in the Cosmos XIII, 2014.
- [85] "Nuclear Physics in Astrophysics VII, York.," [En línea]. http://npa7.iopconfs.org/home.
- [86] Intitute of Physics IOP Conference Series [en linea]. https://conferenceseries.iop.org/
- [87] I. Dillmann, R. Plag, F. Käppeler, A. Mengoni, C. Heinz y M. Pignatari, "The new KADoNiS v1.0 and its influence on the weak s-process nucleosynthesis.," *Proceedings of Sciencie*, PoS(NICXIII)057, Nuclei in the Cosmos XIII, 2014.
- [88] M. Chadwick y e. ad., "ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data," *Nuclear Data Sheets* vol. 112, n⁰12, pp. 2887-2996, 2011.
- [89] "JEFF-3.2 (2014)," [En línea]. www.oecdnea.org/dbforms/data/eva/evatapes/jeff_32/.
- [90] K. Shibata, O. Iwamoto y e. ad., "JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering," Journal of Nuclear Science and Technology vol. 48, n^o1, 2011.
- [91] M. Heil, R. Plag, E. Uberseder, S. Bisterzo, F. Käppeler, A. Mengoni y M. Pignatari, "Stellar neutron capture cross sections of ⁴¹K and ⁴⁵Sc," *Physical Review C* vol. 93, n⁰055807, 2016.
- [92] H. Beer., F. Voss., R.R. Winters, "On the calculation of the maxwellian averaged capture cross section," *The Astrophysical Journal Supplement Series*, vol. 80, pp. 403-424, 1992.
- [93] B. Pritychenko and S.F. Mughabghab, "Neutron Thermal Cross Sections, Westcott Factors, Resonance Integrals, Maxwellian Averaged Cross Sections and Astrophysical Reaction Rates Calculated from the ENDF/B-VII.1, JEFF-3.1.2, JENDL-4.0, ROSFOND-2010, CENDL-3.1 and EAF-2010 Evaluated Data Libraries", Nuclear Data Sheets 113 (2012) 3120–3144.
- [94] T. Rauschers, "Non-Smoker web, a Hauser-Feshbach statistical model code.," [En línea]. https://nucastro.org/websmoker.html.
- [95] R.Reifarth, M. Heil, F. Käppeler, "PINO a tool for simulating neutron spectra resulting from the Li(p,n) reaction," *Nuclear Instruments and Methods A*, vol. 608, n^o1, pp. 139-143, 2009.

- [96] G. Martin-Hernandez, P. Mastinu, M. Maggiore, L. Pranovi, G. Prete, J. Praena, R. Capote-Noy ed ad., "Excitation function shape and neutron spectrum of the ⁷Li(p,n)⁷Be reaction near threshold," *Physical Rewiew C* vol. 94, n^o034620, 2016.
- [97] GNU Software, "OCTAVE Programming Language for Scientific Computing," [En línea]. www.gnu.org/software/octave.