

# Estudio sobre los parámetros de caracterización del comportamiento no ideal de la componente epitérmica del espectro neutrónico en reactores nucleares\*

M. S. Segovia<sup>1,2</sup>, M. C. Fornaciari<sup>1,2</sup>, I. M. Cohen<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Comisión Nacional de Energía Atómica, Centro Atómico Ezeiza.  
Presbítero González y Aragón N° 15 (B1802AYA) Ezeiza,  
Buenos Aires, Argentina.

<sup>2</sup> Universidad Tecnológica Nacional, Facultad Regional Buenos Aires, Departamento de Ingeniería Química y Dirección de Educación de Posgrado.  
Medrano 951 (C1179AAQ)  
Buenos Aires, Argentina.

*e-mail: msolsegovia@yahoo.com.ar*

Recibido el 9 de octubre de 2006; aceptado el 14 de febrero de 2007.

## Resumen

Se ha efectuado el estudio de las desviaciones del comportamiento ideal de la componente epitérmica del espectro neutrónico de un reactor. Se evaluaron los métodos de determinación del parámetro  $\alpha$ , que fue medido en dos posiciones de irradiación del reactor RA-6 del Centro Atómico Bariloche, Comisión Nacional de Energía Atómica. Se desarrolló un método experimental para la determinación de la energía efectiva de resonancia, riguroso en su concepción y de realización simple. Se presentan los resultados de su validación y su aplicación a la determinación de parámetros nucleares en la formación de  $^{110m}\text{Ag}$ .

**PALABRAS CLAVE:** REACTORES NUCLEARES – COMPONENTE EPITÉRMICA – PARÁMETRO ALFA – ENERGÍA EFECTIVA DE RESONANCIA

## Abstract

A study on the departures from the ideal behaviour of the epithermal component of a reactor has been carried out. The methods for the determination of the  $\alpha$  parameter, which was measured in two irradiation positions of the RA-6 reactor (Centro Atómico Bariloche, Comisión Nacional de Energía Atómica), were evaluated. An experimental method for the determination of the effective resonance energy, rigorously conceived and easy to perform, was developed. The results of its validation and its application to the determination of nuclear parameters related to the formation of  $^{110m}\text{Ag}$  are presented.

**KEYWORDS:** NUCLEAR REACTORS -EPITHERMAL COMPONENT – ALFA PARAMETER – EFFECTIVE RESONANCE ENERGY.

\* Trabajo realizado sobre la base de la tesis de M. S. Segovia, para optar al título de Magíster en Radioquímica, bajo la dirección de I. M. Cohen y la codirección de M. C. Fornaciari Iljadica.

## Introducción

Las reacciones nucleares inducidas en todo el espectro neutrónico de los reactores nucleares abren las puertas a una amplia gama temática, donde las aplicaciones y aun en mayor medida los estudios de ciencia básica, encuentran todavía zonas inexploradas, o bien susceptibles de nuevas y más completas investigaciones.

El estudio de las reacciones nucleares inducidas por neutrones se relaciona de una manera recíproca con los datos nucleares disponibles en la bibliografía, sirviéndose unos de otros y realimentándose mutuamente. En este contexto, todo trabajo que implique el uso de una reacción nuclear necesita disponer de datos confiables y todo dato nuclear generado a partir de un reactor debería ser objeto de una revisión crítica del mismo por parte del propio autor. De esta manera, los usuarios podrían conocer su génesis y disponer de información clara y completa en caso de que fuera necesario elegir entre varios datos de idéntica naturaleza. Un requerimiento básico asociado a este estado de cosas es el conocimiento profundo del reactor nuclear utilizado, que no debería ser considerado como una mera máquina, sino objeto de estudios destinados a su caracterización.

La situación actual, respecto de los datos nucleares disponibles, muestra que existen una gran cantidad de datos publicados, donde las deficiencias más notorias son: ausencia de una metodología de organización; coexistencia de diferentes valores, en ocasiones altamente discrepantes, para una misma magnitud; en relación con lo anterior, elección arbitraria de uno de ellos como valor recomendado, sin indicación del criterio empleado en la evaluación. Casos de naturaleza aberrante se presentan cuando un nuevo valor es publicado sin que sea declarado como sustitutivo de los anteriores elaborados por los mismos autores. Éstos, que son sólo algunos ejemplos, muestran un estado caracterizado por el no aprovechamiento integral de los datos existentes y, adicionalmente, por la desorientación de los usuarios.

Las afirmaciones contenidas en el párrafo anterior se hacen particularmente evidentes en el caso de reacciones nucleares inducidas por neutrones en la zona epitérmica del espectro. A la noción tradicional de un flujo ideal dependiente de la inversa de la energía, se contraponen la necesidad de considerar un comportamiento diferente, donde resulta necesario introducir un factor de corrección, conocido genéricamente como parámetro  $a$ . La consideración de este parámetro implica una nueva definición para la integral de resonancia, que conlleva el concepto de energía efectiva de resonancia. La concepción de un flujo epitérmico

no ideal conduce a una visión necesariamente crítica acerca de la validez de los datos nucleares generados en un reactor particular y automáticamente convertidos en valores universales.

El presente trabajo tiene como objetivo llevar a cabo un estudio sobre los parámetros de caracterización del comportamiento no ideal de la componente epitérmica del espectro neutrónico en reactores nucleares. A partir de los desarrollos teóricos se estudian las implicancias de las condiciones reales de determinación en la elaboración de datos nucleares en la zona epitérmica del reactor. Se aplican luego estas nociones a la caracterización de diferentes posiciones del reactor RA-6 (Centro Atómico Bariloche, Comisión Nacional de Energía Atómica) y se presentan los resultados de la determinación de constantes nucleares en un nucleido seleccionado como modelo de estudio.

## La componente epitérmica en un reactor nuclear y su representación

La componente epitérmica del espectro neutrónico en un reactor nuclear corresponde a energías de los neutrones intermedias entre los térmicos y los rápidos, en un rango aproximado de 0,1 a 500 keV. Su distribución se puede representar en forma ideal (Westcott y colaboradores, 1958; Stoughon y Halperin, 1959) por:

$$\Phi_e(E) = \Delta(E) \frac{\phi_e}{E}$$

donde  $E$  es la energía del neutrón,  $\phi_e$  es una constante, y  $\Delta(E)$  es una función de empalme entre las regiones térmica y epitérmica. Tomando una energía umbral  $\mu kT$ , donde  $\mu$  es una constante empírica, de valor 4 para un reactor moderado con agua liviana,  $k$  la constante de Boltzman y  $T$  la temperatura neutrónica,  $\Delta(E)$  representa a una función escalón (Beckurtz y Wirtz, 1964), que se expresa según:

$$\begin{aligned} \Delta &= 0 \text{ si } E < \mu kT \\ \Delta &= 1 \text{ si } E \geq \mu kT \end{aligned}$$

Los neutrones epitérmicos, al igual que los térmicos, inducen reacciones  $(n, \gamma)$ , conocidas como reacciones de captura radiante o simplemente de captura. Al expresar la velocidad de reacción por núcleo para estas reacciones cuando se dividen las componentes térmica y epitérmica del flujo, de acuerdo a la convención de Högdahl (1962), se obtiene:

$$\frac{R}{N} = \int_0^{\infty} \sigma(E) \Phi_1(E) dE + \int_{ECd}^{\infty} \sigma(E) \Phi_e(E) dE$$

donde  $\Phi_t$  es el flujo térmico y  $E_{cd}$ , ligeramente superior a la energía de empalme, es la energía de corte de cadmio, la cual se considera frecuentemente igual a 0,55 eV.

La división de las componentes del flujo planteada, válida sólo cuando no existen resonancias entre las energías correspondientes a  $\mu kT$  y  $E_{cd}$ , representa establecer regiones "subcádmica" y "epicádmica", antes que térmica y epitérmica.

El valor de la primera integral es:

$$\int_0^{\infty} \sigma(E)\Phi_t(E)dE = \sigma_0\phi_s$$

Considerando un flujo epitérmico ideal y definiendo:

$$I_0 = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{dE}{E}$$

la segunda integral se expresa en la forma:

$$\int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E)\Phi_e dE = I_0\phi_{epi}$$

$I_0$  es la integral de resonancia, cuyos valores aparecen en la literatura a partir de límites inferiores diversos. Se adoptará aquí el valor más usado,  $E_{cd} = 0,55$  eV.

En la práctica, el espectro neutrónico epitérmico se desvía del comportamiento  $1/E$  y se introduce, para esta nueva situación, el parámetro  $\alpha$  (Schumann y Albert, 1965; Ryves, 1969), según:

$$\Phi_e(E) = \phi_e \frac{1eV^\alpha}{E^{1+\alpha}}$$

donde  $\alpha$ , independiente de la energía, puede ser positivo o negativo (en general, toma valores entre  $-0,1$  y  $0,1$ ) y depende de la configuración del reactor. Bajo esta consideración, la integral de resonancia queda definida como:

$$I_0 = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E)1eV^\alpha \frac{dE}{E^{1+\alpha}}$$

(El término  $1eV^\alpha$  aparece por la necesidad de incluir una energía de referencia; por comodidad se toma arbitrariamente igual a uno). Esta integral de resonancia debe ser usada para los cálculos de activación epitérmica en una posición de irradiación caracterizada por  $\alpha$ .

En diversos trabajos (De Corte y colaboradores, 1979 A y B; Moens y colaboradores, 1979 A), se ha insistido en la necesidad de tomar en cuenta la desviación de la idealidad del flujo epitérmico y, en consecuencia, la necesidad de efectuar las correcciones pertinentes.

Obviamente, parte del problema es la determinación experimental del parámetro  $\alpha$  y el cálculo de  $Q_0(\alpha)$ , que es el cociente entre la integral de resonancia en el espectro real y la sección eficaz a  $2200$  m.s<sup>-1</sup> ( $Q_0(\alpha) = I_0(\alpha)/\sigma_0$ ). Es conveniente la determinación de los valores de  $Q_0(\alpha)$  en forma relativa, a través de la conversión de los valores de  $Q_0(0)$  evaluados y compilados con la introducción de  $\alpha$  y de los datos de resonancia relevantes, para los cuales se puede prever que los requerimientos de exactitud no serán tan exigentes mientras sean usados sólo como datos de corrección.

No obstante, el aspecto más relevante, prácticamente no tenido en cuenta, es que la adopción de la nueva expresión para la descripción de la componente epitérmica del flujo implica que los valores de las constantes nucleares obtenidos en un reactor no son inmediatamente aplicables a otros, y ni siquiera lo son los medidos en una posición específica de un reactor con respecto a las otras. Así, muchos de los datos de integrales de resonancia y cocientes  $Q_0$  existentes en la literatura serían cuestionables, en tanto no se haya caracterizado adecuadamente el espectro en la posición de irradiación (Arribére y colaboradores, 2005).

Para el desarrollo y la aplicación de la nueva expresión del flujo epitérmico, resulta útil la introducción  $\bar{E}_r$  del concepto de Energía Efectiva de Resonancia. (Ryves y Paul, 1968; Moens y colaboradores, 1979 B; De Corte y colaboradores, 1986). La energía efectiva de resonancia es la energía de una resonancia simple hipotética, la cual da la misma velocidad de reacción resonante que todas las resonancias que posee el isótopo.

Con la introducción de este nuevo concepto, la ecuación que relaciona  $I_0$  (tabulada) con  $I_0(\alpha)$  es:

$$I_0(\alpha) = \left( \frac{I_0 - 0,429\sigma_0}{\bar{E}_r^\alpha} + \frac{0,429\sigma_0}{(2\alpha + 1)E_{cd}^\alpha} \right)$$

Las constantes de interés que surgen del estudio de la componente epitérmica del flujo neutrónico, serán  $Q_0(0)$  (cociente entre la integral de resonancia para un espectro epitérmico ideal y la sección eficaz ( $\sigma_0$ )) y, de manera más general, la integral de resonancia,  $I_0$ .

Según las ecuaciones expuestas, para vincular el valor de  $I_0(0)$  con el de  $I_0(\alpha)$  es necesario efectuar la determinación del parámetro  $\alpha$  y de la energía efectiva de resonancia para cada nucleido, en relación con la reacción nuclear en consideración.

## Métodos de determinación del parámetro $\alpha$

Los métodos para la determinación de  $\alpha$ , cuya posible aplicación fue evaluada en el presente trabajo son:

- I. Método de multimonitores con cubierta de cadmio, desarrollado por Schumann y Albert (1965) y posteriormente generalizado por De Corte y colaboradores (1979 A).
- II. Método de la relación de cadmio, modificado por De Corte y colaboradores (1979 A).
- III. Método del triple monitor sin cubierta de cadmio (De Corte y colaboradores, 1979 B).
- IV. Método para el cálculo simultáneo de  $f$  (relación de flujos térmico a epitérmico) y  $\alpha$  (Cohen y colaboradores, 1996).
- V. Método de determinación a partir de una fórmula aproximada para  $Q_0(\alpha)$  (Cohen y colaboradores, 2006)<sup>1</sup>.

Con respecto a los tres primeros métodos expuestos, los valores de  $\alpha$  extraídos de bibliografía (De Corte y colaboradores, 1979 B) para dos posiciones de irradiación presentan incertidumbres de hasta 44 %. El tratamiento matemático para el cálculo de estas incertidumbres no se explica en forma detallada y, por lo tanto, los valores expuestos podrían ser cuestionables.

Los métodos I, II, y V requieren de irradiaciones bajo cadmio, lo que acarrea ciertos problemas operativos, así como también una eventual depresión del flujo, producida por ese elemento, en el reactor.

El método IV permite la determinación simultánea de  $f$  y  $\alpha$  y no necesita la irradiación de monitores bajo cadmio. Por tratarse de un método donde  $f$  y  $\alpha$  son susceptibles de ser hallados mediante representación gráfica es factible la observación directa de las curvas y la elección de los pares de monitores más apropiados. Además, es posible efectuar en una única experiencia la irradiación de varios pares de monitores.

El método V es el único que tiene en cuenta la forma de cálculo de las energías efectivas de resonancia como parte del criterio de selección de monitores. Su aplicación es sencilla y la precisión de los resultados de  $\alpha$  es satisfactoria.

## Métodos para la determinación de la energía efectiva de resonancia

Para determinar la energía efectiva de resonancia fueron previamente publicados dos métodos, uno de ellos por cálculo (Moens y colaboradores, 1979 B) y el otro experimental (Simonits y colaboradores, 1984). Tanto los valores calculados como los obtenidos con el método experimental representan ciertos problemas, que se describen a continuación:

- En el método por cálculo, la aproximación es únicamente válida, tal como lo admiten los autores, para valores de  $\bar{E}_r$  o  $\alpha$  bajos. Sin embargo, no es ésta la objeción mayor que puede plantearse. El problema principal radica en el hecho de que los parámetros de resonancia, por ser magnitudes dependientes del blanco, no pueden ser discriminados cuando existen estados isoméricos. En consecuencia, los valores actuales de energías efectivas de resonancia excluyen la posibilidad de su aplicación para los casos de activación que conducen a nucleidos metaestables, como así tampoco a los fundamentales donde la contribución de la transición isomérica es menor que el 100 % y el isómero no sea, además, de período mucho menor que su hija.

- El método experimental requiere el conocimiento de varios valores del parámetro  $\alpha$  (en la publicación se determinan siete, en sendas posiciones de irradiación). La determinación de ese parámetro no es sencilla; se debe contar con tantas posiciones de irradiación como valores se requieran y, por otro lado, es bien sabido que la precisión de los métodos existentes para su cálculo es relativamente pobre.

En razón de estas dificultades, la cuestión de determinar experimentalmente la energía efectiva de resonancia no puede considerarse resuelta. En el presente trabajo se describirá el desarrollo de un nuevo método, a partir de una fundamentación diferente.

## Parte experimental

### Descripción general

Las irradiaciones se llevaron a cabo en el reactor RA-6, mientras que las mediciones y la adquisición de datos en el Laboratorio de Análisis por Activación Neutrónica, ambos del Centro Atómico Bariloche. La preparación de las soluciones y los posteriores depósitos se realizaron en el laboratorio de la Unidad de Actividad Radioquímica del Centro Atómico Ezeiza.

---

<sup>1</sup> Al momento de realizar el estudio, el trabajo citado no había sido aún publicado. Se suministra aquí la referencia actual.

## Preparación de las muestras para la irradiación

La forma de preparación de las muestras para irradiación dependió de la forma física del precursor (ver Tabla 1). En el caso de polvos se prepararon envases de polietileno sellados para evitar pérdidas de masa. La muestras metálicas se irradiaron, según su disponibilidad, como alambres, folias o láminas.

de uranio enriquecido al 90 % en  $^{235}\text{U}$ . Cada elemento combustible es del tipo MTR (Material Testing Reactor) de 19 placas. Alrededor del núcleo se ubican bloques de grafito que conforman el reflector de neutrones. Tanto en este último como en el núcleo se encuentran las cajas de irradiación, dentro de las cuales se colocan las muestras a irradiar. Una de las cajas de irradiación está en la zona central del núcleo, posición F5, rodeada de elementos

Tabla 1. Características de las muestras irradiadas

Elemento	Forma física	Masas (órdenes o rango)
Oro	Depósito en papel de filtro, a partir de la disolución del metal en agua regia	$\mu\text{g}$
Circonio	Láminas (Reactor Experiments) de 0,254 mm de espesor	7 - 24 mg
Arsénico	Depósito en papel de filtro, a partir de la disolución de $\text{As}_2\text{O}_3$ (Specpure)	$\mu\text{g}$
Manganeso	Folias de una aleación Cu/Mn (Reactor Experiments), con un contenido en manganeso de 81,3 % y espesor de 0,0508 mm	Decenas de miligramos
Cobre	Alambres (Reactor Experiments) de 0,762 mm de diámetro	1 - 14 mg
Molibdeno	Alambres (Reactor Experiments) de 0,508 mm de diámetro	5 mg
Tungsteno	Polvo (Fluka) en envase de polietileno	mg
Selenio	Polvo (Merck) en envase de polietileno	mg
Germanio	Fragmentos ultrapuros, de los usados en la fabricación de detectores	10 - 50 mg
Samario	Depósito en papel de filtro, a partir de $\text{Sm}_2\text{O}_3$ (Specpure) disuelto en $\text{HNO}_3$	Décimas de microgramo
Plata	Depósito, a partir de la disolución de granallas en $\text{H}_2\text{SO}_4$	mg

En los casos donde las masas a irradiar resultaban muy pequeñas, se prepararon soluciones con el objeto de efectuar luego depósitos de las mismas. Las soluciones se prepararon en los medios de ataque correspondientes, según la droga utilizada (en general ácidos *p.a.*, usualmente Merck); luego se calentaron a temperatura moderada hasta sequedad para eliminar, cuando así correspondía, los ácidos, y por último fueron resolubilizados y llevados a volumen final con agua bidestilada. Con esas soluciones se llenaron recipientes adecuados para el pesado de gotas, previamente tarados. Las masas de la soluciones se determinaron por diferencia entre los pesos del recipiente, lleno y vacío.

Se tuvo siempre en cuenta que el espesor de la muestra fuera lo suficientemente pequeño como para evitar la autoabsorción de la radiación gamma en la medición.

## Sistemas y metodologías de irradiación y medición

El reactor RA-6 es un reactor de investigación de tipo pileta, refrigerado y moderado con agua liviana. Su núcleo está formado por elementos combustibles

combustibles, siendo ésta la posición que tiene niveles de flujo más altos en las tres componentes del espectro neutrónico. Valores típicos de flujo neutrónico en esta posición con el reactor operando a su máxima potencia, 500 kW, son (Ribeiro Guevara, 2001):

$$f_t = 6 \times 10^{12} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1} \text{ en la zona de neutrones térmicos}$$

$$f_{\text{epi}} = 2 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1} \text{ en la zona de neutrones epitérmicos}$$

$$f_r = 2 \times 10^{12} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1} \text{ en la zona de neutrones rápidos}$$

Otra caja de irradiación se encuentra alejada del núcleo, en el reflector (posición I6) y por lo tanto el flujo de neutrones en esa posición es predominantemente térmico, siendo su valor típico  $\phi_t = 7 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  (Ribeiro Guevara, 2001).

Las muestras a irradiar se trasladan desde el laboratorio hasta la posición de irradiación en el núcleo utilizando un sistema neumático de transporte. Luego de irradiadas son recuperadas en el laboratorio a través del mismo sistema.

Las cápsulas plásticas cilíndricas de irradiación en cuyo interior se colocan las muestras tienen 6,5 cm de altura y 2,5 cm de diámetro.

En general, los parámetros a optimizar en las operaciones de irradiación y medición de un nucleido son los siguientes:

- Modo de irradiación
- Posición de irradiación
- Tiempo de irradiación
- Masa
- Tiempo de decaimiento y medición
- Geometría de medición

Con respecto al modo de irradiación, para el método a aplicar resulta más conveniente irradiar las muestras dentro de cazoletas de cadmio, de forma tal de trabajar sólo con la componente epitérmica del espectro neutrónico (ver más adelante *Desarrollo de un Nuevo Método para la Determinación de Parámetros de Resonancia*). El cadmio es un fuerte absorbedor de neutrones hasta una energía cuyo corte depende del espesor empleado y que puede asimilarse a una función escalón. Ya se ha explicado que el cadmio también absorbe neutrones epitérmicos de energía menor que la del corte y que por esta razón su utilización implica de hecho la división del espectro neutrónico en componentes subcádmica y epicádmica.

En razón de las características del estudio involucrado, quedó descartado el uso de la columna térmica del reactor, y se utilizaron las posiciones F5 e I6.

En función del tiempo de irradiación se dividieron las experiencias en dos grupos: irradiaciones cortas (entre 180 s y 600 s) y largas (3600 s a 7200 s). Las irradiaciones más largas corresponden a la posición más termalizada (I6), donde los tiempos mayores estuvieron destinados a lograr actividades similares a las obtenidas en F5.

Con respecto a la metodología para definir las masas a irradiar, a partir de la ecuación de activación y tomando como referencia la actividad y la masa del oro empleadas en un trabajo anterior (Cohen y colaboradores, 2006) se calcularon los valores correspondientes a los restantes nucleidos.

Los tiempos de decaimiento y de medición están vinculados. Existen limitaciones operativas para establecer el tiempo mínimo de decaimiento, a saber: operación de desarmado de la cápsula de irradiación y criterios de protección radiológica. A partir de estas limitaciones, los tiempos de decaimiento se ajustaron de forma tal de encarar primeramente la medición de los nucleidos de más corto período, con tiempos muertos aceptables y geometrías adecuadas.

El procedimiento general para la preparación de las muestras destinadas a medición fue el siguiente:

una vez finalizada la irradiación, la cápsula fue recuperada, volviendo a la campana del laboratorio. En primera instancia fue medida la exposición y, verificada la posibilidad de un manipuleo seguro, se procedió al desarmado de la cápsula. Las cazoletas de cadmio se abrieron cuidadosamente detrás de un blindaje de plomo y cada blanco fue colocado dentro de su correspondiente recipiente de polietileno, que luego se cerró impartiendo una ligera presión al conjunto, para su medición como fuente sellada.

Con respecto a los tiempos de medición, si bien el criterio inmediato y lógico es el de obtener una buena estadística (alrededor de 10.000 cuentas) bajo al menos un pico gamma del nucleido de interés, existen razones operativas que no siempre lo permiten, por ejemplo, si deben interrumpirse las mediciones para evitar el decaimiento excesivo de otros nucleidos de interés producidos en la misma irradiación, o bien si existen interferencias de otros nucleidos de más largo período en la misma matriz. Por lo tanto, y ante la imposibilidad de optimizar la medición de cada radionucleido, se buscaron las condiciones más convenientes para el conjunto irradiado, en forma global.

Acerca de la geometría de medición, se tuvo en cuenta la distancia mínima necesaria para evitar los efectos de suma de los fotones gamma. Por otro lado, se ajustó también la distancia como para que los tiempos muertos fueran, en lo posible, menores a 5 %. No obstante, en algunos casos las características de los radionucleidos obligaron a aceptar tiempos muertos mayores.

El sistema de espectrometría gamma de alta resolución empleado consta de un detector de germanio intrínseco (GeHP) tipo n, marca ORTEC, de 67 cm<sup>3</sup>, con una resolución de 2,0 keV en el pico de 1332,5 keV de <sup>60</sup>Co y una eficiencia de 12,3 % respecto a un cristal de NaI(Tl) de 7,6 x 7,6 cm, a una distancia de 25 cm para la misma transición. El sistema de detección se completa con una fuente de alta tensión ORTEC 459, un amplificador ORTEC 572, un conversor analógico digital ND 583 y un analizador multicanal ND 76.

El detector está asociado a un preamplificador cuyas salidas son pulsos de amplitud proporcional a la carga generada por la interacción de la radiación electromagnética con el cristal. La señal es posteriormente amplificada por un módulo independiente, y luego digitalizada y almacenada en el analizador multicanal. Mediante este módulo se obtiene el registro de número de fotones gamma contados por el sistema de detección en función de la energía depositada en el cristal. El área de los picos de absorción total es proporcional al número de fotones gamma de esa energía, y en consecuencia al número de desintegraciones de los radionucleidos emisores. En la determinación de las áreas de un espectro gamma suelen utilizarse rutinas

que ajustan con diversos métodos los conteos individuales registrados en el analizador multicanal, informando el área de los picos identificados y la energía del centroide. Los espectros se adquirieron con el programa GammaVision, versión 5.1 y luego se procesaron con la rutina Gamanal incluida en el paquete Ganaas, distribuido por el Organismo Internacional de Energía Atómica (1991).

Los detalles de la calibración en eficiencia del detector, con algoritmos de cálculo desarrollados a partir de la medición de la eficiencia absoluta en la posición de referencia y la penetración efectiva, ambas en función de la energía, pueden consultarse en los trabajos de Arribére (1986 y 1997).

### Determinación del parámetro $\alpha$ en las posiciones de irradiación

En razón de sus ventajas operativas, fue elegido el método de Cohen y colaboradores (2006) para la determinación de  $\alpha$  en las dos posiciones del reactor. Se irradiaron conjuntamente oro, en forma de depósito, y zirconio, como pequeñas folias metálicas, en el interior de cazoletas de cadmio.

En la posición I6 las irradiaciones se efectuaron por triplicado, y en F5 por cuadruplicado, para disminuir las incertidumbres. Los valores individuales del parámetro  $\alpha$  presentaron gran coherencia entre sí, permitiendo realizar un promedio final para cada posición.

### Desarrollo de un nuevo método para la determinación de parámetros de resonancia

En forma general, la actividad de un radionucleido producido por una reacción nuclear, normalizada por los factores temporales, se expresa según:

$$A = \frac{m}{PA} \theta \text{Nav} \sigma \phi = \frac{C}{i \epsilon}$$

Donde:

- A: actividad
- m: masa de muestra
- PA: peso atómico del elemento
- $\theta$ : abundancia isotópica del precursor
- Nav: número de Avogadro
- $\sigma$ : sección eficaz
- $\phi$ : flujo de partículas
- C: velocidad de conteo
- i: probabilidad de emisión de la radiación medida
- $\epsilon$ : eficiencia del detector para la energía considerada

Cuando se induce una reacción de captura en un reactor nuclear, el producto  $\sigma \phi$  se expresa como:

$$\sigma \phi = \phi_t \sigma_0 + \phi_{epi} I_0(\alpha); \text{ tomando como factores}$$

comunes  $\phi_{epi}$  y  $\sigma_0$ , definiendo la relación de flujos térmico a epitérmico como f y recordando que  $Q_0(\alpha) = I_0(\alpha)/\sigma_0$ , se obtiene:

$$\sigma \phi = \phi_{epi} \sigma_0 [f + Q_0(\alpha)].$$

Introduciendo esta última ecuación en la de activación e incorporando los factores temporales  $S = 1 - e^{-\lambda t_i}$ ;  $D = e^{-\lambda t_d}$  y  $M = (1 - e^{-\lambda t_m})/\lambda t_m$ , se obtiene:

$$C = N \phi_{epi} \sigma_0 i \epsilon \text{SDM} [f + Q_0(\alpha)] \quad (1)$$

( $t_i$ ,  $t_d$  y  $t_m$  representan a los tiempos de irradiación, decaimiento y medición, mientras que  $N = m \cdot \text{Nav} / PA$ , es el número de átomos del precursor).

Debido a que el método hace uso de los factores  $k_0$  (Simonits y colaboradores, 1975) propuestos inicialmente con miras a su aplicación en análisis por activación neutrónica, se explicará en forma breve su significado.

A partir de la ecuación general de activación, se puede observar que en la expresión de la velocidad de conteo de una determinada radiación gamma aparece una constante:

$$\text{Cte} = \frac{i \theta \sigma_0}{PA}$$

De esta forma, si se usa la expresión de activación con un determinado comparador, distinto del elemento al que se pretende determinar, del cual se conoce su masa y al mismo tiempo se quiere determinar la concentración de un elemento en una muestra desconocida, la expresión correspondiente a la relación de masas que este método relativo tendría es:

$$\frac{m_1}{m_2} = \frac{C_1 (\text{SDM})_2 \epsilon_2 \Phi_{epi_2} [f + Q_0(\alpha_2)] \text{Cte}_1}{C_2 (\text{SDM})_1 \epsilon_1 \Phi_{epi_1} [f + Q_0(\alpha_1)] \text{Cte}_2}$$

En esta expresión se define al  $k_0$  del elemento 1 referente al monitor 2 como:

$$k_{0,2}(1) = \frac{PA_2 \theta_1 i_1 \sigma_{0,1}}{PA_1 \theta_2 i_2 \sigma_{0,2}}$$

La fórmula anterior muestra que la constante  $k_0$  está compuesta por los valores de los datos nucleares fundamentales que se emplean en el análisis absoluto y se pueden determinar experimentalmente a partir de un método relativo utilizando un elemento, comparador, con datos nucleares bien determinados. Este es el caso del oro, con respecto al cual están referidos los  $k_0$  de tablas.

Retornando a la fórmula (1), si se desarrolla la expresión de N, número de átomos y se introduce el factor  $k_0$ , de acuerdo a los conceptos antes explicados, se llega a:

$$\frac{C}{mSDM_E} = N_{av}\phi_{epi}[f + Q_0(\alpha)] \frac{k_0 \theta_{Au} i_{Au} \sigma_{0Au}}{PA_{Au}}$$

Reordenando:

$$\frac{C}{k_0 mSDM_E} = \phi_{epi}[f + Q_0(\alpha)] \frac{N_{av} \theta_{Au} i_{Au} \sigma_{0Au}}{PA_{Au}}$$

El primer término de esta ecuación será denominado genéricamente W.

$$\frac{N_{av} \theta_{Au} i_{Au} \sigma_{0Au}}{PA_{Au}}$$

es una constante expresada a través del número de Avogrado y de parámetros bien tabulados del oro. Para una misma posición de irradiación, el producto entre esta última constante y  $\phi_{epi}$  es también una constante, que será denominada K. De esta forma, la ecuación queda expresada como sigue:

$$W = K[f + Q_0(\alpha)]$$

Las variaciones de W en función de  $Q_0(\alpha)$  se describen mediante una recta donde la pendiente es  $m = K$  y la ordenada al origen es  $a = Kf$ .

Como puede observarse, W, que es proporcional a la actividad, es también proporcional a  $Q_0(\alpha)$ . En una posición de irradiación definida, su valor puede ser considerado único para cada nucleido. El peso relativo de  $Q_0(\alpha)$  es mayor cuanto menor es f; por lo tanto, es conveniente realizar irradiaciones bajo cadmio ( $f \approx 0$ ).

A partir de los factores W obtenidos y de los parámetros  $Q_0(\alpha)$  calculados para una serie de nucleidos seleccionados como estándares es posible generar, en cada posición de irradiación, rectas de calibración a partir de las cuales se puede obtener el valor  $Q_0(\alpha)$  de un nucleido incógnita.

Los parámetros  $Q_0(\alpha)$  obtenidos en dos posiciones de irradiación, diferenciadas a partir del parámetro  $\alpha$  (que depende de la configuración del núcleo) permiten plantear un sistema de ecuaciones:

$$Q_0(\alpha_1) = \frac{W_1 - a_1}{m_1} = \frac{Q_0(0) - 0,429}{\bar{E}_r^{\alpha_1}} + \frac{0,429}{(1 + 2\alpha_1)0,55^{\alpha_1}}$$

$$Q_0(\alpha_2) = \frac{W_2 - a_2}{m_2} = \frac{Q_0(0) - 0,429}{\bar{E}_r^{\alpha_2}} + \frac{0,429}{(1 + 2\alpha_2)0,55^{\alpha_2}}$$

Resolviendo este sistema es posible determinar tanto las energías efectivas de resonancia como las constantes  $Q_0(0)$  y, a partir de estas últimas, las integrales de resonancia. Se sientan así los principios para obtener los parámetros de resonancia de manera experimental.

### Selección de nucleidos para la estandarización, la validación y la aplicación del nuevo método

Para obtener las curvas de calibración se eligieron nucleidos sobre los que la reacción de captura ( $n,\gamma$ ) no condujera a la formación de isómeros. Además, se puso especial atención a los valores de los parámetros publicados, particularmente en relación con los factores  $Q_0(0)$  y las energías efectivas de resonancia. Se evitó el uso de nucleidos con energías efectivas de resonancia excesivamente altas y se seleccionaron los factores  $Q_0(0)$  como para cubrir un amplio rango de valores. En los casos donde existía más de una opción, se dio preferencia a los valores determinados con mejor precisión.

En la posición de irradiación F5 se utilizó una recta obtenida a partir de nucleidos irradiados en distintos ciclos de irradiación; para corregir la variación de los datos en función de las pequeñas fluctuaciones de potencia en las diferentes condiciones, se normalizaron todas las actividades tomando al oro como referencia. Las actividades normalizadas con respecto a la relación de actividades de los monitores de oro dieron lugar a una nueva magnitud,  $W_{norm}$ , cuyo valor numérico es  $W/fn$ , donde  $fn$  es el factor de normalización.

En relación con las irradiaciones efectuadas en la posición I6, las fluctuaciones de potencia, y en consecuencia las variaciones de flujo, fueron suficientemente grandes como para que los factores de normalización se encontraran muy alejados del valor unitario. En razón de que la utilización de la magnitud  $W_{norm}$  hubiera implicado aquí la aparición de incertidumbres relativamente grandes, no se usó una curva total, sino curvas independientes, cada una de ellas correspondiente a un ciclo específico. Se irradió en cada ocasión una cantidad adecuada de monitores, suficiente como para confeccionar gráficos independientes.

Para demostrar la validez del método propuesto se usó la reacción ( $n,\gamma$ ) sobre  $^{152}\text{Sm}$ , que conduce a la

formación de un sólo producto,  $^{153}\text{Sm}$ . Este nucleido tiene un período de semidesintegración que permite su medición en tiempos relativamente prolongados y además presenta una transición gamma de intensidad y energía adecuadas para una buena detección.

Las reacciones  $(n,\gamma)$  sobre los otros isótopos de samario son:  $^{150}\text{Sm}(n,\gamma)^{151}\text{Sm}$  y  $^{154}\text{Sm}(n,\gamma)^{155}\text{Sm}$ . El  $^{151}\text{Sm}$ , además de su muy largo período (93 a), presenta transiciones gamma de muy baja energía e intensidad que no interfieren en la medición del  $^{153}\text{Sm}$ . El  $^{155}\text{Sm}$  presenta una transición gamma de 104 keV y un período de semidesintegración 22,4 min; en la medición del  $^{153}\text{Sm}$  se debió entonces esperar un tiempo que asegurara su decaimiento hasta valores despreciables.

El criterio aplicado en la definición de las incógnitas estuvo relacionado con dos aspectos ya comentados en este trabajo: la ausencia de datos para la activación epitérmica de algunos nucleidos, o bien la existencia en la literatura de valores al menos cuestionables, por no haberse considerado en su elaboración al parámetro alfa, o por haberse empleado energías de resonancia, en los casos

de pares isoméricos, correspondientes al precursor, sin discriminación de las reacciones.

La investigación comprendió a varios isótopos del zinc y a un isótopo de la plata, en este caso en relación con la producción de  $^{110m}\text{Ag}$ , sobre la que existen datos que podrían encuadrarse en la problemática expuesta. Se describirán aquí los detalles correspondientes al estudio sobre este último radionucleido, debido a que los datos sobre zinc forman parte de otra publicación (Segovia y colaboradores, 2007).

Los datos de todas las reacciones nucleares, los precursores y los productos se indican en la Tabla 2. Los valores de las incertidumbres (indicados entre paréntesis) para las energías efectivas de resonancia corresponden a las últimas cifras significativas de la magnitud tabulada. Por razones de espacio, se han suprimido las incertidumbres de las magnitudes no relevantes en la calibración.

**Tabla 2. Datos nucleares de los nucleidos empleados en la estandarización, la validación y la aplicación del nuevo método**

Reacción Nuclear	Precursor				Producto		
	$\theta$ , % <sup>a</sup>	$\bar{E}$ , eV	$Q_0$	PA <sup>a</sup>	$T_{1/2}$	$\bar{E}$ , keV	$k_0$
$^{75}\text{As}(n,\gamma)^{76}\text{As}$	100	103 (36) <sup>c</sup>	14,0 <sup>b</sup>	74,92160	26,24 h <sup>g</sup>	559,10 <sup>g</sup>	4,97 E-02 <sup>b</sup>
$^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$	100	468 (51) <sup>c</sup>	1,07 <sup>b</sup>	54,938049	2,57878 h <sup>f</sup>	846,776 <sup>f</sup>	4,96 E-01 <sup>b</sup>
$^{65}\text{Cu}(n,\gamma)^{66}\text{Cu}$	30,83	766 (130) <sup>c</sup>	1,06 <sup>b</sup>	63,546	5,120 min <sup>g</sup>	1039,2 <sup>g</sup>	1,86 E-03 <sup>b</sup>
$^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$	24,13	241 (48) <sup>c</sup>	53,1 <sup>b</sup>	95,94	65,94 h <sup>g</sup>	739,500 <sup>g</sup>	8,42 E-05 <sup>b</sup>
$^{186}\text{W}(n,\gamma)^{187}\text{W}$	28,43	20,5 (2) <sup>c</sup>	13,7 <sup>b</sup>	183,84	23,72 h <sup>g</sup>	479,550 <sup>g</sup> 685,73 <sup>g</sup>	2,97 E-02 <sup>b</sup> 3,71 E-02 <sup>b</sup>
$^{74}\text{Se}(n,\gamma)^{75}\text{Se}$	0,89	29,4 (4,1) <sup>d</sup>	11,5 <sup>d</sup>	78,96	119,79 d <sup>g</sup>	136,0001 <sup>g</sup> 264,6576 <sup>g</sup>	6,76 E-03 <sup>d</sup> 7,11 E-03 <sup>d</sup>
$^{74}\text{Ge}(n,\gamma)^{75}\text{Ge}$	36,73	3540 (7,9) <sup>d</sup>	1,68 <sup>d</sup>	72,64	82,78 min <sup>g</sup>	198,6 <sup>g</sup>	6,15 E-05 <sup>d</sup>
$^{152}\text{Sm}(n,\gamma)^{153}\text{Sm}$ <sup>1</sup>	26,75			150,36	1,92848 d <sup>f</sup>	103,18012 <sup>f</sup>	2,31 E-01 <sup>d</sup>
$^{109}\text{Ag}(n,\gamma)^{110m}\text{Ag}$ <sup>1</sup>	48,161			107,8682	248,78 d <sup>f</sup>	657,7600 <sup>f</sup> 677,6239 <sup>f</sup> 706,6780 <sup>f</sup> 763,9452 <sup>f</sup>	3,50E-02 <sup>d</sup> 3,93E-03 <sup>d</sup> 6,12E-03 <sup>d</sup> 8,27E-03 <sup>d</sup>

<sup>1</sup> Los datos de energía efectiva de resonancia y de  $Q_0$  se indican más adelante, al discutir los resultados.

<sup>a</sup> Tuli (2000)

<sup>b</sup> Moens y colaboradores (1984)

<sup>c</sup> De Corte y colaboradores (1987)

<sup>d</sup> De Corte y colaboradores (1993)

<sup>f</sup> Monographie BIPM-5 (Bé y colaboradores, 2004)

<sup>g</sup> Base de datos Nudat (2005)

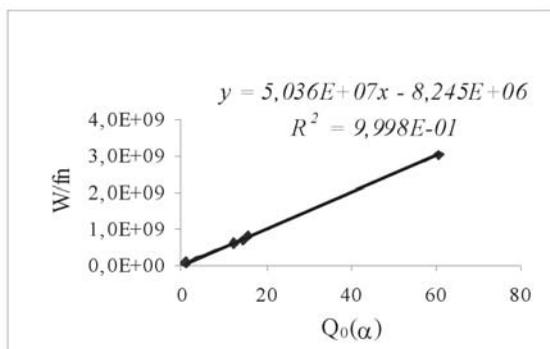
## Resultados y discusión

Tal como fue mencionado, las mediciones del parámetro  $\alpha$  mostraron una muy satisfactoria reproducibilidad. El promedio de las determinaciones fue:

$\alpha$ , F5 (incertidumbre, %): -0,0239 (10)

$\alpha$ , I6 (incertidumbre, %): 0,0266 (10)

Con relación al nuevo método para la determinación de energías efectivas de resonancia y factores  $Q_0$ , la estandarización arrojó resultados coherentes. La Figura 1 muestra, a título de ejemplo, una de las curvas de calibración obtenidas, en este caso en la posición F5.



**Figura 1. Curva de calibración en F5, para la estandarización del nuevo método**

Los resultados obtenidos en relación con la validación del método y su aplicación a los nucleidos seleccionados como incógnitas tienden a demostrar las virtudes del método desarrollado, sin pretender en este caso la determinación de valores de tabla, que requerirían un mayor número de replicados y la realización de las irradiaciones focalizadas en un fin específico, con un menor número de especímenes.

Tal como ha sido discutido, se utilizó al  $^{153}\text{Sm}$  para validar el método. Los valores de  $Q_0(\alpha)$ , calculados a partir de las expresiones analíticas de las curvas de calibración, y sus incertidumbres, determinadas a partir de las fórmulas de propagación de errores, se indican en la Tabla 3.

Con estos resultados se calculó el valor de  $\bar{E}_r$  cuya incertidumbre resultó mayor a 80 %. El aporte principal a ese porcentaje proviene de las incertidumbres de  $Q_0(\alpha)$  en ambas posiciones de irradiación.

De manera general, la estrategia para disminuir el intervalo de confianza en el que se encuentra  $\bar{E}_r$  se basa en reducir la incertidumbre de los valores de  $Q_0(\alpha)$ ; esto se realiza minimizando las incertidumbres de las actividades y por lo tanto las de  $W$ .

Con el objeto de evaluar la potencialidad del método, se analizaron las incertidumbres finales de  $Q_0(\alpha)$  y  $\bar{E}_r$  resultantes de un valor de 1 % en la incertidumbre de  $W$ . Esta premisa no es arbitraria, puesto que tal precisión es fácil de lograr a partir de irradiaciones replicadas, lo que permite obtener un valor promedio, con incertidumbre obviamente menor que la correspondiente a los valores individuales.

Recalculando las incertidumbres de  $Q_0(\alpha)$  de acuerdo a estas pautas, se obtuvieron incertidumbres porcentuales iguales a 1,4 y 1,3, para las posiciones F5 e I6, respectivamente. Comparando estos valores con los obtenidos anteriormente, se observa que la incertidumbre ha disminuido notablemente. Sobre esta base se efectuaron en este caso seis réplicas de las determinaciones.

El valor de  $\bar{E}_r$  y su incertidumbre se indican en la Tabla 4.

**Tabla 3. Resultados de la determinación de  $Q_0(\alpha)$  para la formación de  $^{153}\text{Sm}$  en las posiciones de irradiación empleadas**

Posición	$Q_0(\alpha)$	Incetudumbre	Incetudumbre, %
F5	15,02	0,50	3,3
I6	13,85	0,34	2,5

**Tabla 4. Resultados de la determinación de la energía efectiva de resonancia para la formación del  $^{153}\text{Sm}$**

Energía de Resonancia	Valor, eV	Incetudumbre
Experimental	5,02	2,0 (40 %)
Valor de tablas*	8,53	0,09 (1,06 %)

\*extraído de De Corte (1987)

La incertidumbre porcentual del valor de  $De$  de Corte (1987) es, curiosamente una de las más bajas que consigna en su tabulación. No obstante, es necesario destacar que estos valores resultan, como se ha mencionado anteriormente, de un cálculo aproximado basado en un desarrollo en serie acotado a los dos primeros términos. Tal como puede observarse, el valor experimental calculado en el presente trabajo muestra una razonable aproximación con el tabulado, con la ventaja de ser intrínsecamente correcto, dado su carácter experimental, aun cuando su incertidumbre es considerablemente mayor.

De todas formas, es también importante enfatizar el hecho de que las diferencias entre los valores de  $\bar{E}_\alpha$  son notablemente menores que las registradas para los valores absolutos de  $\bar{E}_\alpha$ , hecho que conlleva una considerable amortiguación de los eventuales errores, tal como se muestra en la Tabla 5.

valores refieren, en realidad a datos de  $Q_0(\alpha)$ , particulares de cada reactor y su posición de irradiación. De esta forma, una buena parte de los datos publicados carece del carácter universal requerido para una constante nuclear y sólo inducen a confusión y errores por parte del usuario.

Los valores finales obtenidos la formación del  $^{153}\text{Sm}$  son:

$$\bar{E}_\alpha = 5,02 \text{ eV} \pm 2,0 \text{ eV} (40 \%)$$

$$Q_0(0) = 14,45 \pm 0,34 (2,3 \%)$$

$$I_0 = 2980 \text{ b} \pm 110 \text{ b} (3,7 \%)$$

Además del dato publicado para  $\bar{E}_\alpha$ , los valores de literatura para este nucleido son:

- Moens y colaboradores (1984):  $Q_0(0) = 14,4$ ; no se informa incertidumbre de este valor, que por lo tanto debería considerarse sólo como dato de orientación.

Tabla 5. Comparación entre valores de  $\bar{E}_\alpha$  y  $\bar{E}_\alpha^\alpha$  para la formación del  $^{153}\text{Sm}$

Magnitud	Valor experimental	Valor de tabla	Diferencia %
$\bar{E}_\alpha$ (eV)	5,02	8,53	41
$\bar{E}_\alpha^{\alpha*}$	0,96	0,95	1,05

\*Corresponde a  $\alpha_{1r}$ , parametro determinado en la posición 1-5.

Se observa aquí que la diferencia de 41 % entre los valores de  $\bar{E}_\alpha$  se reduce a 1,05 % cuando se eleva dicha magnitud al parámetro alfa. Del mismo modo, el valor relativo de 40 %, correspondiente a la incertidumbre del valor experimental de  $\bar{E}_\alpha$  se reduce significativamente a sólo 2 %.

Ya ha sido discutido que el carácter de los valores de  $Q_0(\alpha)$  no es universal, puesto que ellos dependen de alfa. Cabe destacar que en la literatura existen valores supuestamente universales, dado que en su elaboración se trabajó bajo la premisa de un flujo epitérmico ideal (comportamiento 1/E). Estos

- Mughabghab y colaboradores, 1981:  $\sigma_0 = (206 \pm 6) \text{ b}$ ;  $I_0 = (2970 \pm 100) \text{ b}$ .
- Gryntakis y colaboradores, 1987:  $\sigma_0 = (206 \pm 6) \text{ b}$ ;  $I_0 = (2960 \pm 150) \text{ b}$ .

Los valores obtenidos coinciden, dentro de las incertidumbres, con los valores publicados.

En la Tabla 6 se muestran los resultados obtenidos para la  $^{110m}\text{Ag}$ , seleccionado como nucleido incógnita.

Tabla 6. Resultados de la medición de parámetros nucleares para la formación de  $^{110m}\text{Ag}$

Magnitud	Valor	Incertidumbre	Inceridumbre, %
$\bar{E}_\alpha^\alpha$	0,8994	0,019	2,1
$Q_0(0)$	18,31	0,45	2,5
$I_0^1$	86,0 b	4,2 b	4,9

<sup>1</sup> Valor calculado a partir del resultado experimental para  $Q_0(0)$ , considerando  $\sigma_0 = (4,7 \pm 0,2) \text{ b}$  (Gryntakis y colaboradores, 1987)

De Corte y colaboradores (1993) informan tres valores de  $Q_0(0)$  para  $^{110m}\text{Ag}$ : 17,4 (4,3 %); 16 (2,5 %); 16,7 (4,2 %). Se observa, en primera instancia, que los valores extremos no son promediables. Los autores recomiendan al valor 16, sin exponer el criterio de selección. Probablemente esta elección se deba a que es el que presenta menor incertidumbre, aun cuando el criterio, de existir, parecería arbitrario.

Moens y colaboradores (1984) publican un valor de 17,7 para  $Q_0(0)$  sin incertidumbre asociada. Datos de estas características sólo pueden tener carácter de orientación, puesto que no tiene sentido informar los resultados de medición de una magnitud física sin indicar la incertidumbre asociada.

Para  $\sigma_0$  (referencia para el cálculo) e  $I_0$  se encontraron en la literatura los siguientes valores:

- Gryntakis y colaboradores, 1987:  $s_0 = (4,7 \pm 0,2) \text{ b}$ ;  $I_0 = (72,8 \pm 5) \text{ b}$
- Mughabghab y colaboradores, 1981:  $s_0 = (4,7 \pm 0,2) \text{ b}$ ;  $I_0 = (72,3 \pm 4) \text{ b}$

Es preciso señalar, una vez más, que no existe constancia alguna acerca de la consideración del parámetro  $\alpha$  en la elaboración de estos valores. Si realmente este parámetro no fue tenido en cuenta, el valor experimental de  $I_0$  obtenido en este trabajo no es enteramente comparable con los de tablas. Si, en cambio, fue considerado, los autores antes referidos debieron utilizar para el cálculo del valor de la integral la energía de resonancia obtenida a partir de los parámetros del blanco (incorrectamente aplicados a estados isoméricos), por lo que tampoco tendría sentido evaluar el valor experimental comparándolo con los publicados. De todas formas, la no consideración de  $\alpha$  no conduciría a errores importantes, puesto que los valores de tabla son cercanos al presente.

Cabe destacar, a modo de consideración complementaria, que la metodología propuesta en el presente trabajo para la determinación de  $Q_0(0)$  y  $\bar{E}_\alpha$  es conceptualmente diferente a la hasta ahora aplicada. En consecuencia no todos los valores finales son comparables a los publicados.

Las diferencias que existen entre los datos podrían deberse a la no consideración del parámetro  $\alpha$  o bien a la utilización en general de energías de resonancia erróneas. En este sentido, han sido ya explicadas las razones por las cuales el método aquí desarrollado conduce a la determinación de energías de resonancia intrínsecamente correctas. Si bien la precisión resulta algo pobre, es necesario destacar el efecto de amortiguación de la incertidumbre cuando la energía de resonancia es elevada a la potencia alfa.

## Conclusiones

Hasta donde llega el conocimiento de los autores, éste es el primer estudio donde las desviaciones del comportamiento ideal de la componente epitérmica del espectro neutrónico de un reactor han sido enfocadas, antes que en las características del reactor mismo o en la necesidad de efectuar correcciones en los procesos analíticos, en su implicancia, con relación a la calidad del dato nuclear derivado de las condiciones reales de determinación. Esta visión representa, tanto en la filosofía de trabajo como en su metodología, una forma diferente de encarar el problema.

Un ejemplo podría ilustrar con mayor claridad la afirmación anterior: si el apartamiento de la idealidad es evaluado con el propósito de lograr mayor exactitud en el análisis por activación paramétrico, los factores involucrados (la energía efectiva de resonancia del radionucleido y el parámetro  $\alpha$  de la posición de irradiación) son datos auxiliares en la corrección de  $Q_0(0)$  a  $Q_0(\alpha)$ , cuyo efecto, en la mayor parte de los casos, se amortigua en forma significativa al realizar la corrección equivalente en el comparador. El proceso inverso, es decir, la medición de  $Q_0(\alpha)$  con la intención de obtener  $Q_0(0)$ , dato de carácter universal, requiere una consideración mucho más rigurosa de los factores mencionados.

A partir de la premisa recién enunciada, se evaluaron en forma exhaustiva los métodos de determinación de alfa. Sobre la base de este estudio parcial, se llegó a seleccionar a aquél que cumplía con los requerimientos primarios de adecuado desarrollo teórico y viabilidad experimental, unidos a resultados confiables y reproducibles.

La cuestión de los métodos de determinación de la energía efectiva de resonancia merece un tratamiento especial. Hasta aquí existían en la literatura sólo dos: uno de los métodos, de naturaleza experimental, es de ejecución tan engorrosa que prácticamente no fue utilizado, ni aun por sus mismos autores; el otro, resultante de un cálculo aproximado, presenta serias limitaciones con respecto a las energías de resonancia altas y es además no aplicable cuando existen estados isoméricos, situación soslayada en la aplicación a ultranza de supuestos factores de corrección. Esta situación llevó a uno de los logros más significativos del presente trabajo, que fue el desarrollo de un nuevo método experimental, riguroso en su concepción, de realización simple y debidamente validado.

Antes de entrar en la consideración de los resultados obtenidos mediante la aplicación del nuevo método para la determinación experimental de energías efectivas de resonancia, es oportuno formular una

reflexión previa: la bondad de un dato no debe juzgarse en función de una incertidumbre eventualmente baja (muchas veces consecuencia de subestimar o ignorar factores de variabilidad que influyen en el dato) sino en su propia elaboración, comenzando por la rigurosidad del método y siguiendo por todas las variables que aseguren su calidad, entre ellas la consistencia interna de los datos de partida. Si bien las incertidumbres de las energías efectivas de resonancia surgidas del empleo de este nuevo método son significativamente mayores, en comparación con las consignadas en los datos de literatura, los valores son intrínsecamente correctos. Esta consideración resultaría decisiva, en caso de duda, acerca de la opción entre valores discrepantes. Debe recordarse, además, que el método desarrollado permite la determinación de energías efectivas de resonancia en la generación de estados isoméricos y no presenta limitación alguna en relación con la dimensión de estas constantes.

Es posible que en condiciones experimentales más favorables las energías efectivas de resonancia puedan medirse con incertidumbres menores. Ya fue discutida esta cuestión, señalando los factores que podrían conducir hacia valores más bajos de incertidumbre, pero es importante destacar el hecho, también señalado en las secciones anteriores, que el verdadero factor involucrado en la determinación de constantes  $Q_0(0)$  e integrales de resonancia no es  $\bar{E}_r$ , energía efectiva de resonancia, sino  $\bar{E}_r^\alpha$ , cuya incertidumbre es notablemente menor. De esta forma, valores relativamente altos en la incertidumbres de la energía efectiva de resonancia no son obstáculo para la determinación precisa de constantes  $Q_0(0)$  e integrales de resonancia.

El método al que se hizo mención en los párrafos precedentes fue desarrollado para cubrir el vacío existente en la determinación correcta de energías efectivas de resonancia, pero es importante destacar que también incluye la posibilidad de determinación de las constantes  $Q_0(0)$ , sumando otro aspecto favorable a su aplicación.

Aun cuando los logros del presente trabajo pueden estimarse relevantes, el resultado más importante, posiblemente, radica en las perspectivas que abre para futuros desarrollos. Es factible la aplicación a otros reactores el estudio del comportamiento no ideal de la componente epitérmica, de forma tal que nuevos datos nucleares, de generación rigurosa y, en consecuencia, de mayor calidad, podrán engrosar la literatura o bien reemplazar a muchos de los actualmente existentes. Un nuevo camino, a través del cual la comunidad científica disponga de datos nucleares auténticamente universales, podría, tal vez, abrirse a partir de la presente contribución.

## Agradecimientos

Los autores desean agradecer la colaboración prestada por M. A. Arribére, A. J. Kestelman, S. Ribeiro Guevara, R. Sánchez, A. F. Iglicky, R. R. Plá, A. Mondino y J. C. Furnari en la realización de diferentes aspectos de este trabajo.

## Referencias

- ARRIBÉRE, M. A. (1986) Trabajo Especial, Carrera de Ingeniería Nuclear. Instituto Balseiro, Comisión Nacional de Energía Atómica y Universidad Nacional de Cuyo, Bariloche, Argentina.
- ARRIBÉRE, M. A. (1997) Tesis Doctoral. Instituto Balseiro, Comisión Nacional de Energía Atómica y Universidad Nacional de Cuyo, Bariloche, Argentina.
- ARRIBÉRE, M. A.; COHEN, I. M.; KESTELMAN, A. J.; RIBEIRO GUEVARA, S.; ARRONDO, M.; FORNACIARI ILJADICA, M. C. (2005) *Proyecciones*, Vol. 3, No. 1, 37.
- BÉ, M. –M.; CHISTÉ, V.; DULIEU, C.; BROWNE, E.; CHECHEV, V.; KUZMENCO, N.; HELMER, R.; NICHOLS, A.; SCHÖNFELD, E.; DERSCH, R. (2004) *Monographie BIPM-5, Table of Radionuclides, Vol. 1 – A = 1 to 150*. Bureau International des Poids et Mesures.
- BECKURTZ, K. H.; WIRTZ, K. (1964) *Neutron Physics*. Springer-Verlag, Berlin.
- COHEN, I. M.; FURNARI, J. C.; MONTOYA, E. H.; ARRIBÉRE, M. A.; KESTELMAN, A. J.; MENDOZA, P.; TORRES, B. (1996) *Second International  $k_0$  Users Workshop. Ljubljana, Slovenia, 30 September – 3 October*.
- COHEN, I. M.; ARRONDO, M.; ARRIBÉRE, M. A.; FORNACIARI ILJADICA, M. C. (2006) *Nucl. Sci. Eng.* 154, 110.
- DE CORTE, F. (1987) en *Handbook on Nuclear Activation Data*. IAEA Technical Reports Series 273, p. 256. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- DE CORTE, F.; MOENS, L.; SORDO EL-HAMMAMI, K.; SIMONITS, A.; HOSTE, J. (1979 A) *J. Radioanal. Chem.* 52, 306.
- DE CORTE, F.; MOENS, L.; SIMONITS, A.; DE WISPELAERE, A.; HOSTE, J. (1979 B) *J. Radioanal. Chem.* 52, 295.
- DE CORTE, F.; SIMONITS, A.; BELLEMANS, F.; FREITAS, M. C. (1993) *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 69, 125.
- GRYNTAKIS, E. M.; CULLEN, D. E.; MUNDY, G. (1987) en *Handbook on Nuclear Activation Data*, IAEA Technical Reports Series 273, p. 199. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- HÖGDAHL, O. T. (1962) en *Radiochemical Methods of Analysis, Vol. No 1*. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- MOENS, L.; SIMONITS, A.; DE CORTE, F.; HOSTE, J. (1979 A) *J. Radioanal. Chem.* 54, 377.
- MOENS, L.; DE CORTE, F.; SIMONITS, A.; DE WISPELAERE, A.; HOSTE, J. (1979 B) *J. Radioanal. Chem.* 52, 379.
- MOENS, L.; DE CORTE, F.; DE WISPELAERE, A.; HOSTE, J.; SIMONITS, A.; ELEK, A.; SZABÓ, E. (1984) *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 82/2, 385.
- MUGHABGHAB, S. F.; DIVADEENAM; HOLDEN N. E. (1981) "*Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections*". Academic Press, New York.
- NUDAT2, base de datos disponible vía internet en <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2> (Última consulta realizada en octubre de 2005).
- ORGANISMO INTERNACIONAL DE ENERGÍA ATÓMICA (1991) *Nuclear Analysis Software, Part. 2: Gamma Spectrum Analysis, Activity Calculations and Neutron Activation Analysis*. IAEA/CMS/3. Vienna, Austria.
- RIBEIRO GUEVARA, S. (2001) Tesis Doctoral. Instituto Balseiro, Comisión Nacional de Energía Atómica y Universidad Nacional de Cuyo, Bariloche, Argentina.

RYVES, T. B.; PAUL, E. B. (1968) *J. Nucl. Energy.* 22, 759.  
SCHUMANN, P.; ALBERT, D. (1965) *Kernenergie* 2, 88.  
SEGOVIA, M. S.; FORNACIARI ILJADICA, M. C., ARRIBÉRE, M. A.; COHEN, I. M. (2006). Trabajo aceptado para su presentación en *International Conference for Nuclear Data in Science and Technology*. Nice, France, April 22-27.  
SIMONITS, A.; DE CORTE, F.; HOSTE, J. (1975) *J. Radioanal. Chem.* 24, 31.  
SIMONITS, A.; JOVANOVIĆ, S.; DE CORTE, F.; MOENS, L.; HOSTE, J. (1984) *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles* 82/1, 169.  
STOUGHTON, R. W.; HALPERIN, J. (1959) *Nucl. Sci. Eng.* 6, 100.  
WESTCOTT, C. H.; WALKER, W. H.; ALEXANDER, T. K. (1958) *Proc. 2<sup>nd</sup>. Int. Conf. in Peaceful Uses of Atomic Energy*, Geneva, Vol. 16 Session A11, p. 202. International Atomic Energy Agency, Vienna.  
TULI, K. J. (2000) *Nuclear Wallet Cards, Sixth Edition*. National Nuclear Data Center. Brookhaven National Laboratory, USA.