



*Universidad Tecnológica Nacional
Facultad Regional Buenos Aires*

**INFLUENCIA DEL COMPARADOR EN LAS CORRECCIONES POR
COMPORTAMIENTO NO IDEAL DEL FLUJO EPITÉRMICO Y SU
IMPLICANCIA EN LOS MÉTODOS PARAMÉTRICOS DE ANÁLISIS
POR ACTIVACIÓN NEUTRÓNICA**

Tesis para Optar el Grado de Magister en Radioquímica

Lic. Pablo Mendoza Hidalgo

Director: Dr. Isaac Marcos Cohen

Codirector: Dr. Eduardo Haroldo Montoya Rossi

Buenos Aires, 2011

Agradecimientos

Quisiera iniciar estas líneas agradeciendo a las autoridades del Instituto Peruano de Energía Nuclear, de la Comisión Nacional de Energía Atómica y del Instituto de Estudios Nucleares (IDEN) por la oportunidad brindada de poder avanzar en mi formación académica y profesional.

A mis directores de tesis, Dr Isaac Marcos Cohen y Dr. Eduardo Montoya Rossi, que sin su innegable apoyo y constante “presión” no hubiera podido finalizar este trabajo. Más allá de sus exigencias consabidas, mi estima por siempre por enseñarme a ver los problemas como simples desafíos de la vida

A la MSc. Patrica Bedregal que sin su apoyo no hubiera podido iniciar este trabajo, finalmente completado gracias a su ejemplo de constante superación profesional.

Al MSc. Rolando Arrieta, jefe de operación del reactor RP-10, cuyos consejos prácticos y apoyo desinteresado contribuyeron en la realización del presente trabajo.

Al MSc. Mariano Vela por su predisposición a solucionar los problemas de siempre haciéndome recordar que todos debemos de “remar” hacia un mismo objetivo.

A mis compañeros de la Maestría, en especial a MSc. Sandra Siri, MSc. Noemí Nevares y Romina Bocco por compartir buenos momentos y malos también, más allá de nuestras diferencias.

Mi gratitud al Lic. Juan Carlos Furnari y a todos los profesionales que generosamente transmitieron su experiencia y conocimiento que me hicieron saber lo poco que sé.

Si bien desde ya hace un tiempo decidimos caminar por destinos distintos, agradezco de todo corazón a la Lic. Carmen López Castro por su gran apoyo en aquellos momentos saturados de preocupación y tensión donde fué mi puerto donde estar.

Finalmente, a mis queridos hijos, Lucas y Raquel, por su madura comprensión y apoyo incondicional en entregarme su valioso tiempo para terminar el presente trabajo. Siempre estaré agradecido a ellos por el sacrificio realizado, por todas aquellas horas de compañía sin juegos pero con muchas palabras de ánimo y perseverancia.

ÍNDICE

| | |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| <i>Resumen</i> | 5 |
| INTRODUCCIÓN | 7 |
| CONSIDERACIONES GENERALES | 12 |
| Capítulo 1.1: Espectro neutrónico en un reactor nuclear | 13 |
| 1.1.1 <i>Componente térmica</i> | 13 |
| 1.1.2 <i>Componente epitérmica</i> | 14 |
| 1.1.3 <i>Componente rápida</i> | 14 |
| Capítulo 1.2: Principios del análisis por activación neutrónica (AAN) | 15 |
| 1.2.1 <i>El problema de la tasa de reacción por núcleo</i> | 17 |
| 1.2.2 <i>Convención de Stoughton-Halperin</i> | 17 |
| Capítulo 1.3: Caracterización de la componente epitérmica del flujo neutrónico no ideal | 19 |
| 1.3.1 <i>La energía efectiva de resonancia y su determinación</i> | 20 |
| 1.3.2 <i>Situación presente en torno a la determinación y las perspectivas de aplicación del parámetro α</i> | 23 |
| Capítulo 1.4: Desarrollo e implementación de un nuevo método para la caracterización de los flujos neutrónicos térmico y epitérmico | 25 |
| 1.4.1 <i>Fundamentos del método propuesto</i> | 25 |
| 1.4.2 <i>Estructura del programa de cálculo</i> | 27 |
| 1.4.3 <i>Evaluación de la consistencia metodológica</i> | 29 |
| Capítulo 1.5: Características del comparador para su empleo en AAN paramétrico | 30 |
| Capítulo 1.6: Selección de datos nucleares | 32 |
| DESARROLLO EXPERIMENTAL | 35 |
| Capítulo 2.1: Materiales y métodos | 36 |
| 2.1.1 <i>Reactor RP-10</i> | 36 |
| 2.1.2 <i>Sistema neumático de transferencia de muestras</i> | 37 |
| 2.1.3 <i>Sistema de medición por espectrometría gamma de alta resolución</i> | 38 |
| 2.1.4 <i>Determinación de la eficiencia relativa de medición</i> | 40 |
| 2.1.5 <i>Selección de precursores y productos</i> | 42 |

| | |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 2.1.6 <i>Preparación de blancos</i> | 46 |
| Capítulo 2.2: Optimización de las condiciones de irradiación y medición | 47 |
| <i>RESULTADOS Y EVALUACIÓN</i> | 50 |
| Capítulo 3.1: Evaluación del método propuesto: ventajas y limitaciones | 51 |
| Capítulo 3.2: Evaluación de los monitores seleccionados | 52 |
| 3.2.1 <i>Monitores de bajo Q_0 (< 10)</i> | 55 |
| 3.2.2 <i>Monitores de Q_0 intermedio ($10 < Q_0 < 30$)</i> | 60 |
| 3.2.3 <i>Monitores de alto Q_0 (> 30)</i> | 61 |
| 3.2.4 <i>Monitores de temperatura neutrónica</i> | 62 |
| Capítulo 3.3: Conformación de un grupo de monitores para el estudio integral del flujo y el espectro neutrónico | 63 |
| Capítulo 3.4: Evaluación de los parámetros de β y α según trayectoria de estado de reactividad | 69 |
| <i>DISCUSIÓN GENERAL</i> | 71 |
| <i>CONCLUSIONES</i> | 84 |
| <i>REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS</i> | 87 |
| <i>NOMENCLATURA</i> | 96 |
| <i>GLOSARIO DE SIGLAS</i> | 99 |

RESUMEN

Se ha realizado el estudio para la elección del comparador óptimo o conjunto posible de comparadores para su aplicación en el análisis paramétrico, empleando el método del k_0 .

La complejidad del tema tratado trasciende los criterios de selección propuestos con base en las características físicas, químicas y nucleares de los monitores bajo estudio, involucrando la realización experimental de una consistente caracterización de la facilidad de irradiación, a partir del modelo modificado de Stoughton y Halperin.

Su realización condujo al desarrollo de un método de cálculo riguroso en su concepción y de simple ejecución, con el fin de asegurar la confiabilidad de los resultados obtenidos. Como resultado de su aplicación se aportan pruebas de la inconveniencia de emplear el monitor bi-isotópico $^{94}\text{Zr} - ^{96}\text{Zr}$ como comparador, cuestionándose igualmente su uso como monitor de flujo neutrónico por su gran dependencia del parámetro α .

Asimismo, sobre la base del estudio realizado, se recomienda el empleo como comparadores de ^{59}Co , ^{197}Au y ^{98}Mo y, en forma alternativa, de ^{50}Cr y ^{64}Zn , previa determinación más exacta de las secciones eficaces para las reacciones $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$, $^{50}\text{Cr}(n,\gamma)^{51}\text{Cr}$ y $^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$.

Uno de los logros más relevantes del presente desarrollo radica en la forma de calcular la relación de flujos térmico a epitérmico, f , y el parámetro α , que corrige las desviaciones del comportamiento ideal en la zona epitérmica, en donde se aplica un enfoque distinto a los empleados tradicionalmente. Se determina la relación f mediante la generación de valores independientes de flujo térmico (ϕ_t) y epitérmico (ϕ_e), calculando la razón f (ϕ_t/ϕ_e) en forma directa. En tanto, el parámetro α se determina en forma iterativa, a través del punto de cruce generado por las curvas de los diferentes monitores evaluados, con valores de pendiente proporcional a sus valores de la relación integral de resonancia/sección eficaz, Q_0 .

Una ventaja intrínseca de esta metodología de cálculo reside en poder conocer el comportamiento de cada monitor a través de una interfase gráfica, facilitando así el estudio de la influencia de las diversas constantes y datos experimentales en los monitores bajo evaluación. Esto deriva finalmente en una selección de monitores sustentada en la adecuada consistencia de su comportamiento.

A esto se suma la determinación de la incertidumbre mediante el código numérico de Montecarlo, donde se alcanzan resultados similares, en comparación con los métodos de cálculo usualmente empleados. Tal evaluación elimina los problemas de indeterminación para valores α cercanos a cero, frecuentemente encontrados en los métodos tradicionalmente aplicados,

minimizando asimismo la carga de trabajo que implica el cálculo del presupuesto de incertidumbre.

INTRODUCCIÓN

El análisis por activación neutrónica ocupa un lugar importante en el contexto de las técnicas analíticas. Su relativa simplicidad, adecuada sensibilidad (0,01µg pueden ser determinados para 75 elementos en condiciones favorables) así como gran adaptabilidad al análisis multielemental, sientan las bases de una técnica propicia para el análisis cuantitativo no destructivo. Sin embargo, la aplicación multielemental es a veces engorrosa en su forma clásica, que consiste en la irradiación y la subsecuente medición de un patrón para cada elemento presente en la muestra a ser evaluada. Este procedimiento posee desventajas obvias, fundamentalmente la imposibilidad de cuantificar elementos no esperados en el análisis, así como varias dificultades en asegurar condiciones idénticas de irradiación, tanto para la muestra como para el estándar. Estos factores, a los que se suma la variedad de muestras a analizar, hacen difícil aplicar una metodología estandarizada.

Un primer esfuerzo en poder simplificar dicha tarea fue realizado por Girardi *et al* (1965), quien definió valores empíricos k , sobre la base de la razón de actividades específicas del radioisótopo investigado y del comparador, ambos medidos bajo condiciones operativas bien establecidas, que en la jerga nuclear se definen mediante la relación de flujo térmico al flujo epitérmico (ϕ_t/ϕ_e , simbolizada más tarde como f). Si bien es necesario un trabajo preciso y laborioso para determinar tales factores k , una vez obtenidos pueden ser usados extensamente en reactores con alto grado de termalización y constancia en las condiciones de irradiación y medición.

La exactitud del método depende entonces de la vigencia del valor k en el tiempo, cuya validez queda restringida a sitios específicos de irradiación, dado que la relación de sección eficaz efectiva depende del espectro neutrónico del reactor que, lejos de ser constante, varía según la posición.

De Corte y Hoste (1969) propusieron extender el método monoestándar a un comparador triple (^{198}Au , ^{60}Co y $^{114\text{m}}\text{In}$) con el fin de extender su aplicabilidad para diversos canales de irradiación, introduciendo, además, la conversión de los valores k con respecto a la sección eficaz efectiva de activación. Resultaba obvia, entonces, la necesidad de evaluar la relación (ϕ_t/ϕ_e en los canales, tanto el referencial como el analizado).

Existen diferentes metodologías para la evaluación de la relación ϕ_t/ϕ_e , siendo la denominada “relación de Cd” la más simple y comúnmente empleada. Si bien, además de su simplicidad, posee la ventaja de no necesitar una calibración en eficiencia, su mayor desventaja radica en la depresión del flujo neutrónico en la vecindad de la cubierta de cadmio, hecho que impide una simultánea irradiación con la muestra y obliga a suponer una constancia de la relación ϕ_t/ϕ_e en el tiempo. Asimismo, se debe considerar la seguridad operacional del reactor por inserción de

reactividad a partir del cadmio, como también la probabilidad de pérdida física por el calor generado en reactores de alto flujo.

En 1975, Simonits *et al* propusieron que el camino más óptimo para generalizar el método del comparador único era la transformación de los valores k en los denominados factores k_0 , los cuales son independientes de las condiciones de irradiación y medición. Simonits *et al* (1976), introdujeron luego la idea de emplear al zirconio como monitor de flujo bi-isotópico, siendo la principal razón para tal propuesta la gran diferencia entre los valores I_0/σ_0 (cocientes entre integral de resonancia y sección eficaz, conocidos más tarde como Q_0) para las reacciones $^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr}$ y $^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97}\text{Zr}$, que reducía el factor de error de propagación en los cálculos. Adicionalmente, una situación favorable con respecto a las energías gamma medidas llevaba a la no necesidad de conocer la eficiencia de detección, y fortalecía en principio su utilización.

A la noción tradicional de un flujo ideal en la región epitérmica, dependiente de la inversa de la energía, se contrapone la necesidad de considerar un comportamiento diferente, donde resulta preciso introducir un factor de corrección, conocido genéricamente como α . La inclusión de este parámetro implica una nueva definición para la integral de resonancia, que involucra el concepto de energía efectiva de resonancia [Ryves y Paul, 1968].

Bajo tales consideraciones, el extremo valor de la energía de resonancia de la reacción (n,γ) para el ^{94}Zr , así como el del valor del cociente I_0/σ_0 del ^{96}Zr , hacen que la determinación de flujos se torne bastante incómoda e incierta [De Corte, 2001]. Esta situación se refleja en una continua reevaluación de tales datos [Simonits *et al* 2000], [Smodis *et al* 2003], [Lin *et al* 2009].

Para la determinación del parámetro α , si bien se dispone de una variedad de metodologías cuya diferencia principal radica en el uso o no de una cobertura de cadmio, se aplica generalmente el método del triple monitor desnudo, [De Corte *et al*, 1979] con el fin de evitar las dificultades técnicas mencionadas anteriormente.

Usualmente se emplea al conjunto ^{197}Au - ^{94}Zr - ^{96}Zr como monitores en la determinación de α . Su ordenamiento en las expresiones de cálculo está definido por sus valores de Q_0 y \bar{E}_r , obedeciendo a una secuencia de combinación en donde $Q_{0,1} < Q_{0,2} < Q_{0,3}$ (y preferentemente, $\bar{E}_{r,2} < \bar{E}_{r,1} < \bar{E}_{r,3}$) para evitar que los valores medios, tanto de Q_0 como de \bar{E}_r , coincidan en la secuencia y conduzcan a un inaceptablemente alto error de propagación.

Considerando la combinación de monitores mencionada, la incertidumbre total asociada al valor de α llega a alcanzar hasta un 86% para $\alpha = 0,015$ ($f = 25$) y 39% para $\alpha = 0,084$ ($f = 72$) [De Corte *et al*, 1981]. Si bien la incertidumbre asociada a la determinación de α es considerable, este método fue, hasta el presente trabajo, la única alternativa con respecto a los que utilizan

cobertura de cadmio, siendo de suma importancia para el análisis por activación mediante reacciones (n,γ) y el empleo del método estandarizado del k_0 .

Tal grado de incertidumbre disminuye sustancialmente cuando se emplea un mayor número de monitores: ^{94}Zr (como referencia) - ^{181}Ta - ^{121}Sb - ^{123}Sb - ^{112}Sn - ^{96}Zr y se aplica el método “Multimonitores desnudos”, en donde el de referencia cumple una excepcional función referente al error en α , por lo que su elección es crítica [De Corte *et al*, 1981]

Sin embargo, se debe enfatizar que esta mejora solo puede ser obtenida luego de una selección cuidadosa en los valores de Q_0 y \bar{E}_r y de los parámetros nucleares especialmente referidos a la elección del monitor de referencia o comparador.

Siguiendo dicha idea central, lo estipulado por Molnar (2000) y Furnari y Cohen (1998) son guías importantes para evaluar las diversas fuentes de datos nucleares, con el fin de elegir los isótopos monitores de mayor grado de confiabilidad.

Dentro de las fuentes propuestas para la selección de datos nucleares, figuran las tablas de ENSDF actualizadas y mantenidas por el US National Nuclear DATA Center, accesibles a través de la Sección de Datos Nucleares del Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA). Para los datos de secciones eficaz y parámetros de resonancia son usualmente considerados los publicados por Mughabghab (2003).

Hacia fines de los noventas, en nuestro laboratorio demostramos que la influencia de α puede ser minimizada para la mayoría de los elementos a partir de la elección adecuada del comparador (Montoya *et al*, 1999). Sin embargo, la determinación de este parámetro es aún necesaria para una caracterización satisfactoria del espectro neutrónico.

Considerando la importancia de los parámetros mencionados en el cálculo de la concentración y que su variabilidad afecta a la incertidumbre de la determinación, se han emprendido esfuerzos para mejorar tal situación. En ese sentido, un método que involucre un mayor número de monitores sería la mejor opción. Conceptualmente nos estaríamos refiriendo al método de monitores desnudos múltiples, pero tanto en este método como en el conocido como “triple monitor desnudo”, el valor de α es evaluado a partir de funciones implícitas mediante métodos iterativos.

Un planteamiento alternativo fue propuesto recientemente por nosotros (Montoya *et al*, 2010), en donde mediante un conjunto de monitores: ^{45}Sc , ^{50}Cr , ^{55}Mn , ^{58}Fe , ^{59}Co , ^{64}Zn , ^{94}Zr , ^{96}Zr , ^{98}Mo , ^{176}Lu y ^{197}Au , se determinan simultáneamente el flujo térmico y el epitérmico, así como el valor de α , aplicando un método modificado al desarrollado por Arribére y Kestelman (1995). Dicha modificación requiere la exactitud de los datos de entrada de sección eficaz, integral de

resonancia y factores g de Westcott, para obtener un correcto valor de α a partir del punto de cruce de las curvas correspondientes de todas las reacciones (n,γ) , permitiéndonos además conocer el desempeño de cada monitor.

El presente trabajo tuvo como objetivo principal la realización de un estudio sistemático, tanto teórico como experimental, acerca de la influencia del comparador en las correcciones por comportamiento no ideal del flujo epitérmico, cuando se emplean métodos paramétricos. En particular, se hizo énfasis en el análisis por activación de muestras geológicas, que en general involucra un número alto de elementos y mayores dificultades operativas. El objetivo secundario fue la implementación de un método rutinario de análisis por activación, basado en el empleo de los mejores comparadores posibles, seleccionados a partir de este estudio.

A partir de la realización de la propuesta antes enunciada se pretende generar un significativo avance acerca del empleo de comparadores en el análisis por activación neutrónica instrumental paramétrico.

CONSIDERACIONES GENERALES

1.1 Espectro Neutrónico en un Reactor Nuclear

Los reactores nucleares son las facilidades más empleadas para el análisis por activación neutrónica por ser las mayores fuentes generadoras de neutrones.

En una posición cualquiera dentro del núcleo de un reactor, los neutrones que atraviesan por segundo una unidad de área definida son producidos en un 99,23 % durante el proceso de fisión; aparecen en un intervalo muy corto (de 10^{-12} s a 10^{-13} s) y constituyen los llamados neutrones instantáneos o neutrones de fisión. El 0,77 % restante de los neutrones, conocidos como neutrones retardados, es generado por los productos de fisión y emitido por decaimiento en un lapso que va desde fracciones de segundo hasta pocos minutos; su importancia radica en que permiten controlar al reactor.

Dado que el proceso de fisión en el ^{235}U se realiza mayoritariamente con neutrones de baja energía (con valor más probable 0,0253 eV) es necesario reducir la energía de los neutrones de fisión mediante colisiones elásticas con materiales de bajo número atómico (moderadores); en el caso del reactor RP-10 de Huarangal se emplea agua liviana desmineralizada.

La distribución de los neutrones en función de la energía en el núcleo del reactor se subdivide, para fines didácticos, en tres componentes, tal como se aprecia en la Figura 1, cuyas características serán definidas a continuación.

1.1.1 Componente Térmica

Los neutrones térmicos son aquellos que han alcanzado el equilibrio térmico con el medio luego de sufrir una serie de colisiones con el moderador; es decir, la temperatura del moderador determinará la velocidad más probable de los neutrones. En consecuencia, el espectro de energías de los neutrones térmicos es semejante al espectro de energía térmica de las moléculas del moderador y su distribución de velocidades puede ser representada por una distribución de Maxwell,

$$N(v) = n_{th} 4\pi \left(\frac{m}{2kT} \right)^{3/2} v^2 e^{\left(\frac{-mv^2}{2kT} \right)}$$

Donde $n_{th} = \int n(v) dv$ es el número total de neutrones por unidad de volumen, m la masa del neutrón, k la constante de Boltzman y T la temperatura absoluta. La velocidad más probable para 293 °K viene dada por

$$v = \left(\frac{2kT}{m} \right)^{1/2} = 2200 \quad \left[\frac{m}{s} \right]$$

que corresponde al máximo de la distribución de Maxwell y cuya energía es $E_T = kT = 0,0253\text{eV}$

La aproximación anterior es aplicable a un sistema completamente termalizado; si bien los neutrones en el moderador se aproximan a la temperatura de equilibrio del moderador, no llegan nunca al equilibrio térmico, debido a las absorciones que se producen en el mismo moderador y en los materiales estructurales del reactor. Para corregir este efecto en el modelo de distribución de Maxwell se aplica el concepto de temperatura neutrónica.

1.1.2 Componente Epitérmica

La componente epitérmica responde al proceso de moderación de los neutrones por choques con los átomos del medio, representándose su distribución en forma ideal por la ecuación

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

Donde E es la energía del neutrón, ϕ_e es una constante y $\Delta(E)$ es una función de empalme entre las regiones térmica y epitérmica. Tomando una energía umbral μkT , donde μ es una constante empírica, de valor 4 para un reactor moderado con agua liviana, $\Delta(E)$ se puede representar como una función escalón [Beckurtz y Wirtz, 1964].

Para diferentes posiciones de irradiación, existen desviaciones del comportamiento ideal de la componente epitérmica [Ryves 1969] las cuales pueden representarse como:

$$\phi_e(E, \alpha) = \Delta(E) \frac{\phi_e}{E^{1+\alpha}}$$

Donde alfa (α) es un parámetro característico de la posición de irradiación.

1.1.3 Componente Rápida

El espectro de neutrones rápidos está constituido por los neutrones de fisión que no han sufrido suficientes colisiones con los átomos del moderador para reducir su energía hasta los rangos térmicos y epitérmico. La distribución del espectro puede variar en las distintas posiciones del reactor, disminuyendo en forma considerable para posiciones alejadas del núcleo.

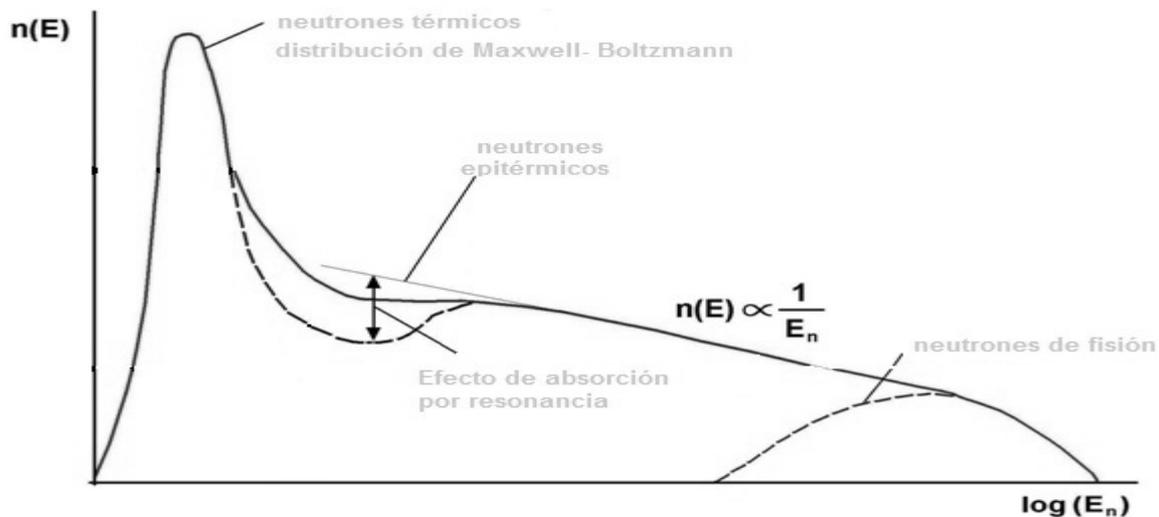


Figura 1. Población neutrónica en función de la energía para un reactor térmico

1.2 Principios del Análisis por Activación Neutrónica (AAN)

Los primeros trabajos experimentales sobre la interacción de neutrones con los núcleos atómicos se desarrollaron hacia 1935. Fermi y Amaldi (1936) así como Moon y Tillman (1935), trabajaron en la interacción de neutrones de energía cercana a la térmica con núcleos de ^{107}Ag , produciendo ^{108}Ag , que por decaimiento generaba ^{108}Cd , con emisión de una partícula β^- y un antineutrino [Bucharm, 1979].

Tales experiencias derivaron en el concepto del *núcleo compuesto*, propuesto por Niels Bohr en 1936, para explicar tales reacciones de captura, que de acuerdo con esta teoría se desarrollan en dos etapas. En la primera se forma el núcleo compuesto, integrado por el núcleo original y el neutrón incidente, y en la segunda el núcleo compuesto se desintegra emitiendo partículas o fotones γ , pudiendo ocurrir, en principio, todas estas posibilidades. La desintegración del núcleo compuesto sólo depende de la energía del neutrón incidente, siendo independiente de cómo se formó, produciéndose si su energía de excitación (energía cinética del neutrón + energía de unión) es lo suficientemente grande.

Uno de los procesos nucleares de desexcitación, de interés para el análisis por activación instrumental (AANI) conlleva la emisión de radiación electromagnética, con la consiguiente formación de un radioisótopo del mismo núcleo original, en la forma que se indica en la figura 2. El radionucleido formado puede decaer posteriormente, con su propia constante de decaimiento, de varias formas, ya sea emitiendo partículas (α , β^- , β^+) o fotones, sufriendo captura electrónica o fisión espontánea. En cada uno de estos procesos se pasa de un estado excitado a un estado basal, mediante uno o varios decaimientos intermedios. Mientras decaen, estos radioisótopos

emiten usualmente radiaciones gamma de energías discretas con características propias, permitiendo a través de su detección la determinación tanto cualitativa como cuantitativa de los elementos presentes en la muestra.

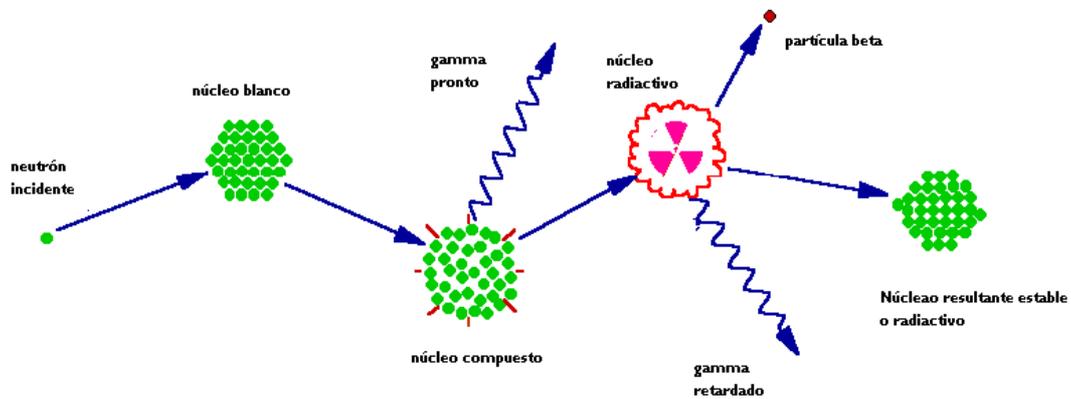


Figura 2. Diagrama del proceso de captura por un núcleo blanco y la subsiguiente emisión de rayos gamma [tomado de: archaeometry.missouri.edu/naa_overview.html].

La ecuación fundamental del análisis por activación neutrónica se puede expresar de modo general como:

$$A_0 = \frac{0,6023}{M} \theta w \left[\int_0^{\infty} \sigma(v) \phi(v) dv \right] S$$

Donde A_0 es la actividad obtenida al final de la irradiación, M es el peso atómico del elemento de interés, θ es la abundancia isotópica del isótopo precursor, w la masa del elemento analizado presente en la muestra, v la velocidad del neutrón incidente, σ la sección eficaz de captura del isótopo a activar, ϕ el flujo neutrónico con que se irradia la muestra y S es el llamado factor de saturación; S es una función del tiempo de irradiación t_i , igual a $1 - e^{-\lambda t_i}$.

Es evidente la relación de proporcionalidad directa entre la actividad obtenida al final de la irradiación y la masa del elemento químico de interés presente en la muestra. Si bien su determinación aparentemente es de directa ejecución a partir de los parámetros y constantes involucradas, la evaluación de la integral que representa la tasa de reacción por núcleo es de manejo complejo.

1.2.1 El Problema de la Tasa de Reacción por Núcleo

De acuerdo con Erdtmann (1986) no se dispone de descripciones teóricas exactas de $\sigma(v)$, $\phi(v)$ por medio de funciones analíticas integrables. Por lo tanto, para evaluar la integral de la ecuación de activación, se han establecido algunas convenciones basadas en propiedades de $\sigma(v)$ y $\phi(v)$, determinadas en forma experimental, y que correctamente empleadas dan resultados aceptablemente exactos. Las convenciones más utilizadas en análisis por activación neutrónica mediante los métodos absolutos y monoestándar son las de Westcott *et al* (1958), Stoughton y Halperin (1959) y Högdahl (1962). Las dos últimas son relativamente más simples que la de Westcott, pero un tanto menos rigurosas y de aplicación más restringida, aunque apropiadamente utilizadas dan muy buenos resultados.

En el presente trabajo se adoptará la convención de Stoughton y Halperin (1959) que considera a la temperatura neutrónica como parámetro de cálculo, tal como sucede en la convención de Westcott, pero sin su complejidad metodológica.

1.2.1 La Convención de Stoughton - Halperin

Según lo planteado por Stoughton y Halperin, la tasa de reacción por átomo para una sustancia a alta dilución o en muy pequeña cantidad, incluyendo las reacciones térmicas y epitérmicas, se define del modo siguiente:

$$\frac{R}{N} = \phi_t g(T) \sigma_o + \phi_e I'_o = \phi_t \sigma_t + \phi_e I_o$$

Donde:

$$\begin{aligned} \sigma_t &= g(T) \sigma_o + \frac{\phi_e}{\phi_t} \int_{E_m}^{E_c} \sigma(E) \frac{dE}{E} \\ &= g(T) \sigma_o + \frac{\phi_e}{\phi_t} (I'_o - I_o) \end{aligned}$$

Siendo ϕ_t el flujo térmico convencional, definido por: $\phi_t = v_0 \int_0^\infty n(v) dv$ y donde n es la densidad neutrónica térmica o maxwelliana, $g(T)$ el factor de corrección de Westcott para la posible no idealidad de σ_o , E_m la energía correspondiente a la velocidad modal de la distribución maxwelliana y E_c la energía de corte de cadmio.

En todas sus ecuaciones, los autores suponen que el flujo de resonancia varía proporcionalmente a $1/E$ (comportamiento ideal) a partir de $5E_m$ y se anula antes de esta energía, mientras que el flujo neutrónico térmico se extiende a lo largo de todo el espectro neutrónico.

Stoughton y Halperin definen una sección eficaz efectiva según la ecuación siguiente:

$$\sigma_{ef} = g(T)\sigma_0 + \frac{\phi_e}{\phi_t} I'_0 = \sigma_t + \frac{\phi_e}{\phi_t} I_0$$

Así, el valor exacto de σ_{ef} depende de la posición de la muestra irradiada respecto al núcleo del reactor y tiende a σ_t para $\phi_e \ll \phi_t$, es decir, en posiciones de irradiación bien termalizadas.

La velocidad de reacción queda expresada entonces como:

$$\frac{R}{N} = \phi_t \sigma_{ef}$$

Tal como menciona Montoya (1995) el razonamiento de Stoughton y Halperin supone, de manera implícita, una partición de la integral de la tasa de reacción por núcleo, de la manera siguiente:

$$\begin{aligned} \frac{R}{N} &= \int_0^{\infty} \sigma(v) \phi(v) dv \\ &= \int_0^{\infty} \sigma(v) \phi_m(v) dv + \int_{5E_m}^{\infty} \sigma(E) \phi(E) dE \end{aligned}$$

Considerando para un flujo neutrónico térmico o maxwelliano se puede escribir, con completa generalidad, que

$$\sigma(v) \phi(v) = g(T) \sigma_0 v_0 n(v)$$

Resulta entonces para la tasa de reacción por núcleo:

$$\frac{R}{N} = g(T) n_t \sigma_0 v_0 + \phi_e \int_{5E_m}^{\infty} \sigma(E) \frac{dE}{E}$$

La integral de resonancia de la ecuación también puede separarse en dos partes:

$$\int_{5E_m}^{\infty} \sigma(E) \frac{dE}{E} = \int_{5E_m}^{E_{cd}} \sigma(E) \frac{dE}{E} + \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{dE}{E}$$

Si se trabaja con nucleídos cuyas secciones eficaces cumplen la ley $1/v$ hasta la energía de corte de cadmio, $g(T) = 1$, y se puede escribir para la tasa de reacción por núcleo:

$$\frac{R}{N} = \sigma_0 \phi_t + \phi_e [\Delta I + I]$$

1.3 Caracterización de la Componente Epitérmica del Flujo Neutrónico

Tal como se mencionó en el Capítulo 1.1, la representación del flujo epitérmico por unidad de energía en condiciones ideales es inversamente proporcional a la energía del neutrón [Stoughton y Halperin, 1959]:

$$\phi_e(E) = \phi_e \frac{1}{E} \Delta(E)$$

Los neutrones epitérmicos, al igual que los térmicos, inducen reacciones de captura. Al expresar la velocidad de reacción por núcleo para estas reacciones, cuando se dividen la componente térmica y epitérmica del flujo, de acuerdo con la convención de Hogdahl (1962), se obtiene:

$$\frac{R}{N} = \int_0^{\infty} \sigma(E) \phi_t(E) dE + \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) \phi_e(E) dE$$

Donde σ_t es el flujo térmico y E_{cd} la energía de corte de cadmio, la cual se considera igual a 0,55eV y es ligeramente superior a la energía de empalme.

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 queda expresada como:

$$\int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) \phi_e dE = I_0 \phi_e$$

La desviación del espectro neutrónico epitérmico respecto del comportamiento $1/E$ se describe introduciendo el parámetro alfa, según Schumann y Albert (1965) y Ryves (1969).

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

Donde α es independiente de la energía, puede ser positivo o negativo (en general está entre $-0,05$ y $0,12$) y depende de la configuración del reactor (tipo de moderador, posición de irradiación, etc.).

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).

1.3.1 *La Energía Efectiva de Resonancia y su Determinación*

Ryves (1969) introdujo el concepto de energía efectiva de resonancia, \bar{E}_r que se define como "la energía de una resonancia virtual única que da la misma velocidad de reacción resonante como todas las resonancias verdaderas que posee el isótopo", expresada del modo siguiente:

$$\left(\frac{E_{ref}}{E_r}\right)^\alpha = \frac{I_0(\alpha)}{I_0}$$

Donde I_0 y $I_0(\alpha)$ son las integrales de la sección eficaz de resonancia reducidas (sin la componente $1/v$) para la distribución de flujo epitérmico, en el caso ideal, $1/E$, y en la situación real, $1/E^{1+\alpha}$, estableciendo por comodidad el valor de 1 eV para E_{ref} .

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

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

Por lo tanto, para vincular el valor de $I_0(0)$ con el de $I_0(\alpha)$ es necesario, una vez determinado el parámetro α , utilizar la energía efectiva de resonancia.

Existen metodologías para determinar esta energía, tanto en forma experimental como por cálculo. La siguiente expresión fue usada por vez primera por Moens *et al* (1979) para evaluar en forma aproximada el valor de \bar{E}_r :

$$\ln \bar{E}_r = \frac{\sum_i \frac{\sigma_i \Gamma_{\gamma,i} \ln E_{r,i}}{E_{r,i}}}{\sum_i \frac{\sigma_i \Gamma_{\gamma,i}}{E_{r,i}}}$$

Donde Γ_γ es el ancho de resonancia radiativa y σ_i es la sección eficaz parcial en el máximo de la energía de resonancia i . El valor \bar{E}_r también puede ser calculado con buena aproximación suponiendo independencia del valor α :

$$\ln \bar{E}_r = \frac{\sum_i w_i \ln E_{r,i}}{\sum_i w_i}$$

Donde:

$$w_i = \left(\frac{g \Gamma_\gamma \Gamma_n}{\Gamma_i} \right) \frac{1}{E_{r,i}^2}$$

Siendo $g = (2J + 1)/2(2I + 1)$ siendo I y J el espín del núcleo blanco y el estado de resonancia del neutrón capturado en el núcleo compuesto y $\Gamma = \Gamma_\gamma + \Gamma_n$ es el total de ancho de resonancia.

El método experimental para la obtención de energías de resonancia desarrollado por Simonits *et al* (1984) propone el empleo de la siguiente expresión para $Q_0(\alpha)$:

$$Q_0(\alpha) = \frac{Q_0 - 0,429}{\bar{E}_r^\alpha} + C_\alpha$$

Donde $C_\alpha = \frac{0,429}{(1 + 2\alpha)E_{Cd}^\alpha}$

En la primera ecuación, el primer término del lado derecho es la integral de resonancia reducida (contribución $1/v$ sustraída), usualmente conocida como:

$$Q_0(\alpha) = \frac{Q_0 - 0,429}{\bar{E}_r^\alpha}, \text{ la cual puede escribirse: } \ln Q_0(\alpha) = \ln Q_0(0) - (\ln \bar{E}_r) \alpha$$

Al graficar $\ln Q_0(\alpha)$ versus α , se obtiene una recta de pendiente $-\ln \bar{E}_r$. Además, en la intersección de esta recta con el eje “y” ($\alpha=0$), se obtiene: $\ln Q_0(0) = \ln Q_0(\alpha)$.

Dado que existen datos de resonancia incompletos, una comparación entre los valores de \bar{E}_r calculados y los obtenidos en la práctica no es un criterio adecuado para evaluar el método experimental.

La aproximación mediante esta metodología es únicamente válida para valores de \bar{E}_r y α bajos. Si bien su principio se basa en trazar la relación $\ln Q_0(\alpha)$ versus α , para que ésta sea representativa es necesario conocer varios valores del parámetro alfa, cuya determinación de por sí no es sencilla.

Simonits y colaboradores (1984) realizaron un análisis de las incertidumbres asociadas a los valores obtenidos y concluyeron que el método no es muy sensible a las incertidumbres de alfa, sino que resulta mucho más importante obtener una buena estadística en la medición de relaciones de cadmio y usar tantas posiciones de irradiación como sea posible con un amplio rango de valores de alfa, lo cual representa además que el método se torna excesivamente engorroso.

Un segundo método, también de carácter experimental, es el propuesto por Segovia (2005), con el propósito de superar las deficiencias del método descrito anteriormente. A partir de la ecuación general de activación expresada como:

$$A = \frac{m}{P_A} \theta N_{av} \sigma \phi = \frac{C}{\gamma \varepsilon}$$

El producto $\sigma\phi$ se puede expresar como:

$$\sigma\phi = \phi_t \sigma_0 + \phi_e I_0(\alpha)$$

Suponiendo como factores comunes ϕ_e y σ_0 , definiendo los parámetros f y $Q_0(\alpha)$ e introduciendo la constante k_0 y los factores temporales correspondientes, se obtiene:

$$\frac{C}{k_0 mSDM\varepsilon} = \phi_e [f + Q_0(\alpha)] \frac{N_A \theta_{au} \gamma_{au} \sigma_{oau}}{P_{Aau}}$$

El primer término de esta ecuación será denominado genéricamente W , siendo $\frac{N_A \theta_{au} \gamma_{au} \sigma_{oau}}{P_{Aau}}$

una constante, el producto con ϕ_e será también una constante (para una misma posición de irradiación) denominada K . De esta forma, la ecuación queda expresada como:

$$W = K[f + Q_0(\alpha)] \text{ donde la pendiente es } m = K \text{ y la ordenada al origen es } a = Kf.$$

A partir de los factores W obtenidos y de los parámetros $Q_0(\alpha)$ calculados para una serie de nucleídos seleccionados como estándares, es posible generar rectas de calibración en cada posición de irradiación. Estas rectas permiten obtener el valor $Q_0(\alpha)$ de un nucleído incógnita. Este parámetro no es universal (depende de alfa); por lo tanto, a partir de él se propone el cálculo de \bar{E}_r y de $Q_0(0)$.

Ello comprende el planteo de un sistema de ecuaciones a partir de las rectas de calibración de las dos posiciones de irradiación, diferenciadas a partir del hecho de que el parámetro que define al flujo epitérmico (ϕ_e) es distinto en cada una de ellas:

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

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

Resolviendo este sistema se pueden determinar tanto las energías efectivas de resonancia como las constantes $Q_0(0)$ y, a partir de estas últimas, las integrales de resonancia.

1.3.2 Situación Presente en Torno a la Determinación y las Perspectivas de Aplicación del Parámetro α

A partir de lo discutido en las secciones anteriores, es claro que una de las mayores dificultades encontradas en el análisis por activación paramétrica es la desviación del comportamiento ideal de la componente epitérmica del flujo neutrónico. Su no consideración puede conducir a errores sistemáticos, en términos de concentración, dependiendo de las características de la posición de irradiación (f, α) y del comparador empleado.

Aunque la expresión que describe tal comportamiento está dada por $(E^{1+\alpha})^{-1}$, en donde α varía usualmente de $-0,05 < \alpha < 0,12$, según Op De Beeck (1985) el parámetro α también puede ser formulado explícitamente como función de r (distancia a la fuente de neutrones) y E .

Esto revela una complicada dependencia de α respecto a la energía neutrónica, lo que sumado a los errores sistemáticos en su determinación experimental hace cuestionable alcanzar una corrección para el comportamiento no ideal del flujo epitérmico que sea suficientemente exacta para propósitos de análisis por activación neutrónica instrumental paramétrico cuantitativo.

De Corte *et al* (1979) plantearon la necesidad de considerar la desviación de la idealidad del flujo epitérmico y, en consecuencia, efectuar las correcciones pertinentes. Desde ese entonces se han implementado diversas metodologías para la determinación del valor α [De Corte *et al*, 1979; De Corte *et al*, 1981; Cohen *et al*, 2006; Van Hung, 2010], con el fin de describir la forma del espectro neutrónico aplicable a cualquier reactor.

Sin embargo, dicha suposición puede ser objetable desde el punto de vista de física de reactores. El tipo de moderador, la existencia de reflectores neutrónicos y la captura por resonancia por el

material constituyente varían en cada reactor, reflejándose tales cambios en la forma del espectro [Koster-Ammerlaan *et al*, 2011].

Kennedy (2003) observó, para 10 elementos con valores de $Q_0 > 10$, una variación del 7 % hasta el 42,6 % con respecto a los valores de Q_0 dados por Simonits *et al* (2000), al irradiar en posiciones cercanas al núcleo con abundante berilio circundando los elementos combustibles. Adujo como causas probables una mayor moderación neutrónica por el berilio en comparación con el hidrógeno, o depresión de la componente epitérmica debido a picos de resonancia del ^{238}U , con la consecuente desviación en el comportamiento $1/E^{1+\alpha}$.

Esta distorsión ha sido también reportada por Koster-Ammerlaan *et al* (2011) en estudios reportados sobre diferentes experiencias en las que se empleó zirconio y oro como monitores de flujo para la determinación del valor de α , atribuyéndola a la formación y termalización de los fotoneutrones producidos por el berilio con directo impacto en la activación por resonancia del ^{95}Zr y ^{97}Zr .

Asimismo, el berilio genera venenos neutrónicos como ^6Li y ^3H causando el endurecimiento¹ del espectro neutrónico, tal como observan Brockmann *et al* (2009) al realizar el cambio de reflectores de este elemento en el núcleo del reactor de Missouri de 20 MW.

Otra pregunta importante, especialmente para reactores de investigación de 1 a 20 MW de potencia, es si la determinación de los parámetros f y α para una posición de irradiación dada, bajo una misma configuración, varía según el estado de reactividad y según la trayectoria seguida para alcanzar dicho estado.

Las condiciones del reactor RP-10 de Huarangal hacen posible operar a potencias distintas a la nominal (10 MW) bajando en un corto tiempo a 0,32 MW, lo que conlleva una mayor inserción de las barras de control. Cabe esperar entonces una mayor absorción selectiva de neutrones de baja energía, con la consiguiente distorsión del espectro neutrónico hacia valores menores de f e incluso a una deformación del espectro neutrónico epitérmico, que sería causada por absorciones de resonancia por los componentes de las barras de control. Es de esperar que el valor de α también deba ser afectado de una manera u otra.

En cuanto a la influencia de la trayectoria seguida para alcanzar un estado, la idea que surge es comparar los valores de f y α que se obtienen si se opta llegar a 0,32 MW desde el reactor apagado, luego de varios días de reposo, con los medidos al llegar a 0,32 MW desde el reactor operando varias horas a 10 MW. La razón de la duda es que, en el segundo caso, algunos

¹ Para cuando la proporción de los neutrones moderados absorbidos es inferior a lo que cabe esperar por la distribución Maxwell-Boltzmann se considera que la distribución o el espectro se ha "endurecido".

productos de fisión como el ^{135}Xe , generados durante la operación, causarían una absorción selectiva adicional de los neutrones de baja energía, modificando el espectro neutrónico. Empleando un conjunto adecuado de monitores de flujo se podrían comparar los parámetros característicos de los espectros neutrónicos obtenidos a 0,32 MW para dos estados de reactividad diferentes y alcanzados de manera distinta.

Corroborar la hipótesis planteada podría implicar la modificación de la expresión $1/E^{1+\alpha}$, con el fin de considerar las distorsiones supuestas, minimizando su impacto en el cálculo de concentración empleado el método paramétrico del k_0 .

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 *et al*, 2005].

1.4 Desarrollo e Implementación de un Nuevo Método para la Caracterización de los Flujos Neutrónicos Térmico y Epitérmico

Si bien uno de los métodos más empleados para la medición de flujos es la relación de cadmio, éste presenta inconvenientes para la irradiación simultánea de los monitores con las muestras, por la fuerte depresión del flujo en sus proximidades y la generación de dosis importantes por la activación de la cubierta. Por tal razón, resulta conveniente considerar la posibilidad de desarrollar otros métodos, donde las muestras puedan irradiarse en forma desnuda.

1.4.1 Fundamentos de la Propuesta

Una alternativa para el desarrollo del nuevo método aquí presentado es la activación de dos o más isótopos, elegidos tal que se cumpla: $Q_{0,1}/Q_{0,2} \gg 1$ al menos para dos de los isótopos.

Para cada uno de los isótopos que se utilizan, la actividad normalizada a decaimiento cero del monitor i puede ser expresada por la ecuación de activación según la convención de Stoughton y Halperin (modificada para tener en cuenta la no idealidad del espectro neutrónico epitérmico) como:

$$g(T) \sigma_i G_{th} \phi_t + [I(\alpha)_i G_{epi} + \Delta I_i G_{th}] \phi_e = A_i \quad (1)$$

Siendo:

$$A_{ij} = \frac{c_{ij} \lambda_1 M_i}{w_i \theta_i N_a \gamma_{ij} \epsilon_j (1 - e^{-\lambda_i t_i}) e^{-\lambda_1 t_d} (1 - e^{-\lambda_1 t_m})}$$

Donde:

i = denota las constantes asociadas a un isótopo

j = denota las constantes asociadas a una línea gamma del isótopo i

$g(T)$ es el factor de Westcott y $\Delta I_i = 0,56\sigma_0$ es la integral de resonancia entre $E = \mu kT$ y la energía de corte de cadmio, con tal de que ningún pico de resonancia exista en dicho intervalo.

Mediante la ecuación (1) se calcula para cada monitor una serie de valores del flujo neutrónico térmico, en función de una serie de valores arbitrariamente dados para el flujo epitérmico.

Las curvas generadas por la ecuación (1) tienen pendientes diferentes, de acuerdo con el comportamiento del monitor, produciéndose puntos de cruce cuyos valores de coordenadas indicarán los valores de los flujos, térmico y epitérmico, buscados.

Esto significa que si los datos de entrada de sección eficaz, integral de resonancia y factores g de Westcott son exactos, un valor correcto del parámetro α debe llevar a un punto único de cruce para las curvas correspondientes a todas las reacciones implicadas, infiriéndose que todos los monitores deben rendir los mismos valores para la caracterización (ϕ_t y ϕ_e) de la facilidad del reactor evaluada.

Adicionalmente, si el valor del factor de Westcott para ^{176}Lu es correcto, la curva para la reacción $^{176}\text{Lu}(n,\gamma)^{177}\text{Lu}$ debe cruzar a las demás curvas en el mismo punto. Entonces, tanto α como T_n se convierten en parámetros de ajuste para el punto de cruce entre las curvas calculadas, lo cual a su vez proporciona la base de su determinación. Una vez obtenidos los valores promedio, tanto del flujo neutrónico térmico como epitérmico, se calcula el valor de f como la razón ϕ_t / ϕ_e .

Es este punto en donde se propone además, como innovación, el empleo del código numérico de Monte Carlo para la simulación de los parámetros de flujo, con el objetivo de evaluar la incertidumbre total asociada a la determinación. Esta metodología ha sido aceptada por la ISO como técnica validada para el cálculo de incertidumbres de mediciones experimentales [GUM-

Supplement 1: numerical methods for the propagation of distributions (2004)].

Koster-Ammerlaan *et al* (2008), han demostrado la factibilidad de emplear el método numérico de Monte Carlo para el cálculo de las incertidumbres de los parámetros f y α mediante simulación ($N=1000$) variando aleatoriamente la actividad de los monitores involucrados en $\pm 0,5\%$.

Trabajos como los de Steele y Douglas (2005) demostraron que se podía simplificar su utilización mediante el uso de Microsoft Excel, que ofrece una generación de números pseudoaleatorios adecuada.

Se presupone que tales números pseudoaleatorios siguen una distribución similar a la variable de interés estudiada, lo que conduce al planteamiento siguiente: si la actividad específica tiene una distribución uniforme, de acuerdo con el teorema del límite central, al ser la suma de n variables aleatorias e independientes su función de distribución se aproxima bien a una distribución normal.

Entonces, si se generan valores independientes no correlativos de ϕ_t , ϕ_e , f y α , considerando una generación lo suficientemente grande ($N > 30$, N = número de interacciones) la media será la misma que la de la variable de interés, y la desviación estándar de la media muestral será aproximadamente el error estándar.

Las ventajas de la aplicación de esta metodología se hacen evidentes al obviar las complejas expresiones de cálculo relacionadas con la evaluación de la incertidumbre combinada siguiendo la ley de propagación [Smodis y Bucal, 2006; Kucera *et al*, 2000] así como también asegurar la independencia no correlativa de las variables de interés por la naturaleza plenamente aleatoria de sus valores de entrada.

1.4.2 Estructura del Programa de Cálculo

Con el fin de cumplir con los objetivos trazados en el presente trabajo: evaluación de la consistencia de los datos nucleares y caracterización de los parámetros del flujo neutrónico, se desarrolló una aplicación en el lenguaje Visual Basic for Applications de Microsoft Excel, permitiendo modificar los datos involucrados en forma directa.

El programa está estructurado en tres partes u hojas (en el libro electrónico): datos y cálculo, simulación de Montecarlo y comportamiento gráfico de los monitores evaluados.

a) Datos y Cálculos

Las variables experimentales y las constantes seleccionadas son agrupadas tal como se aprecia a continuación:

Datos de Entrada, experimental:

- 1 Masa de monitor en (μg)_m
- 2 factor de autoblindaje térmico_ G_{Th}
- 3 factor de autoblindaje epitérmico_ G_{epi}
- 4 Corrección por coincidencia_coi
- 5 eficiencia geométrica de medición_ ε
- 6 Tiempo de irradiación_ t_i
- 7 Tiempo de decaimiento_ t_d
- 8 Tiempo de conteo prefijado o vivo_ t_v
- 9 Tiempo de conteo real_ t_r
- 10 Área neta de pico pleno_ C_n
- 11 Valor arbitrario de alfa para una primera aproximación_ α
- 12 Valor incertidumbre ($k=2$) para variable aleatoria de actividad_ A_{unc}

Datos de Entrada, tablas:

- 13 Radioisótopo, J
- 14 Peso atómico, M
- 15 Sección eficaz de captura_ σ_0 (b)
- 16 Integral de resonancia_ I_0
- 17 Abundancia isotópica_ θ
- 18 Factor de Westcott_ $g(t)$
- 19 Valor de relación I_0/σ_0 _ $Q_0(0)$
- 20 Energía efectiva de resonancia_ \bar{E}_r
- 21 Periodo de semidesintegración_ $T_{1/2}$
- 22 Intensidad de emisión gamma para pico pleno de energía_ γ
- 23 valor de k_0 _ tablas
- 24 Valor de k_0 _ teórico

Los algoritmos de cálculo utilizados contemplan en forma secuencial:

- Determinación del valor de $I_0(\alpha)$ según un valor de α inicialmente propuesto
- Cálculo del valor de $Q_0(\alpha) + 0,56$

- Generación de la variable aleatoria (actividad específica)
- Cálculo del flujo neutrónico térmico
- Área esperada del monitor según condiciones temporales y valores de flujo neutrónico aplicados
- Cálculo del valor k_0 experimentalmente obtenido

b) Análisis gráfico

Se evaluó el comportamiento de las curvas expresadas como flujo neutrónico de los diferentes monitores planteados en el estudio. Mediante ajuste iterativo de los parámetros de T_n y α se interceptaron las curvas correspondientes a los monitores de alto valor de I_0/σ_0 con los de comportamiento $1/v$ respectivos.

Dicho ajuste se realizó hasta obtener el menor valor de coeficiente de variación.

c) Simulación numérica de Montecarlo

Obtenidos los valores ajustados de ϕ_t , ϕ_e , f y α , se calculan por simulación de Montecarlo los parámetros de incertidumbre asociados expresados como σ (1s) y desviación estándar relativa porcentual, aplicando un número N de interacciones lo suficientemente elevado (mínimo 30).

1.4.3 Evaluación de la Consistencia Metodológica

Desde la propuesta de utilización de la constante compuesta denominada k_0 dada por Simonits *et al* (1975) y desarrollada principalmente por De Corte, los laboratorios de tales autores han trabajado exhaustivamente en la determinación de los datos correspondientes a la mayor parte de las reacciones de uso frecuente, tratando de minimizar con ello la posibilidad de que exista algún tipo de distorsión entre la generación del dato original y su posterior tratamiento en tablas.

Este factor, que elimina un riesgo potencial, origina en cambio otro tipo de problemas, específicamente, la aparición de un sesgo preferencial hacia la elección de los valores propios frente a los de otros autores.

La determinación experimental de $k_{0,x}$ (correspondiente al isótopo x) empleando al oro como comparador, está formulada según:

$$k_{0,Au}(x) = \frac{T_{sp,x}}{T_{sp,Au}} * \frac{f + Q_{0,Au}(\alpha)}{f + Q_{0,x}(\alpha)} * \frac{\epsilon_{Au}}{\epsilon_x}$$

Una primera evaluación de los datos seleccionados, y por lo tanto de la calidad de los mismos, la constituye la concordancia entre los valores de k_0 obtenidos experimentalmente y los valores tabulados usualmente empleados [De Corte y Simonits, 2003].

Una segunda evaluación, también concerniente a la calidad de los resultados, está referida al grado de similitud entre el área del pico de energía plena de interés experimentalmente obtenido y el calculado a partir de los datos y parámetros seleccionados.

Mediante tales evaluaciones se pone en evidencia el grado de consistencia, tanto de los datos experimentales como de las constantes nucleares empleadas, es decir, su calidad analítica.

1.5 Características del Monitor para su Uso como Comparador en AAN Paramétrico

En análisis por activación se define al comparador como un elemento que tiene por lo menos un isótopo con características nucleares favorables susceptible de ser empleado, en lugar del estándar multielemental convencional, para cuantificar la masa de un(os) analito(s) de interés.

Desde la implementación en el análisis por activación neutrónica instrumental del método del k_0 como método paramétrico, se ha venido utilizando al oro como comparador por excelencia. Su preparación como estándar es particularmente fácil, en tanto su naturaleza monoisotópica y un sencillo esquema de desintegración hacen viable su medición. Posee un conveniente valor de Q_0 (15,7) y una energía de resonancia efectiva (5,65 eV) lo suficientemente por encima del valor del corte de cadmio (0,55 eV); sin embargo, depende considerablemente del parámetro α .

Las determinaciones multielementales en material geológico son usualmente más complejas que las correspondientes a otro tipo de matrices, en razón de la diversidad de elementos presentes. En consecuencia, muchas más reacciones nucleares resultan involucradas en el proceso analítico, siendo diferente la magnitud de las correcciones que se introducen a partir de la consideración de α , de acuerdo con el valor de dicho parámetro, las características de las reacciones usadas y, lo que resulta de mayor trascendencia con relación a este trabajo, el comportamiento del comparador, que también varía para cada reacción. De esta forma, un comparador que resulta óptimo para la determinación de un elemento específico puede no serlo para otro, siendo necesario arribar a una solución de compromiso al efectuar el análisis multielemental.

Tal solución infiere una combinación de monitores, considerando en primera instancia los

parámetros influenciados por la variación de α , Q_0 y \bar{E}_r , descartando además los isómeros sin 100% de transición isomérica por no discriminación del valor \bar{E}_r en cada radionúclido [Cohen *et al*, 2006]. Ello implica la conformación de grupos por rangos de valores en Q_0 . Sin embargo, si bien se observa una cierta correlación entre los valores Q_0 y \bar{E}_r , ésta no siempre ocurre, dando lugar a la formación de subgrupos.

Un primer grupo sugerido abarca a los monitores de bajo Q_0 , desde el ^{164}Dy (0,19) hasta el ^{74}Se (9,90); aparece un segundo grupo con valores de Q_0 desde 11,53 hasta 33,30 correspondientes a ^{234}Th y ^{181}Ta , respectivamente, y un último grupo comprende a ^{98}Mo , ^{113}Sn , ^{238}U y ^{96}Zr , con valores de Q_0 desde 53,1 hasta 248.

En el primer grupo, el valor de \bar{E}_r es irrelevante, dado que aunque valores altos de esta magnitud causen que los valores de I_0/σ varíen entre $0,5 \times I_0/\sigma$ y $2 \times I_0/\sigma$, el peso de esta variación es pequeña para valores razonables de f . Cualquier isótopo de este grupo será un buen comparador, si sus constantes nucleares se conocen con exactitud adecuada, y los mejores serán los que tengan valores de I_0/σ entre 1 y 2, como ^{63}Cu , ^{55}Mn , ^{59}Co y ^{64}Zn .

En el segundo grupo, el ^{197}Au aparece como el mejor comparador por las características mencionadas al principio; no obstante, la variación de Q_0 por efecto de \bar{E}_r es ya relevante en el cálculo de f . Un caso especial en dicho grupo lo constituye el ^{115}In , cuyos valores de $Q_0=16,8$ y \bar{E}_r de 1,56 eV hacen que la variación de I_0/σ sea sólo de $\pm 5\%$ para cambios extremos del valor de α ($\pm 0,1$).

El tercer grupo, de suma importancia en la determinación del parámetro α , lo constituyen nucleídos con altos valores de Q_0 , siendo el del ^{96}Zr el más alto conocido.

Una segunda consideración en la elección de los comparadores es la evaluación del periodo de semidesintegración de los productos y la probabilidad de emisión de los picos de energía plena, de preferencia de tipo monoenergético, para minimizar correcciones por coincidencia y establecer posibilidades prácticas de aplicación.

Un factor relevante es la incerteza asociada a las abundancias isotópicas de las especies consideradas, susceptible de modificación por procesos de fraccionamiento físico-químico. Si bien, tal como lo señala De Corte (1987), este problema es inherente a cualquier método de análisis por activación, por la naturaleza isotópica de la técnica, en los métodos que hacen uso de las constantes aisladas esta incertidumbre acompaña a la evaluación de la incertidumbre total del resultado analítico.

Según Coplent *et al* (2002), la variación de las abundancias isotópicas reportada para el Cr es potencialmente mayor que la incertidumbre asociada al peso atómico. Esto igualmente se

observa para Se y Cu y, en menor grado, para Zn, Fe y Mo.

La ausencia particular de este factor en el caso de los valores k_0 tiende a la subestimación de la incertidumbre del resultado final.

Una consideración adicional a tomar en cuenta es con respecto a las condiciones de preparación de los analitos de interés, su manipulación y grado de accesibilidad. Esto está relacionado con el requisito imprescindible de contar con reactivos de alta pureza química y estequiometría bien definida, y con adecuada disponibilidad tanto con respecto a su costo como a su manipulación. La preparación de soluciones estándares es la vía más fiable, pero en caso de baja tasa de activación es preferible el empleo de hojuelas metálicas (Zr, Fe) con espesor y contenidos de impureza mínimos posibles, para minimizar las correcciones por autoabsorción en las zonas térmica y epitérmica.

Para elementos con alta sección eficaz de absorción neutrónica, como oro y lutecio, es usual emplear aleaciones con base en una matriz de aluminio, en un rango de concentración entre 0,1% y 0,5%. El detalle a considerar es el error porcentual involucrado, que llega hasta 1,2% para el caso de las aleaciones Al-0.1% Au (IRMM-530Ra).

1.6 Selección de Datos Nucleares

La problemática involucrada en la selección de constantes nucleares para su aplicación en el análisis por activación paramétrica ha sido analizada ampliamente por Cohen y Furnari (1999). Existen varios motivos de dispersión de los valores publicados para la misma constante [Arribére *et al*, 2005] por ejemplo:

- Utilización de un conjunto de datos de entrada no consistentes.
- Falta de actualización de valores, tanto para la reacción en estudio como para la estándar, cuando los datos empleados históricamente son luego reemplazados por otros más confiables. Esta reconversión de valores publicados a partir de nuevos datos de entrada (renormalización) sólo puede efectuarse si la trazabilidad del valor en cuestión se preserva adecuadamente [Furnari y Cohen, 1998].
- Estimación “optimista” de las incertidumbres asociadas a las determinaciones
- Ausencia de una adecuada caracterización del espectro neutrónico en la posición usada para la irradiación. Así, valores válidos para un espectro particular adquieren erróneamente, en la publicación e inclusión en tablas, un carácter universal.

Para seleccionar los datos nucleares empleados se decidió, no la elección del “mejor valor” sino la de un conjunto de valores consistentes, siendo éste el criterio prioritario aplicado. Así, se

tomaron preferentemente valores publicados por el mismo grupo de trabajo. Desde esta perspectiva existen dos bases de datos importantes a considerar: la publicada por De Corte y Simonits (2003) y la producida por Mughabghab (2003), en lo referente a los valores de sección eficaz (σ_0) e integral de resonancia.

La importancia de tales valores en el estudio de los componentes del flujo neutrónico y en el cálculo de concentración mediante el análisis paramétrico es indudable, y siendo valores susceptibles de renormalización cabe esperar su trazabilidad como dato analítico [Furnari y Cohen, 1998].

Tanto las masas atómicas relativas como las abundancias isotópicas (θ) son datos atómicos asociados a las constantes verdaderamente nucleares. Al respecto, las tablas disponibles no presentan mayores discrepancias o inconsistencias, puesto que reciben un tratamiento unificado por la International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC) y son aceptadas por consenso internacionalmente. Para efectos prácticos se emplean los datos reportados por Wieser (2006) y Rossman y Taylor (1998), respectivamente.

Sin embargo, cabe mencionar la existencia de variaciones en la composición isotópica, debido a procesos de fraccionamiento fisicoquímico, para elementos de interés como cromo, selenio y cobre, según Coplent *et al* (2002) cuyo efecto se manifiesta en el incremento de la incertidumbre estándar del peso atómico.

Para los valores de intensidad absoluta de las transiciones en los radionúclidos de interés se emplea como fuente de información la administrada por el Laboratoire Nationale Henri Becquerel (LNHB, Francia) a la que se puede acceder a través de la página web:

www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm

El conocimiento del valor del periodo de semidesintegración puede considerarse en un adecuado nivel. No obstante, algunos radionúclidos presentan valores de incertidumbre mayores que 0,2%, lo que es significativo en caso de medir en condiciones desfavorables (por ejemplo, luego de $10T_{1/2}$) [Smodis *et al*, 2006].

La base de datos a emplear procede principalmente del National Physical Laboratory (NPL) cuyo reporte de 2008 compila la información de fuentes importantes seleccionadas por su calidad técnica, la trazabilidad de los datos publicados y el nivel de reconocimiento internacional:

- Decay Data Evaluation Project (DDEP): representa la mayor fuente de datos de $T_{1/2}$ con 119 radionúclidos evaluados, siendo actualizada permanentemente por el Laboratoire Nationale Henri Becquerel (LNHB, Francia). Puede consultarse en la dirección web www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm
- Evaluated Nuclear Structure Data File (ENSDF) y Nuclear Database (NUDAT),

actualizadas por el National Nuclear Data Center del Brookhaven National Laboratory; disponible en la página www.nndc.bnl.gov/ensdf.

Para el caso de radionúclidos de interés no evaluados aún por DDEP, se emplea la base datos procedentes de IAEA (2007).

La complejidad del tipo de activación/decaimiento de los radioisótopos de interés es igualmente considerada, siendo una importante guía de estudio la dada por la base electrónica interactiva de Kolotov y De Corte (2004). También es un punto a considerar lo relacionado con los pares madre-hija que conducen a equilibrio transitorio, tales como $^{47}\text{Ca}/^{47}\text{Sc}$, $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ y $^{115}\text{Cd}/^{115\text{m}}\text{In}$, según lo estudiado por Cohen y Fornaciari Iljadica (2011).

Para los valores de la energía efectiva de resonancia (\bar{E}_r), se consideran los De Corte *et al* (2001) con una versión electrónica compilada por Kolotov y De Corte, disponible en la página www.iupac.org. No obstante, la evaluación de nucleidos con valores de \bar{E}_r relativamente elevados es complicada y con alto error relativo, limitando su empleo como comparador.

DESARROLLO EXPERIMENTAL

Capítulo 2.1: Materiales y Métodos

El trabajo experimental se desarrolló en Centro Nuclear RACSO, perteneciente al Instituto Peruano de Energía Nuclear y ubicado en Huarangal. Las irradiaciones se llevaron a cabo en el Reactor RP-10, en tanto que la preparación de las soluciones estándares, la medición de las actividades inducidas y la adquisición de datos se realizaron en el laboratorio de Análisis por Activación, dependiente de la Dirección de Investigación y Desarrollo.

2.1.1 Reactor RP-10

El RP-10 es un reactor de investigación tipo piscina, con una potencia nominal de 10 MW térmicos, generados por el proceso de fisión del ^{235}U presente en forma química como U_3O_8 enriquecido al 20%, contenido en vainas de elementos combustibles del tipo MTR; utiliza agua liviana desmineralizada como refrigerante y moderador.

La configuración del núcleo empleado en el transcurso del presente trabajo fue la N° 30. Alrededor del núcleo (figura 3) se ubican tanto bloques de grafito como de berilio, que actúa como reflector de neutrones. Cabe resaltar la posición de uno de los bloques de berilio colocado entre el elemento combustible NN-029, relativamente fresco, y el cabezal de irradiación del tubo neumático asignado en la posición A1. Se tienen 7 posiciones de irradiación habilitadas, siendo las más empleadas A1, por vía neumática, y A9, para irradiaciones fijas mediante cápsulas (canes) de aluminio.

La zona central del núcleo (posición E5) es donde se tienen los niveles de flujo más altos en las tres componentes del espectro neutrónico.

Valores típicos de flujo neutrónico en la posición A1, utilizada en el presente trabajo, con el reactor operando a su máxima potencia, son:

$$\phi_t = 1,92 \times 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1} \text{ en la zona de neutrones térmicos}$$

$$\phi_e = 3,26 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1} \text{ en la zona de neutrones epitérmicos}$$

$$\phi_r = 3,0 \times 10^{12} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1} \text{ en la zona de neutrones rápidos}$$

El reactor cuenta con cinco barras de control grueso, compuestas por una aleación de cadmio, indio y plata, de las cuales tres actúan en realidad como barras de seguridad; posee, además, una barra de ajuste fino de acero inoxidable.

Estas barras se insertan dentro de cajas equivalentes a las de los elementos combustibles. Durante la operación, tres barras de control modifican su posición dentro del núcleo, de modo de

mantener al reactor crítico a la potencia establecida, mientras que las otras dos, definidas como de seguridad, permanecen totalmente fuera del núcleo. La barra de ajuste fino amortigua las pequeñas variaciones de potencia. Las barras se insertarán completamente por gravedad para extinguir el reactor, si se dispara la lógica de seguridad o si son accionadas por el operador de la instalación, en caso necesario.

| | A | B | C | D | E | F | G | H | I |
|---|---------|---------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|---------|---------|
| 1 | TN RAB | NG | | NG | NG | NG | PI 2 | NG | |
| 2 | NG | NB | NN-012 49.33 | NN-021 28.02 | NN-026 15.22 | NN-020 32.71 | NN-016 50.89 | NB | NG |
| 3 | NG | NB | NN-029 9.68 | NC-002 47.45 | NN-022 23.94 | NC-007 7.29 | NN-030 5.57 | NB | NG |
| 4 | NG | PI 3 | NN-024 20.02 | NN-017 41.95 | NN-013 45.38 | NN-006 46.1 | NN-025 18.39 | PI 4 | NG |
| 5 | NG | NB | NN-023 19.46 | NN-019 40.13 | PI 5 | NN-007 42.04 | NN-027 17.57 | NB | NG |
| 6 | NG | NB | NN-032 0 | NC-006 22.76 | NN-005 37.96 | NC-001 29.67 | NN-031 1.83 | NB | NG |
| 7 | NG | NB | NN-011 46.95 | NN-028 11.05 | NC-004 56.32 | NN-018 30.26 | NN-014 49.7 | NB | NG |
| 8 | NG | NG | NG | NG | NG | NG | BCF | NG | NG |
| 9 | PI 6 | | NG | NG | NG | NG | NG | NG | PI 7 |

NN: EC normal, NC: EC control, PI: pos. irradi., NG: grafito, NB: berilio

Figura 3. Configuración del núcleo # 30 en su inicio. Empleada desde el 23-08-2007 al 14-01-2009

2.1.2 Sistema de Transferencia Neumática de Muestras

El sistema neumático de transferencia es un sistema en circuito cerrado, conocido como “rabbit”, que conecta la estación de envío con la posición A1, en la periferia del núcleo del reactor, mediante mangueras de polietileno y un cabezal de aluminio de alta pureza, totalizando una longitud de 50 m. La muestra es transferida mediante aire comprimido, bajo una presión de 29 libras/pulg², controlándose el tiempo de irradiación tanto en forma automática como manual. Dado que el aire es el componente móvil de transferencia se produce activación del argón y se genera ⁴¹Ar (T_{1/2} = 1,827 h; E_γ = 1293,6 keV) por lo cual se toman las precauciones radiológicas del caso, lo que involucra blindajes de plomo y empleo de telepinzas y guantes descartables, así como aplicación de un tiempo de decaimiento adecuado. El tiempo de transferencia y retorno de la cápsula de irradiación es de 8 s, luego del cual las muestras son colocadas en campana

radioquímica para su posterior medición, según esquema de trabajo establecido.

2.1.3 Sistema de Medición por Espectrometría Gamma de Alta Resolución

Las determinaciones que se exponen en este trabajo se realizaron a partir de la medición de las emisiones gamma asociadas a los decaimientos de los productos generados por reacciones nucleares de captura neutrónica inducidas en el reactor.

El núcleo activado emite en la mayor parte de los casos radiación electromagnética, cuya medición suministra una precisa identificación de los elementos presentes; al no poseer carga, es necesario convertir tal energía en una señal o un pulso electrónico adecuado.

Un detector semiconductor de germanio hiperpuro (GeHp) bajo un voltaje de trabajo determinado, capta la radiación gamma emitida colectando la carga producida, que es directamente proporcional a la energía impartida por la radiación.

La amplitud de la señal originada es directamente proporcional a la carga generada por el detector y cuyo procesamiento en una primera etapa es realizado por el preamplificador.

El preamplificador entrega amplitudes proporcionales a $-Q/C$, donde Q es la carga depositada por una interacción y C es la capacidad de carga del circuito equivalente; la señal es posteriormente amplificada y conformada en el amplificador, a valores de altura de pulso entre 0,1 V y 10 V y tiempos comprendidos entre 0,1 μ s y 10 μ s. Las señales analógicas generadas se convierten en digitales mediante el convertidor analógico digital (ADC). Los datos a la salida del ADC son transferidos y almacenados en un analizador multicanal, en donde son clasificados según su amplitud de voltaje en diferentes niveles, llamados canales, obteniendo finalmente un histograma (espectro gamma) cuya evaluación mediante diversos algoritmos de cálculo permite identificar y cuantificar la presencia del elemento en la muestra irradiada.

En este trabajo el tratamiento de los espectros se realizó con el programa Genie2K, versión 2.0 (Canberra) que incluye el procesamiento de la señal.

Se empleó un detector de radiación de estado sólido de germanio intrínseco tipo p de 78 cm³ (cristal: 48 mm de diámetro, 40 mm de largo, ~0.5 mm de capa muerta, 5 mm de distancia entre el cobertor de Al y el cristal, con un grosor de 1.5 mm) marca Canberra, de configuración vertical, modelo GC1518², con 15% de eficiencia relativa y 1,8 keV de resolución (respecto al pico de 1332,5 keV de ⁶⁰Co), y relación pico/Compton ~ 51, asociado a un sistema automático

² En los detectores Canberra los 2 últimos dígitos del número de modelo indican la resolución en keV para el pico de 1332,5 keV de ⁶⁰Co y los dos dígitos intermedios indican la eficiencia relativa a NaI (Tl) 3"x3" para una distancia de 250 mm.

intercambiador de muestras de seis posiciones de conteo³.

El detector está montado sobre un gato hidráulico de 2 Tn de carga, dentro de una estructura metálica de acero tubular con una plancha de 5 mm de espesor, tal como se aprecia en la Figura 4.



Figura 4. Configuración estructural de sistema de espectrometría gamma de alta resolución; A: Blindaje de plomo de 140mm de espesor; B: Detector semiconductor de GeHp (dentro del blindaje); C: Termo criogénico de nitrógeno líquido; D: Gata hidráulica de 2 T de carga; E: Disco de acrílico de 6 posiciones; F: Caja de comandos de intercambiador; G: Estructura metálica de acero tubular

El detector se encuentra rodeado por discos de plomo de 150 mm de espesor, manteniendo una separación interna de 10 mm por lado. Posee un disco de acrílico giratorio, como intercambiador de muestras, con seis posiciones linealmente distanciadas a 260 mm una de otra, lo que permite minimizar interferencias cruzadas.

La distancia muestra-detector en cada una de las posiciones del intercambiador es medida con calibrador digital, tal como se muestra en la tabla 1, normalizando a la posición N°6 mediante un factor de corrección cuadrático la variación obtenida⁴.

Tabla 1. Distancia muestra-detector para cada posición de conteo en disco de acrílico

³ Prototipo fabricado por la Dirección de Investigación y Desarrollo (IPEN)

⁴ Considerando la variación cuadrática de la distancia expresado como (P_n^2/P_6^2) , donde $n=1,..6$ es la posición y P es la distancia en mm.

| Posición | Distancia muestra-detector (mm) + | Factor de corrección respecto a P= 6 |
|----------|--------------------------------------|-----------------------------------------|
| 1 | 56,35 ± 0,07 | 0,993 |
| 2 | 56,53 ± 0,05 | 0,999 |
| 3 | 56,35 ± 0,03 | 0,993 |
| 4 | 57,10 ± 0,04 | 1,019 |
| 5 | 56,63 ± 0,03 | 1,003 |
| 6 | 56,55 ± 0,02 | 1,000 |

(+) variación expresada como desviación estándar (N=3)

2.1.4 Determinación de la Eficiencia Relativa de Medición

La eficiencia de detección, ε , se define como el cociente entre el número de fotones de energía E contados por el detector en el pico de energía plena, C^* , y el número de fotones de la misma energía emitidos por la fuente radiactiva, $N(E)$:

$$\varepsilon = \frac{C^*}{N(E)}$$

Puede ser expresada, considerando las correcciones temporales por decaimiento y conteo, del modo siguiente:

$$\varepsilon = \frac{C_n \cdot \lambda \cdot (e^{-\lambda t_d}) \cdot \left(\frac{t_r}{t_v}\right)}{\gamma \cdot A_0 \cdot (1 - e^{-\lambda t_r})}$$

Donde A_0 es la actividad inicial y C_n es el área neta corregida por coincidencia y por atenuación gamma, en tanto que t_r y t_v son los tiempos de conteo real y prefijado, respectivamente, mientras γ es la intensidad absoluta del pico de energía plena.

La determinación de la eficiencia implica establecer una función matemática en correlación directa con la energía del fotón, la cual usualmente es calculada empleando modelos de simulación matemática como el Monte Carlo, siempre y cuando se conozcan con exactitud las dimensiones del detector o, de modo alternativo, mediante una evaluación semiempírica, considerando arreglos geométricos muestra-detector de mínima complejidad, pero de uso restringido para geometrías diferentes.

Esta última opción fue la elegida para el presente trabajo, definiendo una distancia de medición rutinaria (A2) de 58,2 mm y una distancia de referencia (A1) de 210,7 mm, cuyo arreglo geométrico se detalla en la figura 5.

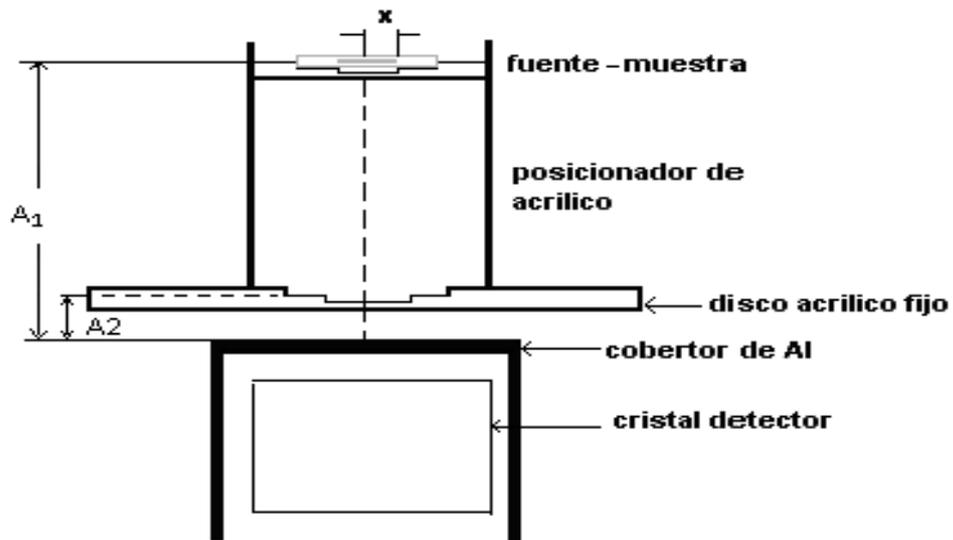


Figura 5. Vista lateral del arreglo geométrico de medición. Distancia de conteo para geometría de referencia A1 = 210,7 mm y para geometría rutinaria A2 = 58,2mm.

Dado que mediciones cercanas al detector implican correcciones por efectos de coincidencia y no se disponía de suficientes fuentes de calibración no coincidentes, se prepararon varias fuentes secundarias, cuya actividad se calculó empleando el valor de eficiencia determinado en la geometría de medición A1.

Tales fuentes, acondicionadas en envases de polietileno (figura 6) similares a los empleados en el análisis de rutina, fueron luego medidas en la geometría A2. Los 13 pares coordenadas energía-eficiencias evaluadas se ajustaron mediante regresión polinómica según la función:

$$\ln \epsilon_{\text{ref}} = c_1 + c_2 \ln \epsilon + c_3 (\ln \epsilon)^2 + c_4 (\ln \epsilon)^3 + c_5 (\ln \epsilon)^4$$

De acuerdo con el formulismo del cálculo de masa que emplea el método paramétrico del k_0 , el factor (ϵ_p/ϵ_i) , revela que solo se necesita calibrar en eficiencia relativa el detector utilizado, de modo que la incertidumbre en la actividad absoluta de la fuente de calibración no causa error.

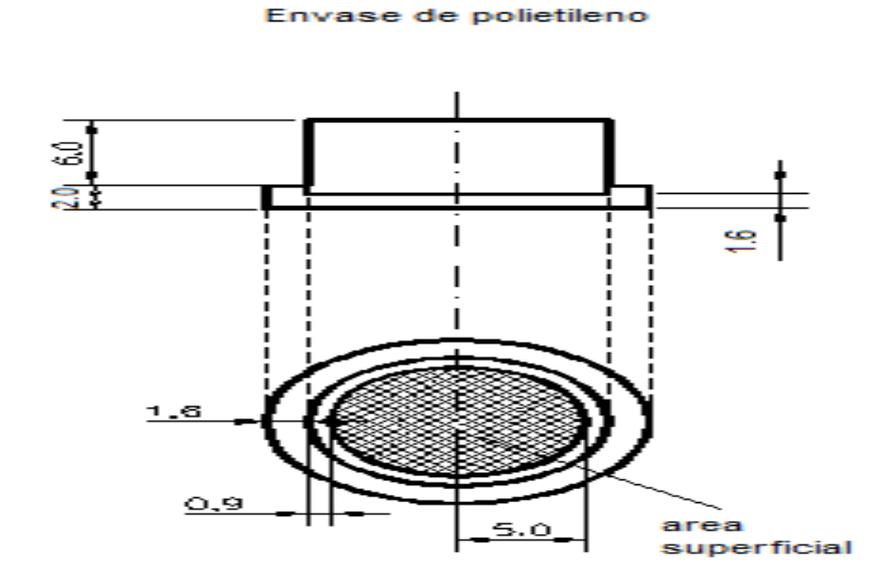


Figura 6. Vista lateral y superior del envase de polietileno usado para el acondicionamiento de muestras (procedencia: Polistor-Argentina). Medidas expresadas en mm.

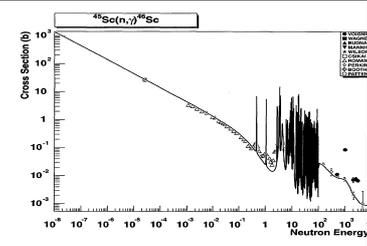
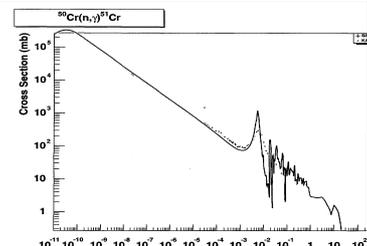
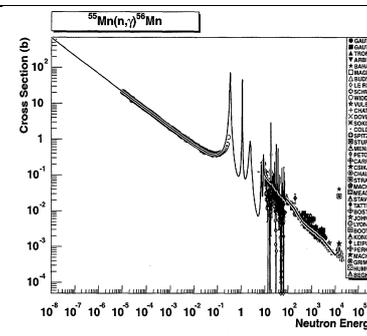
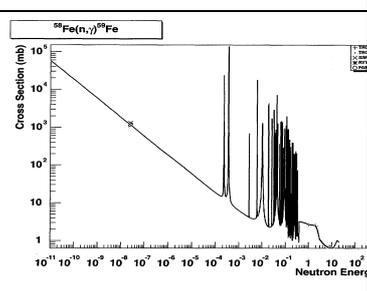
2.1.5 Selección de Precursores y Productos

Para el desarrollo del presente trabajo se buscaron reacciones viables entre las reacciones de captura inducidas por la componente térmica y epitérmica del reactor, cuyos precursores fueran materiales disponibles con características físicas adecuadas para la irradiación y sus productos de reacción medibles por espectrometría gamma.

Se eligieron nucleídos sobre los que la reacción de captura (n,γ) no conducía a la formación de isómeros. Además, se puso especial atención en 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 nucleídos con energías efectivas de resonancia excesivamente altas y se seleccionaron los factores $Q_0(0)$ como para cubrir un amplio rango de valores. En la Tabla 2 se indican los datos nucleares relevantes de los monitores estudiados.

Tabla 2. Datos nucleares de monitores planteados en estudio según referencias mencionadas en el Apartado 1.6

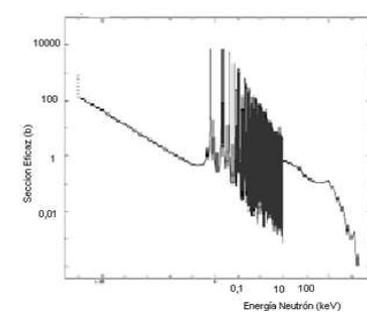
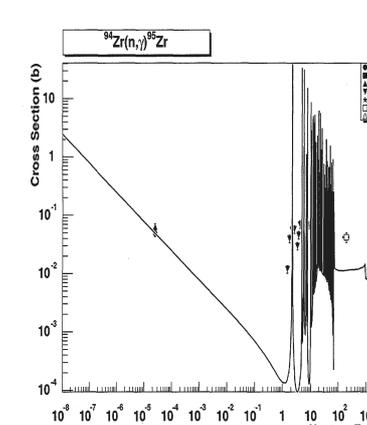
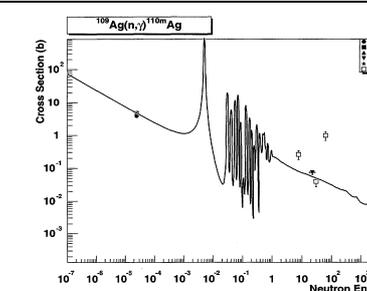
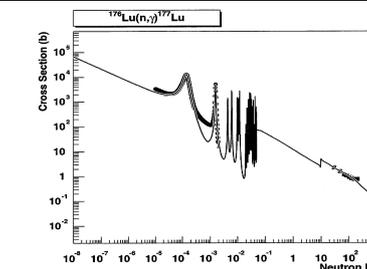
| Blanco / modo Activación | Nucl. | θ (%) | E_γ (keV) | γ (%) | $T_{1/2}$ | \bar{E}_r (eV) | σ_0 (b) | g_{-} factor | I_0 (b) | Funciones de excitación para reacciones (n,γ). Fuente: IAEA TECDOC 1285 (2002) |
|--------------------------|-------|--------------|------------------|--------------|-----------|------------------|----------------|----------------|-----------|-----------------------------------------------------------------------------------------|
| | | | | | | | | | | |

| | | | | | | | | | | |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------|-------|--------------------|---------------------------|-----------------------|--------------|-------------|--------|--------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------|
| ^{45}Sc (tipo IV b) | ^{46}Sc | 100 | 889,27 1120,537 | 99,9833(5) 99,986 (36) | 83,788 (22) d | 5130 (17) | 27.2 (2) | 1.0002 | 12.0 (5) |  |
| Picos de energía plena principales de alta intensidad. $T_{1/2}$ adecuado para administrar el momento de medición. Monitor considerado 1/v puro. | | | | | | | | | | |
| ^{50}Cr (tipo I) | ^{51}Cr | 4,345 | 320.0835 | 9.87 (5) | 27,703 (3) d | 7530 (11) | 15.9 (2) | 1.0002 | 7.8 (4) |  |
| Variabilidad en la composición isotópica según Coplent <i>et al</i> (2002). Diferencia en el valor de σ_0 con respecto al dado por De Corte (15,2 b) con la consiguiente variación sistemática en el cálculo del flujo térmico. | | | | | | | | | | |
| ^{55}Mn (tipo I) | ^{56}Mn | 100 | 846,8 1810,7 | 98,87 (0,3) 27,2 (2,9) | 2,5787 8 (46) h | 468 (11) | 13.3 (1) | 1.0003 | 14.0 (3) |  |
| Comparador usualmente en forma metálica (aleación Al-Mn al 1% con diámetro de 0.2 mm) Asimismo se emplea Mn_3O_4 en masas de 1-2 mg. Picos de energía plena de 846.8 y 1810.7 keV, de adecuada intensidad siendo necesario evaluar efecto de autocoincidencia verdadera. Su sección eficaz sigue un comportamiento 1/v considerándose como monitor de flujo térmico por excelencia aunque es empleado como patrón secundario para determinación de integrales de resonancia. | | | | | | | | | | |
| ^{58}Fe (tipo I) | ^{59}Fe | 0,282 | 1099,2 1291,6 | 56,1 (1,8) 43,6 (1,8) | 44,496 (2) d | 637 (24) | 1.30 (3) | 1.0012 | 1.7 (1) |  |
| Bajo valor de θ del blanco elegido. Empleo de láminas hasta de 100 μm de espesor. Picos de energía plena de adecuada intensidad con $T_{1/2}$ adecuado para optimizar momento de conteo. Diferencia sustancial en el valor de I_0 respecto a la dada por De Corte ($I_0=1.25$) | | | | | | | | | | |

Continuación de tabla 2.

| Blanco / modo Activación | | θ (%) | E_γ (keV) | γ (%) | $T_{1/2}$ | \bar{E}_r (eV) | σ_0 (b) | g_{-} factor | I_0 (b) | Funciones de excitación para reacciones (n, γ). Fuente: IAEA TECDOC 1285 (2002) |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------|--------------|----------------------|-------------------------|-----------------|------------------|----------------|----------------|---------------|-----------------------------------------------------------------------------------------|
| ^{59}Co (tipo IV b) | ^{60}Co | 100 | 1173,228 1332,492 | 99,85(3) 99,9826 (6) | 5,2711 (8) a | 136 (5,1) | 37,18 (6) | 1,0004 | 75,9 (2.0) | |
| <p>Comparador tradicional para determinación de flujo neutrónico. Empleo de aleación Al-Co para minimizar efecto de autodepresión neutrónica. Considerar evaluar coincidencia γ-γ para los picos de 1173.2 y 1332.5 keV. Según esquema de desintegración, por su decaimiento en cascada se hace necesario calcular el coeficiente de correlación angular de relevancia para mediciones cercanas al detector.</p> | | | | | | | | | | |
| ^{64}Zn (tipo I) | ^{65}Zn | 48,6 3 | 1115,5 | 50,70 (0,26) | 243,9 (4) d | 2560 (10) | 1.1 (1) | | 1,45 (6) | |
| <p>Empleado usualmente en forma de hojuela con espesores entre 25-100 μm. $T_{1/2}$ adecuado para manejo de momento de conteo. El valor de σ_0 según Mughabghab difiere entre 2003 y 1981, con inconsistencia en el valor de Q_0 al dado por De Corte.</p> | | | | | | | | | | |
| ^{114}Cd (tipo I) | ^{115}Cd | 28,73 | 527,9 | 27,4 (*) | 53,46 h | 207 (19) | 0,34 | 1,0002 | 14,1 | |
| <p>Valor de Q_0 de importancia para cubrir el rango de estudio del parámetro α. Incongruencia según Kennedy et al; se encuentra variación del 42 % respecto al valor dado por De Corte ($Q_0=32.4$), consistente con la variación observada en el valor I_0 (Mughabghab) con respecto al dado por De Corte ($I_0=10.4$). Efecto de autodepresión neutrónica considerable por la sección eficaz de captura del $^{113}\text{Cd}=20600$ b; hace necesaria una adecuada dilución o el empleo de compuestos enriquecidos isotópicamente (distribuidos por ORNL). (*) Según De Corte F., J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 257, No. 3 (2003)</p> | | | | | | | | | | |
| ^{98}Mo (tipo 1) | ^{99}Mo | 24,13 | 181,1 739,5 | 20,4 30,2 | 65,94 h | 241 (20) | 0,137 (5) | | 6,9 (3) | |
| <p>Valor de Q_0 adecuado. Presenta coincidencias importantes. Empleo usual en forma de hojuelas de 5 a 25 μm. Tanto De Corte como Mughabghab presentan valores similares para Q_0 adecuado para un monitoreo de la componente epitérmica en reemplazo del ^{96}Zr.</p> | | | | | | | | | | |

Continuación de tabla 2.

| Blanco / modo Activación | | θ (%) | E_γ (keV) | γ (%) | $T_{1/2}$ | \bar{E}_r (eV) | σ_0 (b) | g_{-} factor | I_0 (b) | Funciones de excitación para reacciones (n, γ). Fuente: IAEA TECDOC 1285 (2002) |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------|--------------|-------------------------------|--------------------------------------|--------------|------------------|----------------|----------------|--------------|-----------------------------------------------------------------------------------------|
| ^{238}U (tipo II b) | ^{239}Np | 92,7 (*) | 277,599 | 14.4 | 2,356 (3) d | 16,9 (1.2) | 2,680 (19) | 1,0024 | 277 (3) |  |
| <p>(*) Varía en función de concentración de ^{235}U presente. Considerar el empleo de aleación Al-U con ^{235}U empobrecido, con el fin de reducir el tiempo muerto de conteo e interferencia espectral de los radioisótopos originados como productos de fisión. Valor de Q_0 recomendable para el estudio de variación de α. La figura adjunta que describe la función de excitación para la reacción $^{238}\text{U}(n,\gamma)^{239}\text{U}$ procede de la base de datos ENDF/B-VII dirección Internet: www.nndc.bnl.gov/exfor</p> | | | | | | | | | | |
| ^{94}Zr (tipo I) | ^{95}Zr | 17,28 | 724,193 756,729 | 44,27 (22) 54,38 (22) | 64,032 (6) d | 6260 (4) | 0,051 (2)+ | 1,0004 | 0,271 (3,9)+ |  |
| ^{96}Zr (tipo IIa) | ^{97}Zr | 2,76 | 743,4 | 97,95 | 16,74 h (+) | 338 (2.1) | 0,0197 (1.5)+ | 1,0007 | 4,96 (1,8)+ |  |
| <p>(+) Incertidumbre expresada como error porcentual (De Corte y Simonits, 2003). No es adecuado para medición de f para flujo neutrónico térmico relativamente bajo ($\Phi_{th} < 10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$). Continúa reevaluación del parámetro Q_0; revela la difícil determinación del mismo. Valores encontrados: varían desde 248 hasta 312 (Smodis 2009). Reportes contradictorios sobre el empleo de Au-Zr como monitores de flujo reflejan problemas de distorsión de la componente epitérmica del ^{94}Zr y ^{96}Zr por probable absorción de fotoneutrones producidos por reacciones (n,2n) en reflector de Be y/o captura por resonancia por efecto del material estructural (barras de control).</p> | | | | | | | | | | |
| ^{109}Ag (tipo I) | ^{110m}Ag | 48,16 08 | 657,76 884,6781 937,485 | 94,38 (8) 74,0 (12) 34,51 (27) | 249,78 (8) d | 6,08 (1) | 3,94 (0.7)+ | 1,0057 | 65,8 (4,3)+ |  |
| <p>Diferencia sustancial en el valor de σ_0 respecto al dado por Mughabghab ($\sigma_0 = 91.0 \pm 1.0$) aun suponiendo la contribución m+g para el cálculo respectivo. Sin embargo, es consistente con lo observado por Kennedy respecto a la variación del valor de Q_0 (-10.6%) con lo dado por De Corte. Preparación sobre la base de disolución de AgNO_3 y deposición en soporte de W41 para posterior peletización. Complicado esquema decaimiento, con necesaria corrección por coincidencia para los principales picos de energía plena.</p> | | | | | | | | | | |
| ^{176}Lu (tipo I) | ^{177}Lu | 2,584 | 208,3662 | 10,38 (7) | 6,647 (4) d | 0,158 | 2090 (70) | 1,7579 | 1087 (40) |  |
| <p>Posee picos de referencia < 0.4 eV. Si bien existe una diferencia sustancial al valor dado por De Corte para I_0 (3507 b), es mínima la variación en Q_0. Usualmente se emplea en aleación con Al en forma de alambre al 0.1%. Su importancia de uso radica en poder determinar la temperatura neutrónica como parámetro de caracterización del espectro neutrónico.</p> | | | | | | | | | | |

Continuación de tabla 2.

| Blanco / modo Activación | | θ (%) | E_γ (keV) | γ (%) | $T_{1/2}$ | \bar{E}_r (eV) | σ_0 (b) | g_{factor} | I_0 (b) | Funciones de excitación para reacciones (n, γ). Fuente: IAEA TECDOC 1285 (2002) |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------|--------------|------------------|--------------|-------------|------------------|----------------|---------------------|-----------|-----------------------------------------------------------------------------------------|
| ^{197}Au (tipo I) | ^{198}Au | 100 | 411,802 05 (17) | 95,56 (7) | 2,694 4 (8) | 5,65 | 98,65 (9) | 1,005 4 | 1550 (28) | |
| <p>^{197}Au usualmente empleado como estándar de flujo en activación neutrónica con una incertidumbre relativa para σ_0 de 0,09% [Molnar, (2000)]. Considerado igualmente estándar primario para medición de la integral de resonancia. Es monoisotópico, no tiene corrección por coincidencia, tasa de activación adecuada y un periodo de semidesintegración lo suficiente para poder ser reutilizado. Preparación bastante accesible ya sea en forma metálica (aleación Al-0,1% Au) o mediante soluciones estándar. Datos de sección eficaz de absorción e integral de resonancia son por consenso internacional. Gran dependencia por comportamiento del factor α.</p> | | | | | | | | | | |

2.1.6 Preparación de Blancos

Se preparó una solución múltiple conteniendo concentraciones conocidas de Co(II), Cr(III), Mn(II), Mo(VI) y Sc(III) a partir de alícuotas de sus correspondientes soluciones estándar. Los eventuales efectos de contaminación cruzada son despreciables, dada la alta pureza de los reactivos empleados (concentración de impurezas $< 0,02 \mu\text{g/ml}$) y por el medio ácido empleado no se esperan pérdidas por volatilización. Se transfirieron 350 mg de la solución múltiple a un envase de polietileno (figura 6) conteniendo como soporte 30 mg de celulosa marca FLUKA de grado cromatográfico, secando el contenido mediante lámpara infrarroja. Se tapó el envase obteniendo un espesor no mayor 1 mm, con el fin de minimizar la autoabsorción de la radiación gamma. Se selló el envase térmicamente mediante plancha convencional recubierta con papel de aluminio.

Toda transferencia de material se realizó en forma gravimétrica, empleando una balanza electrónica no automática marca Shimadzu, modelo AW320, con un alcance de indicación máxima de 320 g y una división de 0,1 mg.

Los monitores en forma metálica se irradiaron, según su disponibilidad, como alambres o láminas, determinando para cada caso los factores de autodepresión neutrónica tanto térmica (G_{th}) como epitérmica (G_{epi}) mediante programa de cálculo en Excel [Chilian *et al* 2008].

Tales monitores se colocaron conjuntamente en un envase similar al de la muestra, sellando del mismo modo y tratando de ajustarlos lo mejor posible con la contratapa.

En la tabla 3 se indican las masas de los analitos de interés y los factores de corrección por

autodepresión neutrónica, así como los parámetros de conteo empleados.

Tabla 3. Datos relevantes de los monitores empleados (M). Concentración en mg/l referida a las soluciones estándar

| M | Descripción | w (µg) | u _w (µg) (k=1) | Nucleído | E _γ (keV) | Tiempo muerto % | u _{peak} (%) (k=1) | Eficiencia | COI |
|----|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------|---------------------------|------------------------------------------|-----------------------|-----------------|-----------------------------|------------------------|--------------------|
| Au | IRMM-530R A G _{th} =1,0000, G _{epi} =0,9961 1000 mg/L, | 14,72 4 | 0,088 | ¹⁹⁸ Au | 411,8 | 4,2 | 0,13 | 0,00584 | 1 |
| Co | Merck CertiPUR 1000 mg/L, | 114,4 0 | 0,23 | ⁶⁰ Co | 1173,2 1332,5 | 0,8 0,8 | 0,15 0,16 | 0,00202 0,00179 | 0,9852 0,9822 |
| Cr | Merck CertiPUR hojuela, 20 µm espesor, | 173,3 0 | 0,87 | ⁵¹ Cr | 320,1 1099,2 | 0,8 0,2 | 0,26 0,27 | 0,00776 0,00215 | 1 0,9983 |
| Fe | 99,9 % puro, G _{th} =0,9960, G _{epi} =0,9997 0,1 % Lu-Al | 20060 | 20 | ⁵⁹ Fe | 1291,6 | 0,2 | 0,30 | 0,00185 | 1,0005 |
| Lu | alambre, 250 µm φ, | 7,340 | 0,010 | ¹⁷⁷ Lu | 208,4 | 0,5 | 0,18 | 0,0121 | 0,9951 |
| Mn | 1010 mg/L, Accu Trace | 5,787 | 0,029 | ⁵⁶ Mn* | 846,8 1810,7 | 0,9 0,9 | 0,08 0,24 | 0,000330* 0,000162* | 0,9992* 0,9976* |
| Mo | 1000 mg/L, Merck CertiPUR | 350,4 | 1,8 | ⁹⁹ Mo | 739,5 | 0,8 | 0,42 | 0,00314 | 0,9816 |
| Sc | 1010 mg/L, Aldrich | 5,840 | 0,029 | ⁴⁶ Sc | 889,3 1120,5 | 0,8 0,8 | 0,13 0,14 | 0,00263 0,00211 | 0,982 0,9807 |
| Zn | Hojuela, 100 µm espesor, 99,9 % puro, Merck, G _{th} =0,9976, G _{epi} =0,9752 Hojuela, 127 µm espesor, 99,8 % puro, Johnson Matthey | 16823 | 17 | ⁶⁵ Zn ⁹⁵ Zr | 1115,5 742,2** | 0,6 2,8 | 0,19 0,29 | 0,00212 0,00313 | 1 1 |
| Zr | ⁹⁴ Zr: G _{th} =0,9996, G _{epi} =0,9875 ⁹⁶ Zr: G _{th} =0,9996, G _{epi} =0,9665 | 42430 | 85 | ^{97m} Nb | 743,4 | 2,8 | 0,11 | 0,00312 | 1 |

* El ⁵⁶Mn fue contado a una distancia de 210,7 mm

** Energía efectiva (724,2 keV + 756,7 keV)

Capítulo 2.2: Optimización de las Condiciones de Irradiación y Medición

Con respecto al modo de irradiación, la forma rutinaria para realizar las irradiaciones de caracterización del reactor fue mediante el uso de cápsulas de irradiación de polietileno (PE); el

mismo material se utilizó también para los contenedores de muestras. Según Arboccó *et al* (2010) cuando se emplean envases de PE el efecto de autoblandaje térmico observado es aproximadamente 1%, implicando un mínimo efecto en los resultados analíticos.

Los envases de PE conteniendo tanto la solución múltiple como los monitores metálicos se acondicionaron en cápsulas de irradiación, tal como se observa en la figura 7. Se transfirieron a la posición A1 por vía neumática y se irradiaron por espacio de (939 ± 1) s a una potencia nominal de 10 MW.

Para definir las masas a irradiar se consideró una actividad que implicara una incertidumbre de área menor que 0,5% para el pico de energía plena evaluado. Luego, mediante la ecuación de activación (tasa de reacción según la convención de Stoughton Halperin modificada) y mediante un esquema de trabajo con los factores temporales preestablecidos, se calcularon los valores de masa de los elementos correspondientes.

Los tiempos de decaimiento se ajustaron de forma tal de medir con un tiempo muerto $T_m < 5\%$ y con buena estadística de conteo, $A \geq 50000$, para el pico de energía plena del radioisótopo de interés.

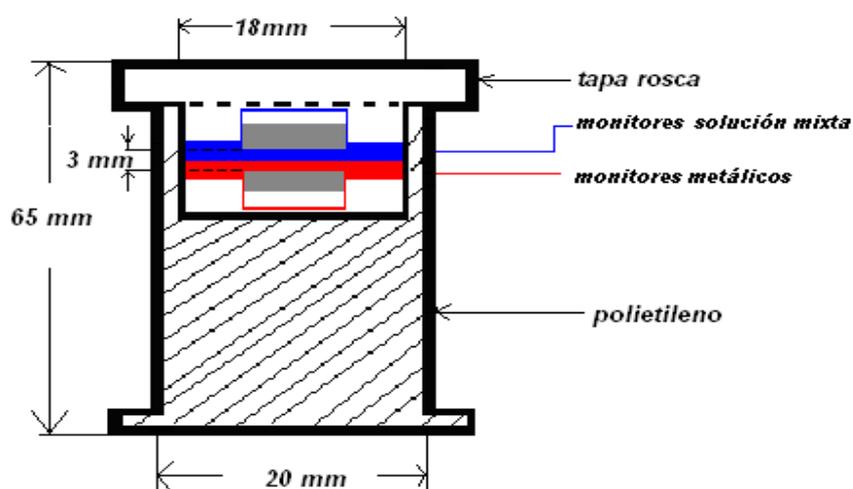


Figura 7. Cápsula de irradiación de polietileno empleada en el sistema neumático de transferencia

Con el objeto de mantener una geometría de medición similar entre las fuentes secundarias de calibración y los monitores metálicos irradiados, estos últimos se transfirieron a un nuevo envase (figura 6) en donde se midieron uno por uno.

La geometría estándar de 58,2 mm empleada para el conteo de los radioisótopos de interés (exceptuando al ^{56}Mn , que se midió a 210,7mm) implica la necesidad de incluir correcciones por coincidencia; a esos efectos se utilizó el “ k_0 -IAEA programe” [Rossbach *et al*, 2007].

En la tabla 4 se resumen las condiciones de medición de la solución mixta y de los monitores metálicos preparados.

Tabla 4. Esquema de conteo de los diversos radioisótopos de interés para la caracterización del flujo neutrónico

| Muestra | Radioisótopos evaluados | Energía (keV) | Tiempo decaimiento (s) | Tiempo medición (s) | Área $\pm U_A$ (%), k=1 |
|-------------------|------------------------------------|---------------|------------------------|---------------------|-------------------------|
| solución múltiple | ^{56}Mn | 846,8 | 3480 | 8000 | 1682000 \pm 0,083 |
| | ^{51}Cr | 320,1 | 187200 | 67730 | 360500 \pm 0,18 |
| | ^{99}Mo | 739,1 | 187200 | 67730 | 88800 \pm 0,40 |
| | ^{46}Sc | 889,3 | 187200 | 67730 | 639000 \pm 0,13 |
| | ^{60}Co | 1173,22 | 187200 | 67730 | 458600 \pm 0,15 |
| | | 1332,5 | 187200 | 67730 | 404000 \pm 0,16 |
| Zn | ^{65}Zn | 1115,5 | 763140 | 8000 | 280300 \pm 0,19 |
| Zr | ^{95}Zr | 724,2 | 165600 | 14400 | 121300 \pm 0,30 |
| | | 756,7 | 165600 | 14400 | 143400 \pm 0,27 |
| | $^{97}\text{Zr} - ^{97m}\text{Nb}$ | 743,4 | 165600 | 14400 | 918200 \pm 0,10 |
| Lu | ^{177}Lu | 208,37 | 80114 | 5000 | 321000 \pm 0,18 |
| Au | ^{198}Au | 411,8 | 340080 | 1000 | 611500 \pm 0,13 |
| Fe | ^{59}Fe | 1099,2 | 793920 | 70000 | 194000 \pm 0,27 |
| | | 1291,6 | 793920 | 70000 | 126300 \pm 0,29 |

Los tiempos de decaimiento se ajustaron de forma tal de medir con un tiempo muerto $T_m < 5\%$ y con buena estadística de conteo, $A \geq 50000$, para el pico de energía plena del radioisótopo de interés.

TERCERA PARTE: RESULTADOS Y EVALUACIÓN

Capítulo 3.1: Evaluación del Método Propuesto: Ventajas y Limitaciones

El método de cálculo implementado, descrito en el capítulo 1.4, evalúa los datos de entrada en forma independiente, permitiendo visualizar en forma gráfica el comportamiento del monitor de interés a lo largo de su función $\phi_t = f(\phi_e)$. Esto constituye una gran ventaja al momento de investigar mínimas variaciones en el comportamiento del monitor, imperceptibles algunas veces mediante la evaluación numérica definida como concordancia. Asimismo, es posible evaluar la influencia de los parámetros de entrada mediante aproximación numérica, observando posteriormente en formas gráfica el comportamiento del monitor con los datos introducidos.

Dentro de los parámetros nucleares de entrada, los referidos a sección eficaz de absorción (σ_0) e intensidad de emisión gamma (γ) son los más críticos, dada su participación directa en el formulismo de cálculo del flujo neutrónico térmico, en tanto que el área del pico de interés evaluado, así como su eficiencia absoluta, son las variables experimentales más relevantes. La incertidumbre relativa asociada a tales parámetros es de gran importancia al momento de seleccionar los monitores y es en este punto en donde el programa tiene cierta limitación, por carecer de tal información.

Sin embargo, el cálculo de la incertidumbre empleando el código de Montecarlo nos brinda la información necesaria para las incertidumbres de los parámetros ϕ_t , ϕ_e , α y f basada en el tratamiento sobre datos reales y suponiendo una distribución rectangular (por el algoritmo de la variable pseudoaleatoria empleada), cuyos valores a 68% de confianza son más conservadores que los correspondientes a una distribución normal.

La forma de cálculo del parámetro α reviste especial importancia y presenta una ventaja, pues basa su determinación en el comportamiento de los monitores involucrados y permite calcular una incertidumbre acorde al valor encontrado, a diferencia de la metodología empleada por De Corte (1987) que expresa el error de α como:

$$S_{\alpha} = (S_{\alpha, X1}^2 + S_{\alpha, X2}^2 \dots + S_{\alpha, Xn}^2)^{1/2}$$

Donde cada $S_{\alpha, xi}$ es determinado por la expresión de propagación del error con peso estadístico:

$$S_{\alpha, xi} = \left(\sum_{i=1}^N [Z_{\alpha}(x_i) s(x_i)]^2 \right)^{1/2}$$

Siendo el peso del error:

$$Z_{\alpha(x_i)} = \left| \frac{x_i}{\alpha} * \frac{\partial F}{\partial x_i} / \frac{\partial F}{\partial \alpha} \right|$$

Donde $F(\alpha, x_1, x_2, \dots, x_n) = 0$. Es frecuente en reactores nucleares encontrar valores de α muy pequeños, lo que implica un error muy grande, que incluso llega a ser indefinido para $\alpha = 0$. En tales condiciones no tendría sentido la determinación de α .

El análisis gráfico implementado en macros de Excel, que se basa en el empleo simultáneo de varios monitores, permite realizar el ajuste considerando el valor mínimo de coeficiente variación (CV), pero dicho valor de CV considera el aporte general de los monitores involucrados sin grado de selectividad alguna. Es decir, sin informar acerca de un eventual comportamiento inconsistente de alguno de los monitores empleados. En cambio, un ajuste visual resulta ser lo más recomendable, pues permite la intervención interactiva del experimentador, en la búsqueda del mejor punto de intersección o de solución, el cual tiene que incluir los monitores claves como ^{198}Au , $^{97\text{m}}\text{Nb}$, ^{99}Mo y los denominados térmicos, sin olvidar al ^{177}Lu . Este fue el principal mecanismo empleado en la selección de los monitores, que será discutida en el capítulo 3.2, así como en el cálculo de los parámetros de f y α .

Con el fin de minimizar cualquier eventual sesgo en la eficiencia de medición, no fueron empleados los picos de energía plena de transiciones secundarias, aun a pesar de que la incertidumbre de conteo era en algunos casos inferior a 0,4%. Este criterio se aplicó a los picos de 1810,6 keV del ^{56}Mn , de 1291,5 keV del ^{56}Fe y de 1120,5 keV del ^{46}Sc ; este último podría también haber sido interferido por la radiación del fondo natural.

El método desarrollado presentó un alto grado de robustez, observada en los diferentes gráficos de ajuste iterativo (ver figuras 8 – 12) donde los valores para f , α y T_n se mantienen casi inalterables, incluso si existe una situación de inconsistencia para alguno de los monitores involucrados. Tal característica de robustez se debe a que el valor de f se determina sobre la base del flujo neutrónico térmico promedio de todos los monitores partícipes, en tanto que α y T_n se obtienen por ajuste iterativo según criterio visual.

Capítulo 3.2: Evaluación de los Monitores Seleccionados

Los criterios indicados en el capítulo 1.5 fueron aplicados para la selección de monitores en una primera etapa, cuya preparación y acondicionamiento fueron descriptos en el apartado 2.1.5. Una siguiente etapa implica la evaluación de los datos nucleares y las constantes empleadas en el

cálculo de los parámetros característicos del flujo neutrónico según la metodología implementada. En la tabla 5 se presentan los parámetros de mayor variación entre las principales fuentes de datos utilizadas.

Tabla 5: Constantes, datos nucleares y referencias respectivas empleadas en el cálculo de los parámetros característicos de flujo neutrónico.

| Monitor | Mughabghab (2003) | | De Corte y Simonits (2003) | | Producto | E_γ (keV) | γ [LNHB*, 2011] |
|---------|---------------------|-----------------|----------------------------|-------------------|----------|------------------|------------------------|
| | σ_0 (b) | I_0 (b) | σ_0 (b) | I_0 (b) | | | |
| Au-197 | $98,65 \pm 0,09$ | 1550 ± 28 | $98,7 \pm 0,1$ | 1550 ± 28 | Au-198 | 411,8 | 0,95560 |
| Co-59 | $37,18 \pm 0,06$ | $75,9 \pm 2,0$ | $37,1 \pm 0,1$ | $73,9 \pm 2,2$ | Co-60 | 1173,2 | 0,99850 |
| | | | | | | 1332,5 | 0,99983 |
| Cr-50 | $15,9 \pm 0,2$ | $7,8 \pm 0,4$ | $15,1 \pm 0,1$ | $8 \pm 0,2$ | Cr-51 | 320,1 | 0,09870 |
| Fe-58 | $1,30 \pm 0,03$ | $1,7 \pm 0,1$ | $1,28 \pm 0,04$ | $1,25 \pm 0,04$ | Fe-59 | 1099,2 | 0,56590 |
| Lu-176 | 2090 ± 70 | 1087 ± 40 | 2100 ± 50 | 3507 | Lu-177 | 208,4 | 0,10380 |
| Mn-55 | $13,3 \pm 0,1$ | $14,0 \pm 0,3$ | $13,2 \pm 0,2$ | $13,9 \pm 0,5$ | Mn-56 | 846,8 | 0,98850 |
| Mo-98 | $0,137 \pm 0,005$ | $6,9 \pm 0,3$ | $0,131 \pm 0,003$ | $6,96 \pm 0,47$ | Mo-99 | 739,5 | 0,12120 |
| Sc-45 | $27,2 \pm 0,2$ | $12,0 \pm 0,5$ | $26,3 \pm 0,2$ | 11,3 | Sc-46 | 889,3 | 0,99983 |
| Zn-64 | $1,1 \pm 0,1$ | $1,45 \pm 0,06$ | $0,728 \pm 0,010$ | $1,39 \pm 0,07$ | Zn-65 | 1115,5 | 0,50220 |
| Zr-94 | $0,0499 \pm 0,0024$ | $0,27 \pm 0,03$ | $0,051 \pm 0,001$ | $0,271 \pm 0,011$ | Zr-95 | 742,2** | 0,98650 |
| Zr-96 | $0,020 \pm 0,001$ | $5,6 \pm 0,2$ | $0,0197 \pm 0,0003$ | $4,96 \pm 0,09$ | Nb-97m | 743,4 | 0,97950 + |

(+) Moens *et al* (1984)

* Laboratoire Nationale Henri Becquerel (LNHB)

** Energía gamma efectiva (724,2 keV + 756,7 keV)

Para el peso atómico se empleó como fuente de datos la dada por Wieser (2006), mientras que los valores de abundancia isotópica fueron los recomendados por Rosman y Taylor (1998); para la energía de resonancia efectiva la fuente fue la tabla de De Corte y Simonits (2003). Se empleó la base de datos de “Decay Data Evaluation Project (DDEP)”, administrada y actualizada por Laboratoire Nationale Henri Becquerel (LNHB), para los datos de periodo de semidesintegración

e intensidad de emisión gamma excepto para el caso del ^{96}Zr , para el que se utilizaron las referencias [Kolotov y De Corte, 2004] y [Moens *et al*, 1984] respectivamente.

Se evaluaron gráficamente las variaciones producidas por los valores empleados de las dos bases de datos consideradas. Con el fin de explicar en forma coherente dicha evaluación en forma sistemática, se analizó el comportamiento y la consistencia de los diversos monitores a partir del resultado final obtenido, presentado en forma gráfica en la figura 8.

Se observa una alta consistencia entre ^{46}Sc , ^{56}Mn , ^{60}Co , $^{97\text{m}}\text{Nb}$, ^{95}Zr , ^{198}Au , ^{51}Cr , ^{65}Zn y ^{177}Lu , en la zona de mayor cruce de rectas. El rango de la zona de cruce con relación al flujo neutrónico térmico promedio es aproximadamente 0,2%, considerando como límites los valores de ϕ_t para ^{46}Sc y ^{65}Zn calculados para un $\phi_e = 3,32 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Esto implica que el rango de variación de la zona de intersección se encuentra dentro de la incertidumbre calculada.

Considerando los valores obtenidos para los parámetros del flujo neutrónico se calculó la concordancia en términos de área para el pico de energía pleno característico y los valores de k_0 respectivos, comparándose con los reportados por la literatura [De Corte y Simonits, 2003] y los calculados teóricamente. Los resultados se presentan en la tabla 6. Es importante notar que el concepto de concordancia (razón entre el área observada y la calculada) constituye una primera medida de la consistencia de los datos

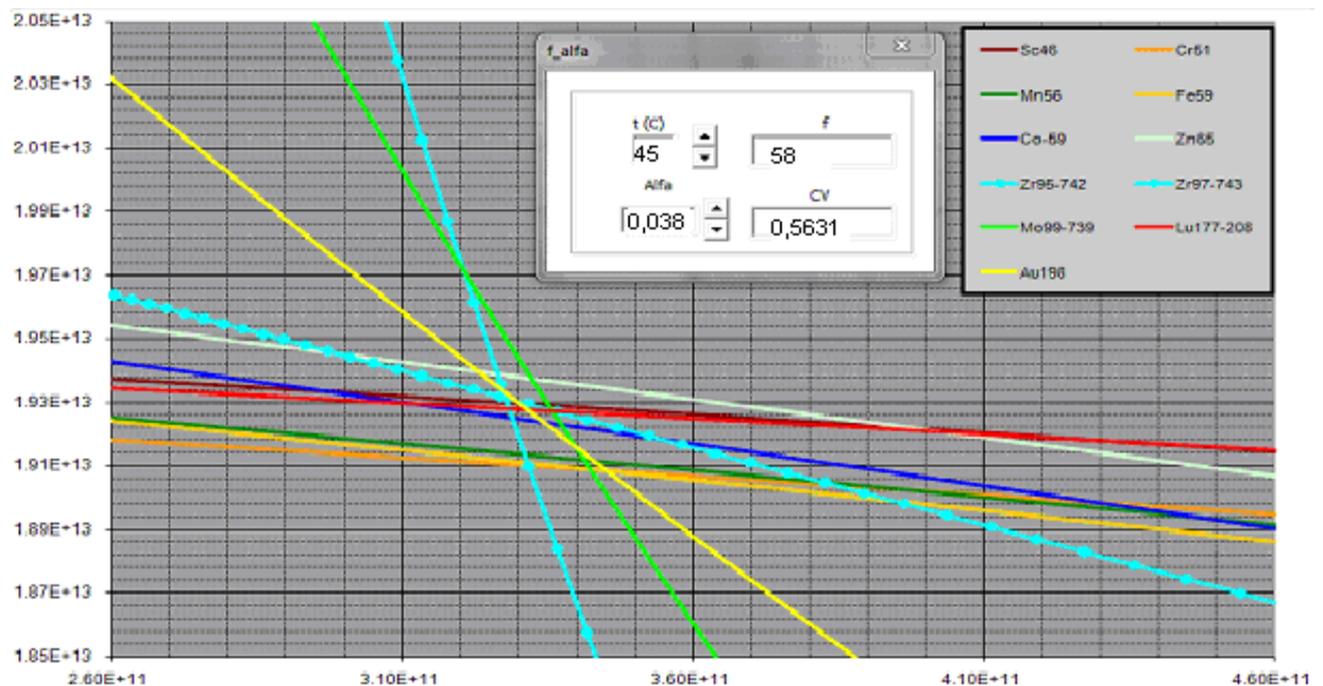


Figura 8: Determinación simultánea de f , α y T_n . Zona de cruce seleccionada: ^{46}Sc , ^{99}Mo , ^{59}Co , $^{97\text{m}}\text{Nb}$, ^{198}Au , ^{95}Zr , ^{65}Zn y ^{177}Lu : $f = 58 \pm 2$, $\alpha = 0,038 \pm 0,008$ y $T_n = 45 \pm 2$. Flujo neutrónico promedio para 10 MW de potencia: $\phi_t = (1,924 \pm 0.005) 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ y $\phi_e = (3,32 \pm 0.14) 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Incertidumbre expresada como 1σ .

Tabla 6: Evaluación de la concordancia y de los valores de k_0 obtenidos con los reportados en literatura y los calculados a partir de los datos nucleares

| Radioisótopo | E_γ (keV) | Concordancia entre las áreas calculadas y experimentales | k_0 obtenido | k_0 literatura [De Corte y Simonits, 2003] | k_0 calculado | k_0 obtenido / k_0 literatura | k_0 obtenido / k_0 calculado |
|-------------------|------------------|----------------------------------------------------------|----------------|----------------------------------------------|-----------------|-----------------------------------|----------------------------------|
| ^{198}Au | 411,8 | 0,9985 | 1,000 | 1,000 | 1,000 | 1,000 | 1,000 |
| ^{60}Co | 1173,2 | 0,9992 | 1,314E+00 | 1,32E+00 | 1,316E+00 | 0,9955 | 0,9984 |
| ^{60}Co | 1332,5 | 1,0009 | 1,3216E+00 | 1,32E+00 | 1,318E+00 | 0,9967 | 0,9983 |
| ^{51}Cr | 320,1 | 0,9989 | 2,715E-03 | 2,62E-03 | 2,740E-03 | 1,0362 | 0,9908 |
| ^{59}Fe | 1099,2 | 0,9954 | 7,692E-05 | 7,77E-05 | 7,759E-05 | 0,9900 | 0,9914 |
| ^{177}Lu | 208,4 | 1,0085 | 6,694E-02 | 7,14E-02 | 6,694E-02 | 0,9375 | 0,9999 |
| ^{56}Mn | 846,8 | 1,0000 | 4,963E-01 | 4,96E-01 | 5,000E-01 | 1,0006 | 0,9926 |
| ^{99}Mo | 739,5 | 1,0130 | 8,774E-05 | 8,46E-05 | 8,727E-05 | 1,0371 | 1,0054 |
| ^{46}Sc | 889,3 | 0,9965 | 1,265E+00 | 1,22E+00 | 1,264E+00 | 1,0370 | 1,0009 |
| ^{65}Zn | 1115,5 | 1,0000 | 5,709E-03 | 5,72E-03 | 5,676E-03 | 0,9981 | 1,0052 |
| ^{95}Zr | 742,2 | 1,0055 | 2,005E-04 | 2,00E-04 | 2,003E-04 | 1,0023 | 1,0010 |
| ^{97m}Nb | 743,4 | 0,9922 | 1,244E-05 | 1,24E-05 | 1,256E-05 | 1,0035 | 0,9908 |

Se obtuvo un alto grado de concordancia entre áreas medidas y calculadas siguiendo el formulismo de Stoughton-Halperin, sobre la base de datos nucleares seleccionados inicialmente. Se encontró gran similitud en la razón de valores k_0 obtenidos experimentalmente frente a los calculados teóricamente. Con respecto a los valores k_0 reportados en la literatura [De Corte y Simonits, 2003] se encontró una razón mayor que $|1,03|$ para ^{51}Cr , ^{46}Sc , ^{177}Lu y ^{99}Mo , cuyas probables causas serán discutidas en los siguientes capítulos.

3.2.1 Monitores de Bajo Q_0 (< 10)

Para la selección de los monitores de mejor comportamiento térmico se consideró, de acuerdo con Yusuf y Fleming (1994), aquellos cuyo valor de Q_0 se aproxima a $0,45$,⁵ que se correlacionan con una menor contribución epitérmica en la actividad inducida total medida. Tal contribución se determinó a partir de los datos empleados en el cálculo del parámetro de “área esperada”, utilizado posteriormente en la evaluación de la concordancia.

Según se observa en tabla 7, tanto el ^{45}Sc como el ^{50}Cr tienen el mejor comportamiento $1/v$. Sin

⁵ Monitores cuya sección eficaz sigue $1/v$; se tiene que: $\frac{I_o}{\sigma_o} = 2 \sqrt{\frac{E_o}{E_{cd}}} = 0,45$, donde $E_o = 0,0253$ eV y $E_{cd} = 0,55$

eV

embargo, la diferencia entre valores σ_0 de las bases de datos empleadas [Mughabghab, 2003] y [De Corte y Simonits, 2003], es mayor que el rango de incertidumbre estipulado (ver tabla 6). Por tal razón, se efectuó la evaluación gráfica de la función $\phi_t = f(\phi_e)$ respectiva, con el fin de determinar la consistencia del dato investigado.

Según indica la figura 9, se observó inconsistencia del valor de σ_0 publicado por De Corte *et al* (1989) para la reacción $^{50}\text{Cr}(n,\gamma)^{51}\text{Cr}$, al ser evaluado conjuntamente con los demás monitores. Tal valor fue determinado según el formulismo:

$$\sigma_0 = (k_0, \text{Au})_{\text{exp}} \frac{\theta_{\text{Au}} \cdot \sigma_{0,\text{Au}} \cdot \gamma_{\text{Au}}}{M_{\text{Au}}} \frac{M}{\theta \cdot \gamma}$$

Empleando Au como comparador y realizando, según los autores un estudio minucioso en la literatura de los “mejores” valores para los parámetros γ , θ y M. No obstante, al emplear los valores de σ_0 e I_0 dados por Mughabghab (2003), se obtuvo un óptimo ajuste al punto de intersección. Asimismo, se encontró similitud entre el valor de k_0 obtenido con el calculado teóricamente discrepando $\sim 3,6\%$ con respecto al valor reportado en la literatura coincidiendo esta discrepancia con la diferencia encontrada por Molnar (2000).

Tabla 7: Contribución de la componente epitérmica en la actividad inducida de los monitores empleados, considerando un valor de $f = 58$ y $\alpha = 0,038$

| Monitor | $Q_0(0)$ | Contribución epitérmica (%) |
|-------------------|----------|-----------------------------|
| ^{45}Sc | 0,441 | 1,7 |
| ^{50}Cr | 0,491 | 1,7 |
| ^{176}Lu | 0,520 | 1,4 |
| ^{55}Mn | 1,053 | 2,5 |
| ^{58}Fe | 1,308 | 2,8 |
| ^{64}Zn | 1,909 | 3,4 |
| ^{59}Co | 2,041 | 3,8 |
| ^{94}Zr | 5,314 | 7,1 |
| ^{197}Au | 15,712 | 20,7 |
| ^{98}Mo | 50,365 | 41,7 |
| ^{96}Zr | 280,0 | 78,9 |

De modo similar se evaluó el comportamiento del ^{46}Sc (figura 10) considerando $\sigma_0 = (26,3 \pm 0.2)$ b, según De Corte y Simonits (2003). El análisis gráfico mostró una evidente inconsistencia, con una discrepancia del 3,7 % entre valor de k_0 obtenido, frente al reportado.

Molnar (2000) encontró las mismas discrepancias para el ^{46}Sc , sugiriendo como causas un valor

de incertidumbre poco real o metodología no adecuada para determinación de σ_0 (a partir de los factores de k_0). Esto último constituye, desde la perspectiva del autor, la explicación más relevante de las inconsistencias observadas. En efecto, el citado autor ha criticado la determinación de secciones eficaces por medio de la ecuación empleada por De Corte *et al* (1989), debido a que implica un presupuesto de incertidumbre inaceptablemente alto.

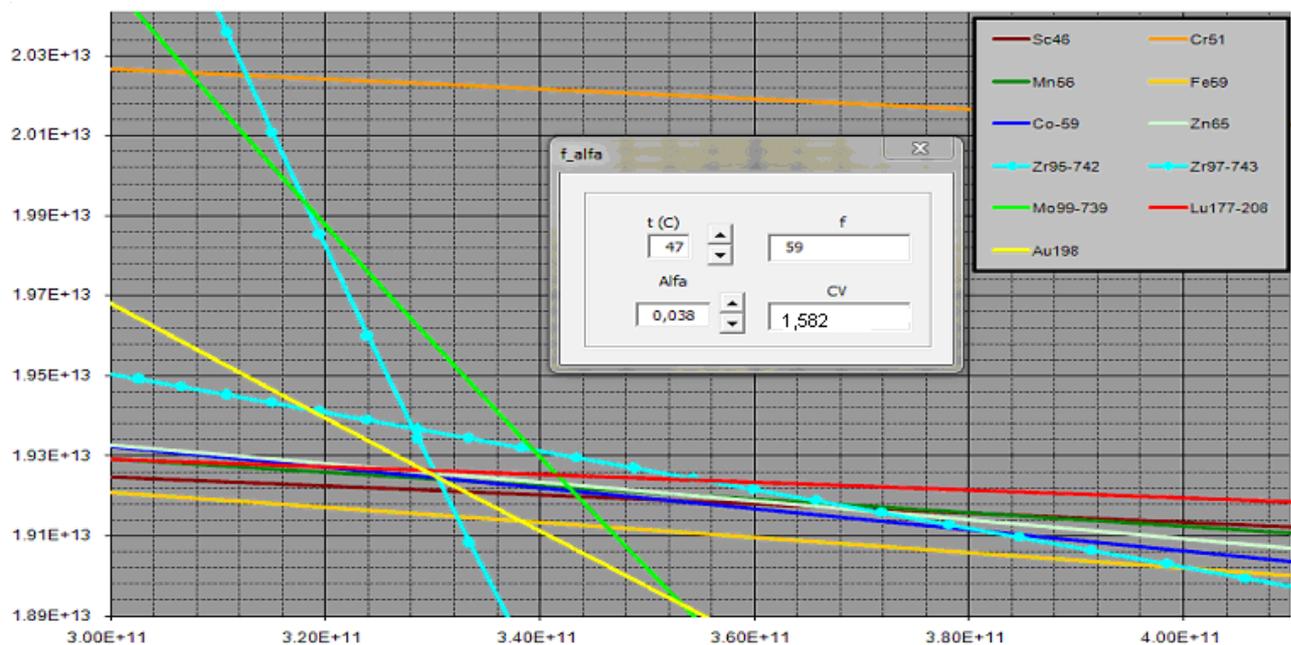


Figura 9: Inconsistencia del ^{51}Cr respecto al grupo de monitores estudiados para $\sigma_0 = 15,1 \text{ b}$ e $I_0 = 8 \text{ b}$. Se obtiene $\phi_t = 2,02 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, 5,2 % mayor que el flujo neutrónico térmico promedio de $1,92 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$

La evaluación de ^{59}Co y ^{55}Mn mostró, según se indica en la Tabla 6, un alto grado en la concordancia como de coincidencia entre los valores k_0 experimentalmente obtenidos, frente a los reportados en literatura y los calculados teóricamente.

El ^{59}Co es usualmente empleado como estándar de flujo en el análisis por activación neutrónica paramétrico, con una incertidumbre relativa para σ_0 de 0,16% [Molnar, 2000]. En tanto, para la medición de la integral de resonancia se usan ^{59}Co y ^{55}Mn como estándares secundarios [Holden, 1993] con una incertidumbre relativa no mayor que 3%.

El ^{59}Fe tiene una composición isotópica ($0,282 \pm 0,004$) %, sumamente baja en comparación con los demás monitores bajo estudio, pero con un error relativo (1,4%) considerable para los estándares buscados. El comportamiento de la función $\phi_t = f(\phi_e)$ del ^{59}Fe indicó sistemáticamente valores menores de ϕ_t , contribuyendo negativamente en la precisión del método expresada como coeficiente de variación (CV).

El ^{65}Zn , con los valores de σ_0 e I_0 según De Corte y Simonits (2003) presenta la mejor concordancia y una óptima comparación del valor k_0 obtenido frente al teórico y al reportado por literatura (ver tabla 6). Sin embargo, reemplazando los valores de σ_0 e I_0 por los dados según Mughabghab (2003), disminuye la concordancia a 0,692. Se observa en la figura 11 el comportamiento no consistente del ^{65}Zn .

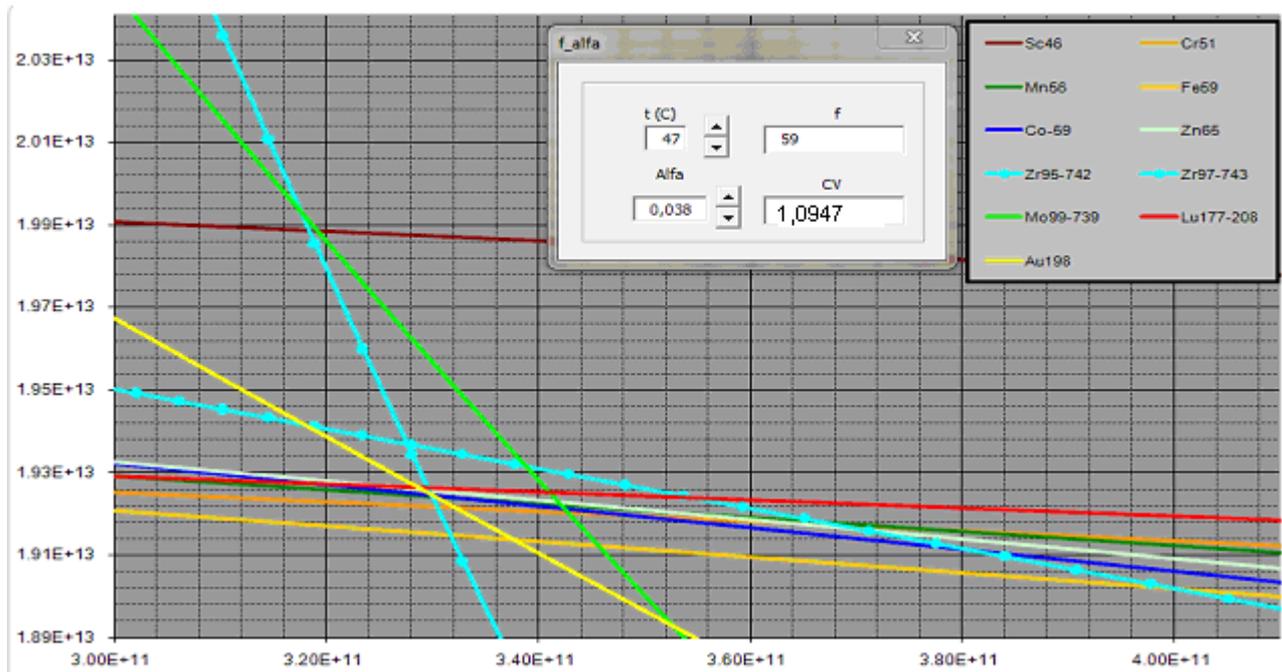


Figura 10: Comportamiento del ^{46}Sc frente a grupo de monitores evaluados considerando σ_0 y I_0 según [De Corte y Simonits, 2003]; se determina un $\phi_{t(\text{Sc})} = 1,988 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 3,6% mayor que el flujo neutrónico térmico promedio calculado

No deja de sorprender la significativa variación en el valor σ_0 para ^{64}Zn con respecto al valor anteriormente establecido por el mismo autor. Mughabghab (1981) da como valor para $\sigma_0 = (0,76 \pm 0,2) \text{ b}$, que coincide con el calculado por Dorval *et al* (2008), $(0,76 \pm 0,03) \text{ b}$, pero distante del valor actualizado $\sigma_0 = (1,1 \pm 0,1) \text{ b}$ según Mughabghab (2003). Si bien dicho valor es inconsistente, tal como se muestra en figura 12, el punto relevante es la falta de consenso en cuanto al valor generado, lo que crea el entorno propicio para la aplicación de la metodología implementada.

Al reemplazar los datos de σ_0 y I_0 por los sugeridos por Mughabghab (2003), la función $\phi_t = f(\phi_e)$ de ^{95}Zr se desvía del punto de intersección, tal como se observa en la figura 13, estimándose en 3% la discrepancia respecto al mismo.

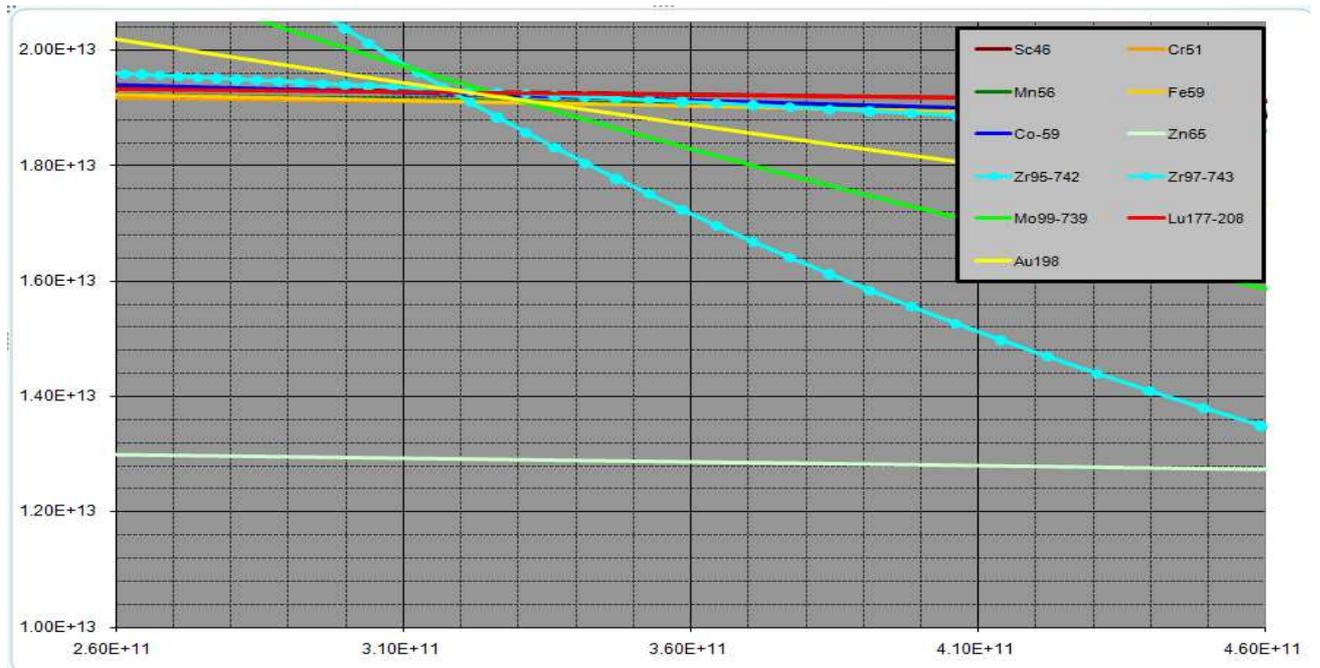


Figura 11. Comportamiento del ^{65}Zn para cuando $\sigma_0 = 1,1 \text{ b}$ y $I_0 = 1,45 \text{ b}$ según Mughabghab (2003)

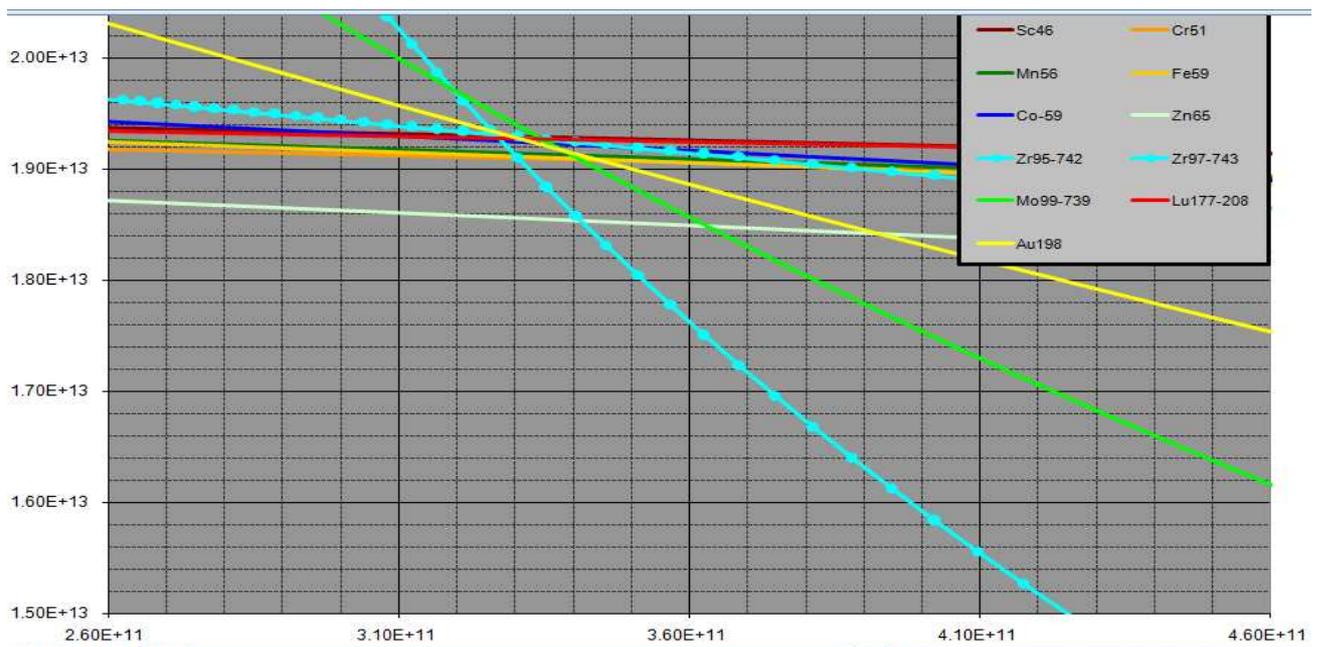


Figura 12: Comportamiento del ^{65}Zn con $\sigma_0 = 0,76 \text{ b}$ e $I_0 = 1,45 \text{ b}$ según Mughabghab (1981). Concordancia = 0,962, a pesar de tener el mismo valor de Q_0 respecto a los datos según De Corte y Simonits (2003).

No obstante, la evaluación realizada por Trkov (2002) reveló consistencia bastante buena entre las bases de datos de las referencias Mughabghab (2003), De Corte y Simonits (2003) y la manejada por WPEC (Working Party on Evaluation Co-operation, subgrupo-23, IAEA) para los valores de σ_0 , tanto para ^{94}Zr y ^{96}Zr , aunque encontró diferencias significativas para los valores

de Q_0 , especialmente para el ^{94}Zr , 19,4% con relación al valor dado por De Corte y Simonits (2003).

Sin embargo, utilizar el ^{94}Zr como monitor de la componente térmica, tal como lo sugieren Simonits *et al* (1976) no sería lo más apropiado si se considera la contribución epitérmica inducida, según lo observado en tabla 7, en comparación de los monitores térmicos convencionales. Debe recordarse además que el valor extremo de su energía efectiva de resonancia hace incierta la validez de la aproximación $\bar{E}_r^{-\alpha}$ [De Corte, 2001].

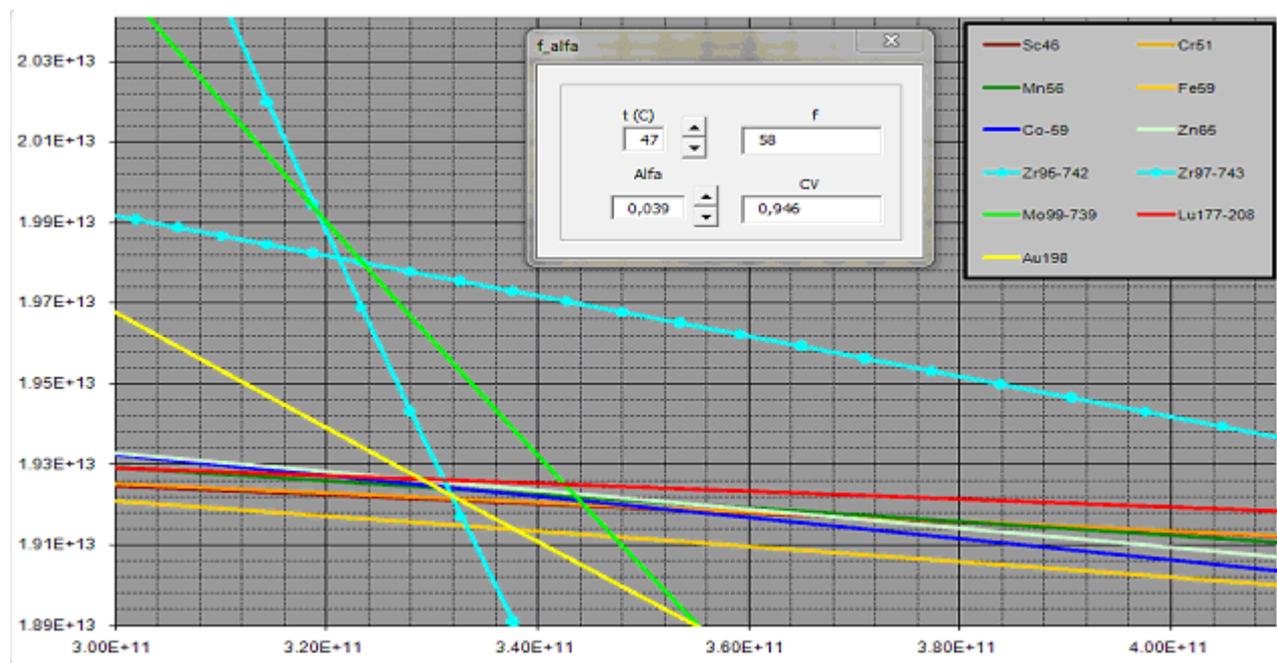


Figura 13: Comportamiento del ^{95}Zr asumiendo $\sigma_0 = 0,0499 \text{ b}$ y $I_0 = 0,27 \text{ b}$ según Mughabghab (2003)

3.2.2 Monitores de Q_0 Intermedio ($10 < Q_0 < 30$)

El ^{197}Au presenta una alta precisión relativa, tanto en sus parámetros críticos, σ_0 e I_0 , como en sus restantes constantes nucleares. Es considerado como estándar de flujo en activación neutrónica Molnar (2000), siendo empleado también como estándar primario para las mediciones de la integral de resonancia [Holden,1993].

Su perfil metrológico lo hace viable como comparador analítico en el análisis por activación neutrónica paramétrico, aunque su dependencia del parámetro α y el efecto de quemado en irradiaciones de alta fluencia neutrónica justifican la búsqueda de un comparador alternativo.

Según la tabla 7, la contribución epitérmica en su actividad inducida es de sólo 20,7%, lo que lo

hace un monitor poco apropiado para evaluar la componente epitérmica para relaciones de flujo térmico a epitérmico relativamente altas.

3.2.3 Monitores de Alto Q_0 (> 30)

Tal como se observa en todas las figuras expuestas, el comportamiento de la función $\phi_t = f(\phi_e)$ del ^{99}Mo mostró una diferencia sistemática respecto al punto de intersección aceptado. Tal diferencia se encuentra en el rango de incertidumbre de las variables experimentales y los datos nucleares.

La revisión bibliográfica hecha por El Abd (2010) muestra un rango de variación desde 0,12 b hasta 0,145 b para σ_0 , en tanto para I_0 es aún mayor la dispersión: desde 4,72 b hasta 8,2 b. Este grado de dispersión de los valores de σ_0 e I_0 indica claramente la necesidad de mejorar la calidad de la determinación, especialmente la referente a σ_0 .

A pesar del nivel de concordancia observado, el ^{99}Mo se presenta como un adecuado monitor de la componente epitérmica. Su valor de $Q_0 = 50,36$ lo hace bastante atractivo para ser considerado como tal, dado que posee una mayor contribución epitérmica en su actividad inducida total (41,7%) frente a la del ^{198}Au (20,7%) ofreciendo por otro lado una respuesta más estable a la dada por ^{97}Zr - $^{97\text{m}}\text{Nb}$, muy sensible a una eventual variación de α .

En la figura 14 se observa el comportamiento de los diferentes monitores sin considerar la participación del binomio ^{94}Zr - ^{96}Zr . Se obtuvo una mejor precisión de ajuste expresado como $\text{CV} = 0,2593$ con valores para f y α similares a los obtenidos inicialmente.

La importancia del ^{96}Zr como monitor de flujo epitérmico reside en el alto valor de Q_0 para la reacción $^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97}\text{Zr}$. Según Lin *et al* (2009), al irradiar un monitor de Zr, incluso en una posición con $f \leq 50$, más del 83% de la actividad inducida procede de neutrones epitérmicos. Este resultado concuerda con lo calculado (79%, según tabla 7) para las condiciones observadas de $f = 58$ y $\alpha = 0,038$.

A pesar de los datos aparentemente favorables, la alta actividad relativa generada por la componente epitérmica torna al ^{96}Zr muy susceptible a eventuales variaciones del parámetro α ; a esto se suma el hecho de tener un valor para $\sigma_0 = 0,02$ b, no adecuado para bajas tasas de fluencia neutrónica. No está de más recordar lo mencionado por De Corte (2001) acerca de la continua reevaluación del valor Q_0 para la reacción $^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97}\text{Zr}$, debido a la dificultad en la determinación segura de sus datos nucleares por el alto valor de Q_0 .

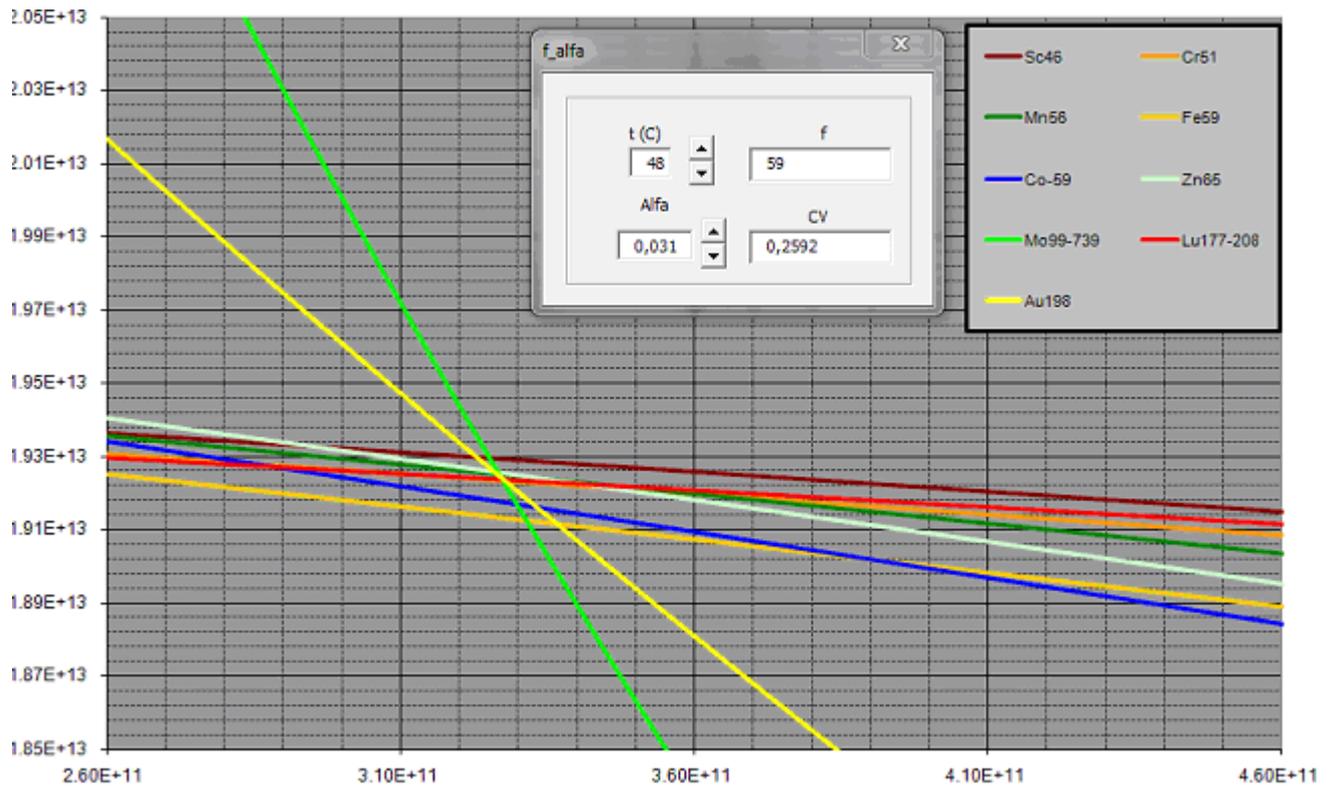


Figura 14: Determinación simultánea de f , α y T_n sin participación de Zr como monitor. Parámetros determinados: $f = 59 \pm 2$, $\alpha = 0,031 \pm 0,008$ y $T_n = 48 \pm 2$. Flujo neutrónico promedio para 10 MW de potencia: $\phi_t = (1,924 \pm 0.004) 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ y $\phi_e = (3,26 \pm 0.13) 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

3.2.4 Monitores de Temperatura Neutrónica

Con el fin de completar la caracterización del flujo neutrónico es necesario determinar el parámetro de temperatura neutrónica, cuya evaluación se basa en la reacción $^{176}\text{Lu}(n,\gamma)^{177}\text{Lu}$.

En las mediciones efectuadas en este trabajo, se obtuvo inicialmente un valor de k_0 mayor que 6% respecto al reportado en la literatura. Tal diferencia radica en el valor adoptado de la intensidad de emisión. Según LNHB (2011) se reporta para $\gamma = 0,1038 \pm 0,0007$ calculado por Schötzig *et al* (2001), mientras el valor $\gamma = 0,110 \pm 0,004$ dado por la referencia De Corte y Simonits (2003) procede de D.C. Kocher (1981) mencionada por De Corte *et al* (1987).

Reemplazando los valores para σ_0 , I_0 e γ según la referencia De Corte y Simonits (2003), se calculó una temperatura neutrónica, $T_n = 28^\circ\text{C}$, un resultado distante a $T_n = 45^\circ\text{C}$ encontrado para cuando se empleó los valores según las referencias Mughabghab (2003) y LNHB (2011).

Con el objeto de solucionar la disyuntiva creada por los diferentes resultados obtenidos de T_n , se evaluó la concordancia, considerando los valores para σ_0 , I_0 e γ según las referencias Mughabghab, 2003 y LNHB (2011), siendo similar a la teóricamente calculada según tabla 6.

Dado que el valor de σ_0 es semejante en ambas referencias y la influencia por diferencia del parámetro I_0 es mínima, cabe inferir entonces que el parámetro preponderante es la intensidad de emisión (γ).

Por otro lado, el registro de parámetros termohidráulicos del reactor RP-10 en el día de la irradiación indicó una temperatura de salida del moderador de 38,5°C, estando el punto de lectura algo distante de la posición de irradiación. Si bien se espera que la temperatura neutrónica sea ligeramente mayor que la del moderador, lo que haría consistente al valor obtenido de $T_n = 45^\circ\text{C}$, se decidió corroborar tal resultado aplicando el método de determinación absoluta de T_n propuesto por De Corte *et al* (1993).

Tal método, basado en la coirradiación de lutecio y de un monitor “1/v” necesita conocer previamente el valor del índice espectral, que se determinó siguiendo el método de monitor bi-isotópico desnudo. Para tal fin se usaron los datos experimentales de ^{45}Sc como monitor 1/v y de ^{94}Zr y ^{96}Zr como monitor bi-isotópico.

Se obtuvo para el índice espectral modificado, descrito como $r(\alpha)(T_n/T_0)^{1/2}$, un valor igual a 0,0167, con el que posteriormente se calculó el valor de $g_{Lu}(T_n) = 1,894$ que corresponde a un valor de $T_n = 49,6^\circ\text{C}$ según tablas de $g(t)$ dada por Westcott.

Por tanto, considerando la concordancia obtenida, los datos termohidráulicos observados y el valor calculado de temperatura neutrónica vía método absoluto, el valor dado por LNHB (2011) para la intensidad de emisión gamma del pico de 208,4 keV del ^{177}Lu parece ser el más aceptable.

Capítulo 3.3: Conformación de un Grupo de Monitores para el Estudio Integral del Flujo y el Espectro Neutrónico

Uno de los objetivos planteados en el presente trabajo es la formación de grupos de monitores capaces de caracterizar en forma simultánea los parámetros críticos del flujo neutrónico con la mayor exactitud y la menor incertidumbre posible.

Los conjuntos de monitores para la determinación de f , α , ϕ_t , ϕ_e y T_n se conformaron considerando el criterio básico de contar con un monitor “1/v” y un monitor cuya contribución epitérmica en su actividad inducida fuera mayoritaria, incluyendo al ^{197}Au para la determinación iterativa del parámetro α y al lutecio para la determinación de la temperatura neutrónica.

Los resultados de la evaluación de los diferentes grupos de monitores se aprecian en la tabla 8; se considera una incertidumbre total de 2%. El comportamiento de cada uno de los grupos

evaluados se puede observar en las figuras correspondientes, 15a a 15e.

Tabla 8: Parámetros característicos del flujo y espectro neutrónico según grupos de monitores elegidos

| Conjunto de Monitores | $f \pm 1s$ | $\alpha \pm 1s$ | CV (%) | $\phi_t \times 10^{-13} \pm 1s$ (n cm ⁻² s ⁻¹) | $\phi_e \times 10^{-11} \pm 1s$ (n cm ⁻² s ⁻¹) | T _n (°C) |
|---------------------------------------------------------------------------|------------|-----------------|--------|--------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------|---------------------|
| ¹⁹⁸ Au- ⁹⁵ Zr- ^{97m} Nb- ¹⁷⁷ Lu | 58 ± 3 | 0,039 ± 0,010 | 0,2692 | 1,926 ± 0,008 | 3,32 ± 0,14 | 45 |
| ¹⁹⁸ Au- ⁹⁹ Mo- ⁶⁰ Co- ¹⁷⁷ Lu | 58 ± 3 | 0,031 ± 0,010 | 0,0405 | 1,919 ± 0,008 | 3,31 ± 0,14 | 47 |
| ¹⁹⁸ Au- ⁶⁰ Co- ^{97m} Nb- ¹⁷⁷ Lu | 57 ± 3 | 0,042 ± 0,012 | 0,1806 | 1,923 ± 0,008 | 3,37 ± 0,16 | 45 |
| ¹⁹⁸ Au- ⁵¹ Cr- ⁹⁹ Mo- ¹⁷⁷ Lu | 62 ± 3 | 0,021 ± 0,016 | 0,0560 | 1,937 ± 0,009 | 3,13 ± 0,14 | 47 |
| ¹⁹⁸ Au- ⁶⁵ Zn- ^{97m} Nb- ¹⁷⁷ Lu | 64 ± 3 | 0,024 ± 0,016 | 0,2868 | 1,939 ± 0,009 | 3,03 ± 0,13 | 45 |

De acuerdo con los resultados obtenidos, los conjuntos de monitores conformados por ¹⁹⁸Au-⁵¹Cr-⁹⁹Mo-¹⁷⁷Lu y ¹⁹⁸Au-⁶⁵Zn-^{97m}Nb-¹⁷⁷Lu presentan ligeras diferencias con respecto a los valores promedio obtenidos para los parámetros bajo estudio (ver figura 8).

El valor del flujo neutrónico térmico dado por estos dos grupos es ligeramente mayor, considerando el rango de incertidumbre calculado, que el promedio general obtenido $\phi_t = (1,924 \pm 0.005)10^{13}$ n.cm⁻².s⁻¹ pero con una marcada diferencia en cuanto al valor de flujo neutrónico epitérmico promedio $\phi_e = (3,32 \pm 0,14)10^{11}$ n.cm⁻².s⁻¹.

Los primeros tres conjuntos de monitores en la tabla 8 presentan resultados similares para los parámetros críticos evaluados, con una buena concordancia con respecto a los flujos neutrónicos promedio tanto térmico como epitérmico.

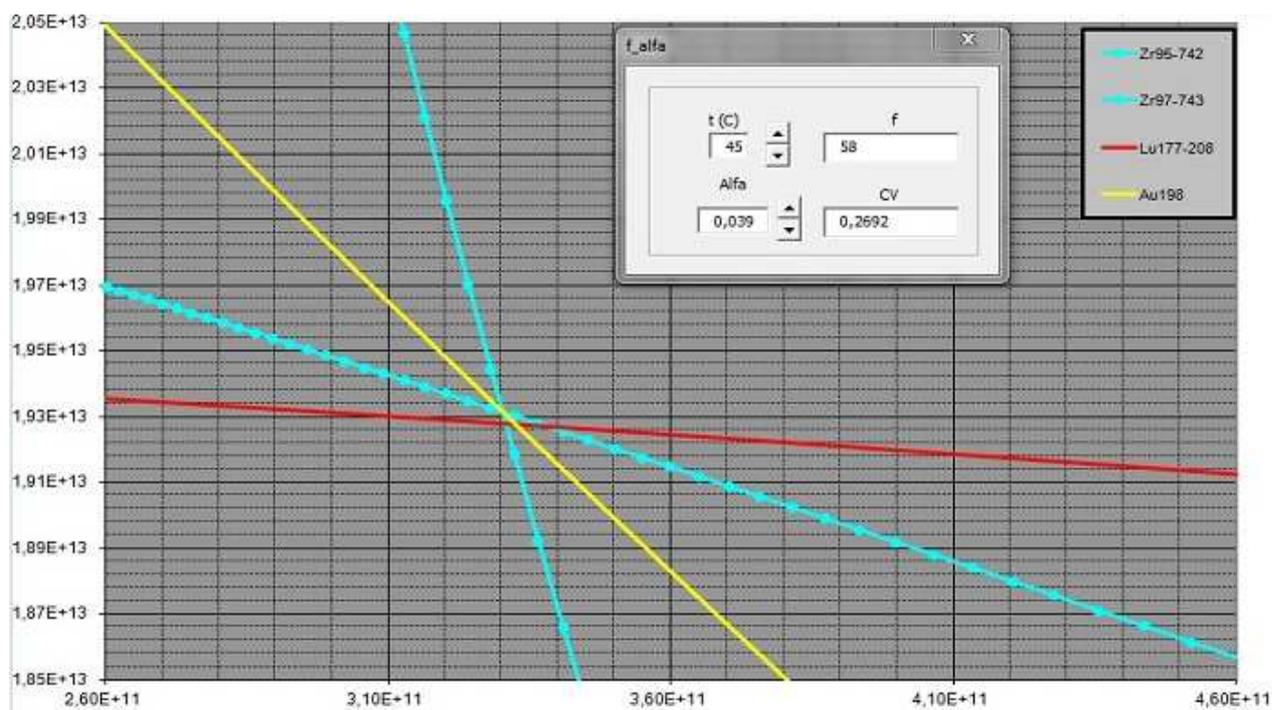


Figura 15a: Comportamiento del grupo ^{198}Au - ^{95}Zr - $^{97\text{m}}\text{Nb}$ - ^{177}Lu para la caracterización del flujo y el espectro neutrónico

El grupo ^{198}Au - ^{95}Zr - $^{97\text{m}}\text{Nb}$ - ^{177}Lu (figura 15a) constituye el usualmente empleado en la determinación de los parámetros f y α para la caracterización del espectro neutrónico. Se observa que el ángulo de cruce es favorable al incluir el monitor de Lu. La función de $\phi_t = f(\phi_e)$ del ^{177}Lu , al tener un comportamiento similar al del ^{46}Sc , posibilita su empleo como monitor térmico, además de brindar la posibilidad de determinar por iteraciones sucesivas la temperatura neutrónica.

Los valores obtenidos, tanto para f como para α , se encuentran dentro del promedio general observado. Al aumentar la incertidumbre total fijada de 2% a 5%, se generó una fuerte variación de los parámetros f y, especialmente de α , concordante con la incertidumbre establecida. Para este último caso, los valores encontrados para los parámetros evaluados fueron $f = 63 \pm 7$, $\alpha = 0,029 \pm 0,025$ y $T_n = 36$ °C. No obstante, el valor de CV mostró mínima variación, independiente de la incertidumbre asignada.

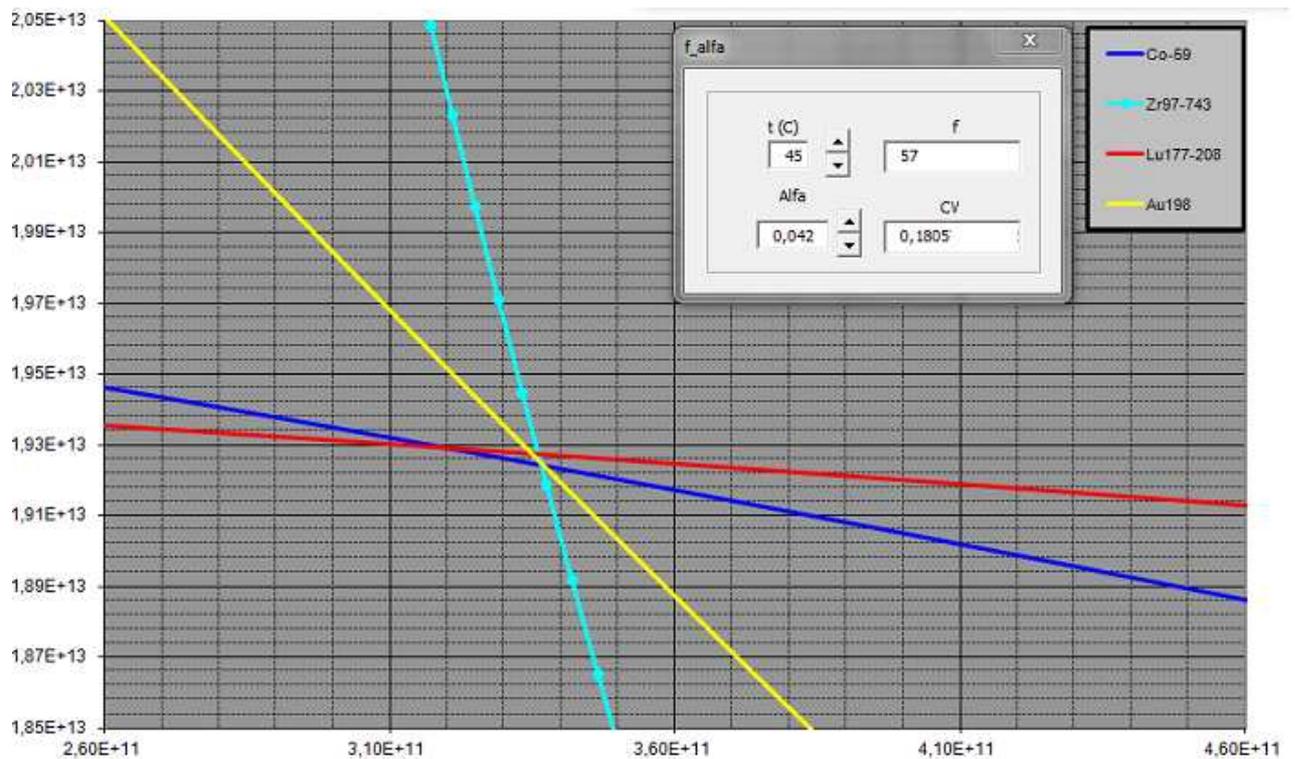


Figura 15b: Comportamiento del grupo ^{198}Au - ^{60}Co - $^{97\text{m}}\text{Nb}$ - ^{177}Lu para caracterización del flujo y el espectro neutrónico

El grupo ^{198}Au - ^{60}Co - $^{97\text{m}}\text{Nb}$ - ^{177}Lu ofrece también un ángulo de cruce adecuado, pero sin mucha ganancia en los monitores térmicos, dada la baja diferencia relativa de sus pendientes. El valor CV para este grupo de monitores es uno de los mayores entre los evaluados, pero los resultados obtenidos para los parámetros bajo estudio son similares a los alcanzados por los demás grupos.

Un detalle a mejorar sería la modificación del valor de temperatura neutrónica a opción decimal, dado que la presentación gráfica de la recta de ^{177}Lu no es lo suficientemente adecuada para el ajuste correspondiente con los demás monitores. Sin embargo, cabe recordar que la incertidumbre establecida para la temperatura neutrónica es $\pm 2^\circ\text{C}$, lo que por ahora hace poco viable tal modificación.

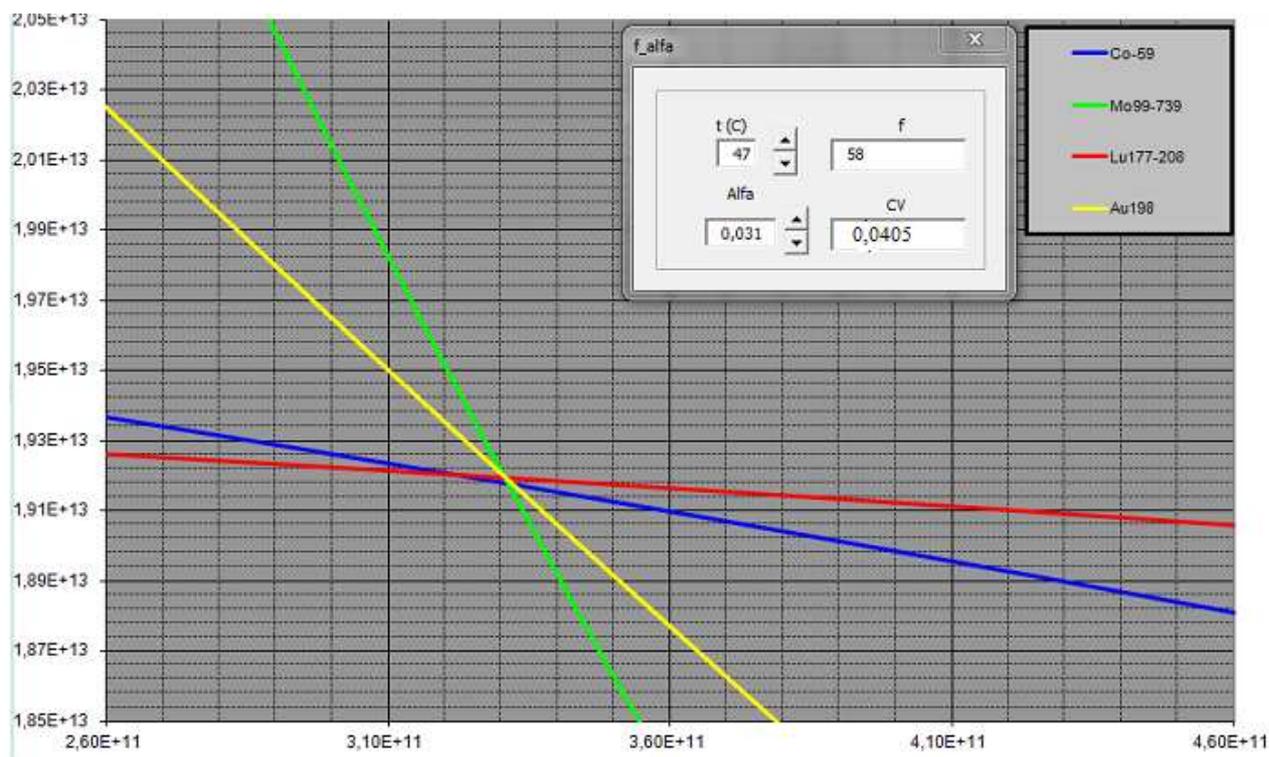


Figura 15c: Comportamiento del grupo ^{198}Au - ^{60}Co - ^{99}Mo - ^{177}Lu para la caracterización del flujo y el espectro neutrónico

El grupo de monitores formado por ^{198}Au - ^{60}Co - ^{99}Mo - ^{177}Lu mostró uno de los mejores ajustes observados, coincidiendo la intersección de los monitores térmicos, a pesar de la poca diferencia en sus pendientes, con el ^{198}Au y ^{99}Mo . Los valores de los parámetros calculados son muy similares a los obtenidos por los demás grupos, aunque cabe indicar que el ángulo de intersección no es tan conveniente, comparando al presentado por el conjunto ^{198}Au - ^{95}Zr - $^{97\text{m}}\text{Nb}$ - ^{177}Lu .

El ajuste CV para el grupo de monitores compuesto por ^{198}Au - ^{51}Cr - ^{99}Mo - ^{177}Lu es bueno, pero la apenas apreciable diferencia de pendiente entre ^{177}Lu y ^{51}Cr resta validez al punto de intersección obtenido

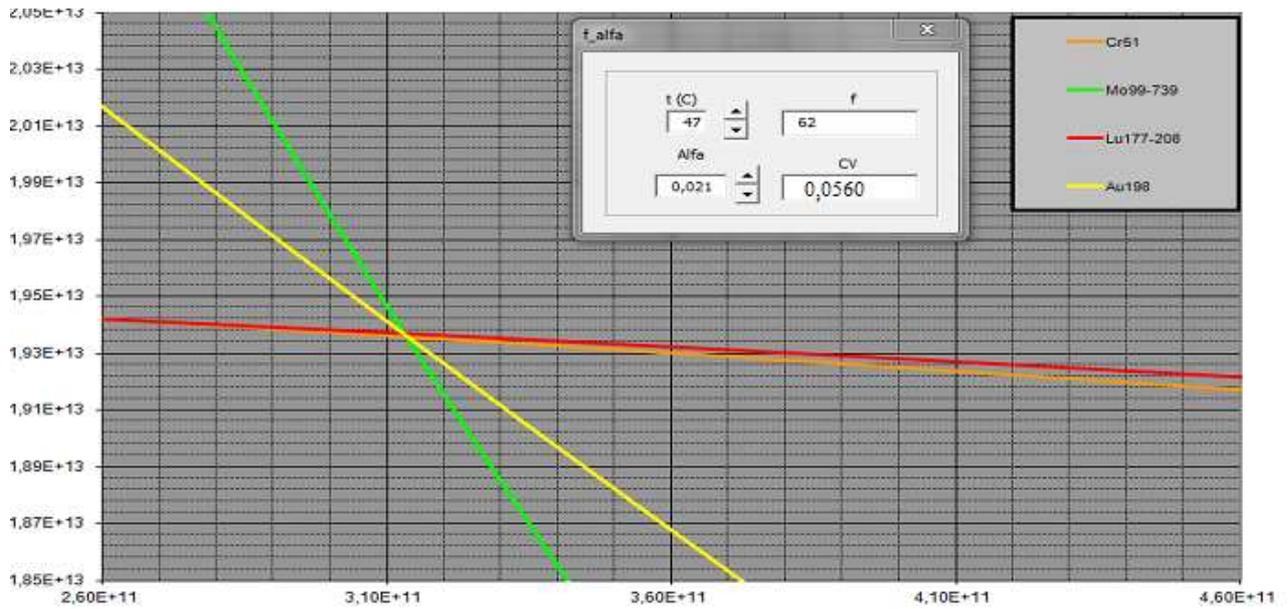


Figura 15d: Comportamiento del grupo de monitores: ^{198}Au - ^{51}Cr - ^{99}Mo - ^{177}Lu para la caracterización del flujo y el espectro neutrónico

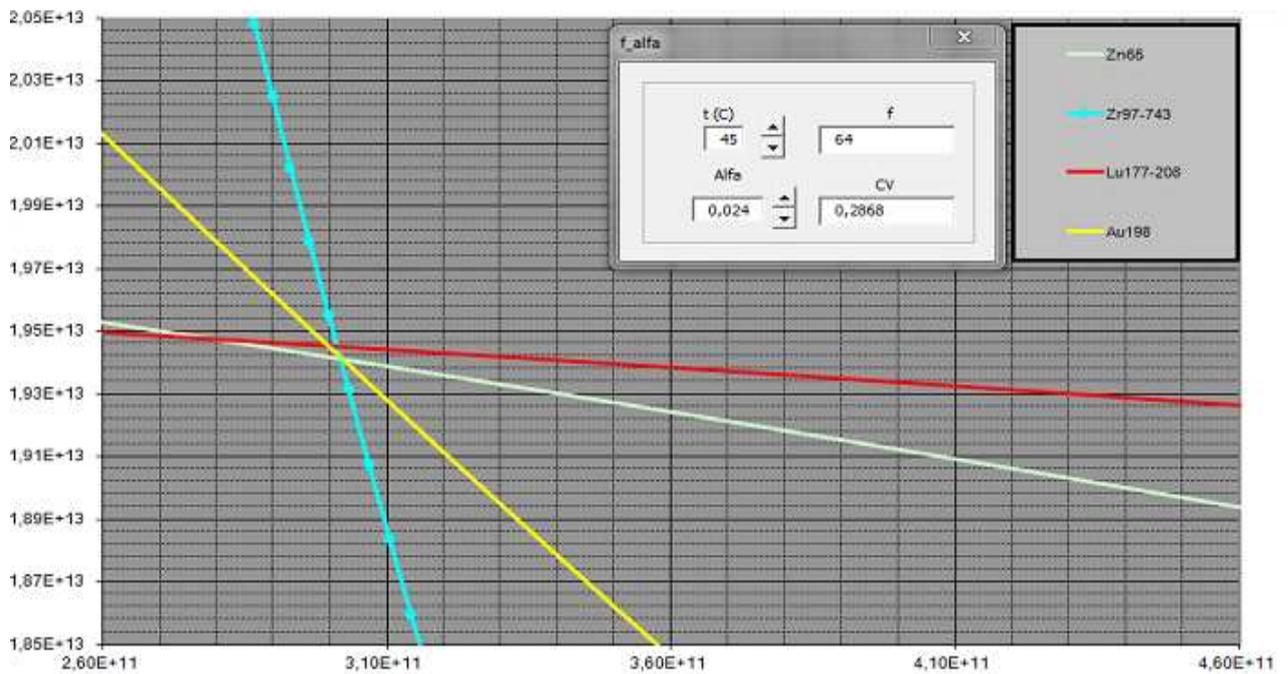


Figura 15e: Comportamiento del grupo de monitores: ^{198}Au - ^{65}Zn - $^{97\text{m}}\text{Nb}$ - ^{177}Lu para la caracterización del flujo y el espectro neutrónico

El grupo de monitores conformado por ^{198}Au - ^{65}Zn - $^{97\text{m}}\text{Nb}$ - ^{177}Lu mostró las mayores diferencias entre los grupos evaluados con respecto a los valores obtenidos para los parámetros f y α , indicando asimismo el mayor error por ajuste CV. Como en el caso anterior, el ^{65}Zn se presenta

como una buena opción

Capítulo 3.4: Evaluación de los parámetros β y α según trayectoria de estado de reactividad

Como respuesta al interrogante planteado en el capítulo 1.3.2 sobre una probable influencia en los parámetros β y α según la trayectoria seguida para alcanzar un estado de reactividad, se seleccionó el conjunto de monitores que se indica en la tabla 9.

Se irradiaron 2 grupos de monitores en la posición A1 del núcleo del reactor RP-10, bajo una misma configuración e idéntico tiempo de irradiación, siendo 0,32 MW la potencia empleada para ambos casos. Un primer grupo se irradió antes de la operación de rutina a 10 MW de potencia y el otro apenas al finalizar la misma, recalcando que la operación a 10 MW se realizó en dos días de forma fraccionada y totalizando 15 horas de irradiación.

Tabla 9: Monitores utilizados para evaluar la influencia del veneno neutrónico en un posible endurecimiento del espectro neutrónico. Irradiación a 0,32 MW en posición A1 del núcleo del reactor RP-10 (configuración 34); tiempo de irradiación: 3600 s, medición en detector ORTEC GEM70P4 de 70% de eficiencia relativa a 185 mm de distancia.

| Monitor | Procedencia | Masa A (µg) | Masa B (µg) | Radionucleido | Energía (keV) | Area A | Area B |
|---------|-------------------------|-------------|-------------|-------------------|---------------|--------|--------|
| Au | IRMM-530R (Al-0,1% Au) | 11,87 | 11,95 | ¹⁹⁷ Au | 411,8 | 101900 | 151000 |
| Lu | Al-Lu 2,17% | 17,79 | 22,79 | ¹⁷⁷ Lu | 208,36 | 58800 | 60040 |
| Co | IRMM-527RA (Al-0,1% Co) | 11,74 | 12,73 | ⁶⁰ Co | 1173,2 | 19900 | 17700 |
| | | | | | 1332,5 | 17930 | 16100 |
| Zr | Alfa Johnson | 21008 | 42924 | ⁹⁵ Zr | 724,5 | 46900 | 93300 |
| | | | | ⁹⁵ Zr | 756,73 | 56100 | 111600 |
| | | | | ^{97m} Nb | 743,2 | 93500 | 29200 |
| Fe | IRMM-524 A (99,99%) | 36289 | 40208 | ⁵⁹ Fe | 1099 | 61400 | 34900 |
| Mo | MoO ₃ | 68246 | 67116 | ⁹⁹ Mo | 739,5 | 105100 | 57400 |

A: monitores irradiados a 0,32 MW antes de operación de rutina de 10 MW

B: monitores irradiados a 0,32 MW luego de 2 días de operación a 10 MW

Los resultados obtenidos se presentan en la tabla 10, conjuntamente con los del flujo neutrónico rápido, para cuya determinación se empleó la reacción umbral ⁵⁴Fe(n,p)⁵⁴Mn.

Tabla 10: Caracterización del flujo neutrónico en posición A1 del núcleo del reactor RP-10 para una potencia de 0,32 MW según trayectoria seguida para alcanzar estado de reactividad indicado

| Estado de reactividad | f | α | T_n | Φ_t (n cm ⁻² s ⁻¹) | Φ_e (n cm ⁻² s ⁻¹) | Φ_r (n cm ⁻² s ⁻¹) |
|--------------------------------------------------|--------|---------------|-------|---------------------------------------------------|---------------------------------------------------|---------------------------------------------------|
| Irradiación a 0,32 MW antes de operación a 10 MW | 51 ± 2 | 0,060 ± 0,017 | 37 | (7,83 ± 0,03)10 ¹¹ | (1,53 ± 0,06)10 ¹⁰ | (5,5 ± 0,2) 10 ¹⁰ |
| Irradiación a 0,32 MW luego de operación a 10 MW | 50 ± 2 | 0,062 ± 0,011 | 40 | (6,20 ± 0,03)10 ¹¹ | (1,24 ± 0,06)10 ¹⁰ | (4,3 ± 0,2)10 ¹⁰ |

No se observó ningún cambio significativo en los parámetros f y α , aunque se produjo una reducción relativa del 26% en el flujo neutrónico, como consecuencia del exceso de veneno neutrónico producido luego de dos días de irradiación a 10 MW de potencia. Ello obligó a una mayor inserción de la barra de control, con el fin de mantener el nivel de corriente inicial ($0,1 \times 10^{-5}$ A) lo que supuso una reducción de la potencia térmica en correlación con la disminución de flujo neutrónico.

Sin embargo, la posición de irradiación empleada se encuentra en la periferia de la grilla del núcleo, por lo que una probable distorsión del espectro neutrónico podría no ser evidente, tal como lo mencionan Lin *et al* (2009). Ante tal perspectiva, queda pendiente para trabajos futuros realizar la evaluación en posiciones más cercanas al núcleo, o de preferencia “in core”.

DISCUSIÓN GENERAL

Los parámetros característicos del flujo neutrónico fueron determinados en forma directa, exceptuando α , cuya determinación fue realizada de modo iterativo, sin necesidad de considerar soluciones implícitas tal como las que siguen los métodos tradicionales para el caso de irradiación de monitores desnudos. Esta perspectiva de cálculo no ortodoxa representa la posibilidad de obtener valores de α cercanos a cero sin llegar a sufrir indeterminación por el elevado error involucrado.

Para el cálculo de la incertidumbre de los parámetros de f y α mediante el código numérico de Montecarlo, se fijó para la variable compuesta de la actividad inducida una incertidumbre total de 2 %, considerando un intervalo de confianza del 95 % ($k = 2$). Esta condición implica medir las áreas de los picos de energía plena de interés con una incertidumbre relativa máxima del 0,5 %, con el fin de asegurar la exactitud del método. Una mayor incertidumbre total asignada conllevaría una mayor dispersión de los monitores, tal como se aprecia en la figura 16.

Al fijar el criterio de una incertidumbre total de 5 %, los valores de los parámetros determinados fueron: $f = 54 \pm 5$, $\alpha = 0,047 \pm 0,024$, $T_n = 52^\circ\text{C}$, $\phi_e = (3,57 \pm 0,35) 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ y $\phi_t = (1,93 \pm 0,01) 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, con un CV igual a 1,074.

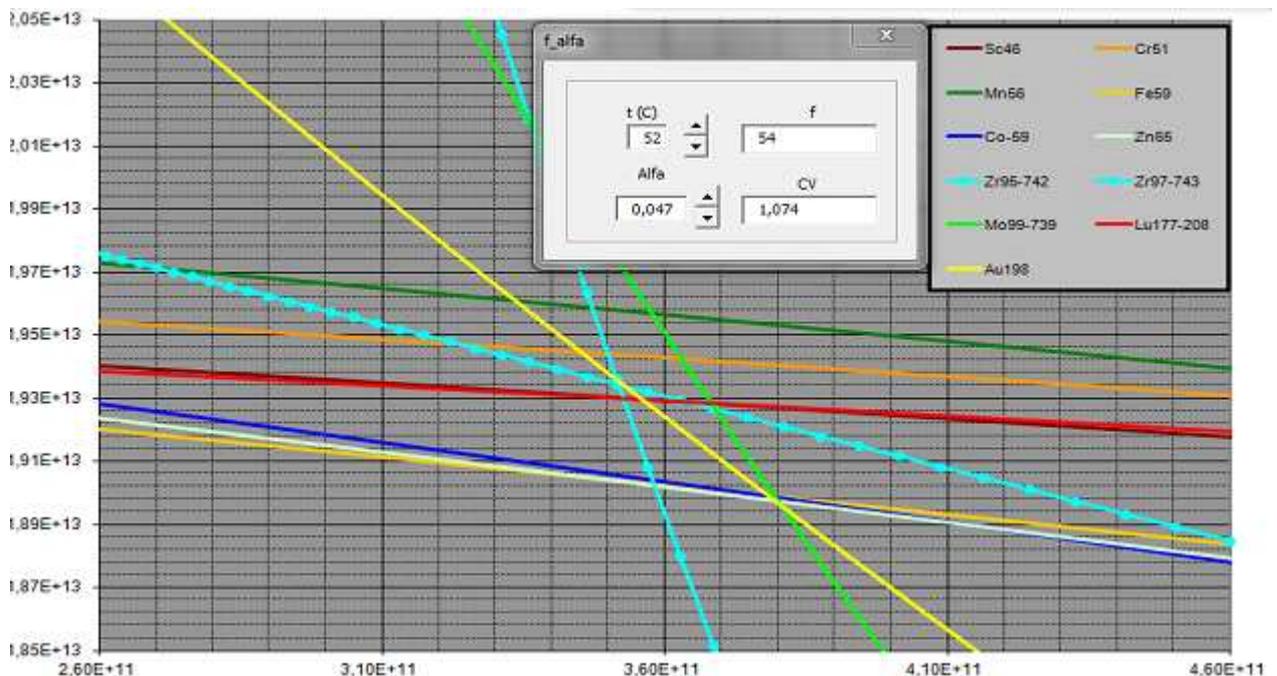


Figura 16: Comportamiento del conjunto de monitores evaluados considerando una incertidumbre total de 5%

Una condición básica del análisis es que el flujo térmico obtenido se mantenga constante, lo cual se cumple. Sin embargo, se observó una variación del 10% del flujo epitérmico y por consiguiente del parámetro f . La variación de α es de por sí importante, pero más lo es su incertidumbre.

Los monitores $1/v$ modificaron su posición respecto al gráfico original (figura 8) encontrándose el ^{60}Co y el ^{65}Zn distanciados del punto de intersección. No obstante, se mantuvo el valor medido para el flujo térmico, pero con un aumento en su incertidumbre.

Aquí es importante recordar que, en principio, el punto de intersección fue establecido por el cruce de las funciones $\phi_t = f(\phi_e)$ de ^{198}Au , ^{95}Zr , $^{97\text{m}}\text{Nb}$ y ^{177}Lu con las funciones equivalentes dadas por los monitores térmicos, fundamentalmente por el ^{60}Co , posteriormente, se reemplazó la función de $^{97\text{m}}\text{Nb}$ por la de ^{99}Mo .

La notable diferencia observada por variación de la incertidumbre asignada remarca cuán sensible puede ser la componente epitérmica a las fluctuaciones derivadas por estadística de conteo.

Según indica la tabla 4 (capítulo 2.2), la incertidumbre relativa de los picos de interés evaluados no sobrepasó el 0,40 %. Tal grado de precisión fue alcanzado bajo condiciones operativas que implican largos tiempo de medición y, sobre todo, irradiación bajo una alta fluencia neutrónica de $1,8 \times 10^{16}$ n.cm⁻². En un escenario distinto, como la irradiación a baja potencia (0,32 MW) que es empleada con regularidad para el análisis paramétrico de muestras geológicas, la respuesta de los monitores de Zr y Fe no sería la más adecuada, pues se necesitaría extender el tiempo de medición o modificar la posición de medición a una geometría cercana al detector.

La ventaja analítica de preparar los monitores en solución, en comparación con aquellos empleados en forma de aleación, como el Au, reside no solo en una menor incertidumbre, sino también en manejar cantidades de masa según las condiciones operativas de irradiación y medición y no a la inversa, facilitando así el trabajo de rutina. Esto se observa claramente en el caso del monitor de Co, (tabla 9, capítulo 3.4) donde se empleó aleación Al – 0,1% Co cuya masa restringida obligó a un conteo de 240000 s, con el fin de obtener una incertidumbre de ~ 1 % en el área.

Sin embargo, no puede dejar de reconocerse la practicidad del empleo de monitores metálicos de alta pureza o en aleación. Siguiendo esa perspectiva, resultaría también económico y dosimétricamente conveniente utilizar un monitor multipropósito para la determinación experimental de los parámetros característicos del flujo neutrónico de un reactor, imprescindible

para la estandarización del método del k_0 .

Una primera selección, sobre la base de la calidad de los datos y las constantes nucleares, conduce a ^{59}Co y ^{56}Mn como los monitores más adecuados para la evaluación de la componente térmica, en tanto el ^{64}Zn puede ser considerado en segundo término, no obstante la necesidad de una mejor determinación de su sección eficaz de captura.

La situación cambia al elegir el monitor más adecuado para el estudio de la componente epitérmica, complicándose aún más si se suma la función de comparador, considerando la dependencia del parámetro α y el nivel de incertidumbre de las constantes y los datos nucleares de los monitores propuestos. A esto se suma un detalle importante, no considerado debidamente hasta ahora, que es el relacionado con la influencia de los fotoneutrones en el espectro neutrónico, específicamente en la componente epitérmica.

Koster-Ammerlaan *et al* (2011) evaluaron, mediante código MCNP, versión 1.51, la influencia de los reflectores de berilio en el reactor RID (Reactor Institute Delft, también llamado Delft Hoger Onderwijs Reactor, HOR) de 5 MW de potencia. Los autores citados encontraron que el modelo espectral $1/E^{1+\alpha}$ es válido para neutrones epitérmicos hasta 10 keV en la posición de irradiación "in core". Sin embargo, para energías de neutrones entre 10 keV a 100 keV se observó una notoria desviación del modelo espectral respecto al modelo diseñado, con tendencia a valores negativos en el factor α .

La probable causa de esta desviación estaría en los fotoneutrones epitérmicos y los neutrones rápidos generados por el berilio a partir de las reacciones $^9\text{Be}(\gamma,n)^8\text{Be}$ ($\sigma = 0,8 \text{ mb}$) y $^9\text{Be}(n,2n)^8\text{Be}$ ($\sigma = 0,58 \text{ b}$) respectivamente. Estos neutrones son luego moderados y absorbidos en la zona epitérmica, donde las características del monitor pueden tener influencia directa en la definición del modelo empleado para la descripción del espectro neutrónico.

La influencia de estos fotoneutrones en la evaluación del espectro epitérmico depende del monitor o monitores empleados para detectar dicho espectro. Por ejemplo, tanto el ^{99}Mo como el ^{198}Au tienen energías de resonancia hasta 10 keV, como se observa en las figuras 17 y 18, respectivamente. En cambio, los picos de resonancia del ^{94}Zr (figura 19) están principalmente por encima de los 10 keV, por lo que variaciones en la producción de fotoneutrones por el berilio afectaría la activación del ^{95}Zr .

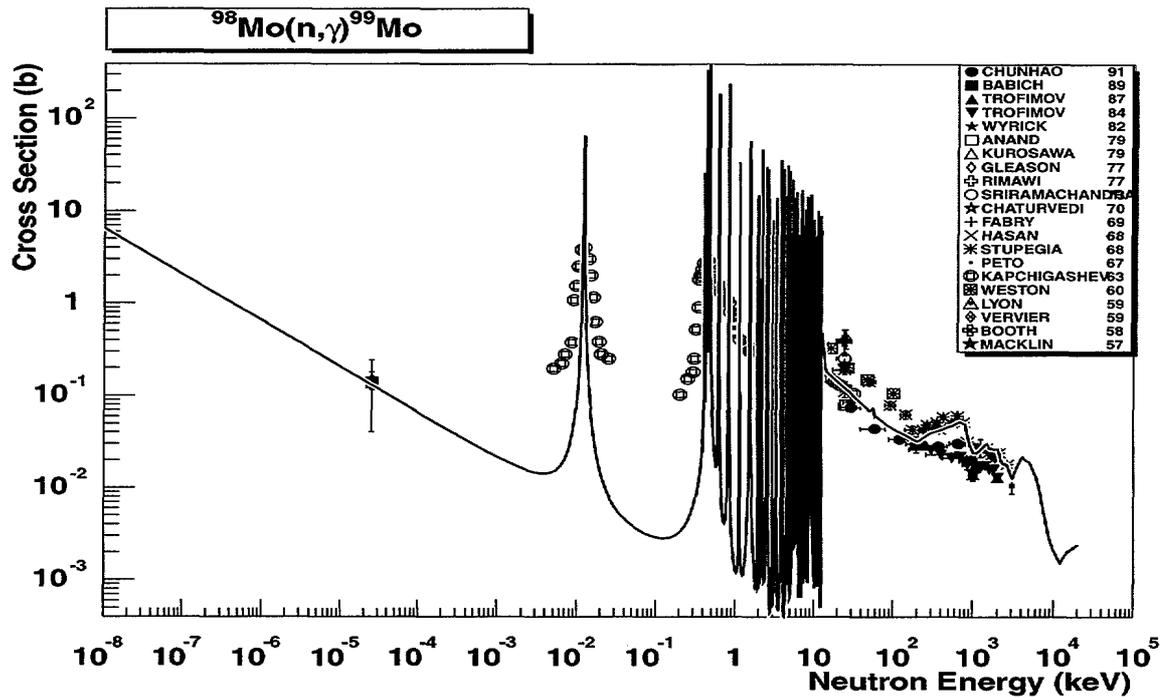


Figura 17: Función de excitación para la reacción de captura sobre ^{98}Mo [IAEA TECDOC-1285 (2002)]. Se observa que los picos de resonancia principales apenas sobrepasan los 10 keV

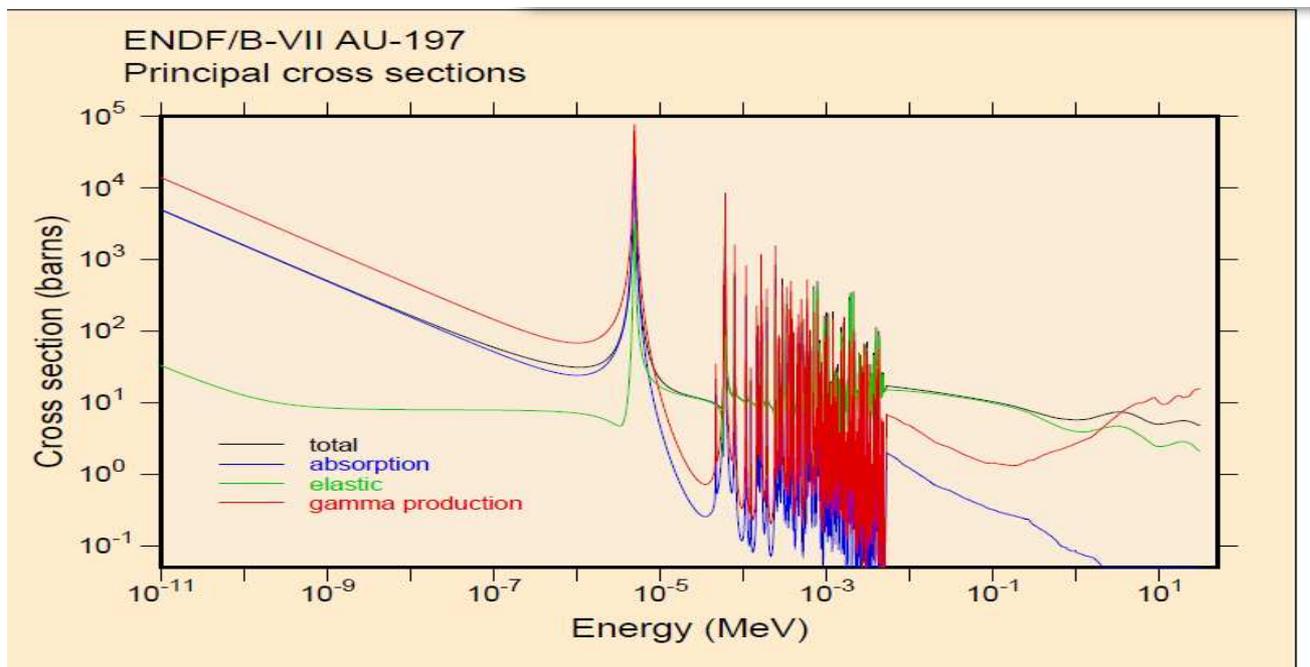


Figura 18: Función de excitación para la reacción de captura sobre ^{197}Au [Evaluated Nuclear Data File (ENDF) dirección internet: www-nds.iaea.org/endl] Se observa que los picos de resonancia no superan los 10 keV

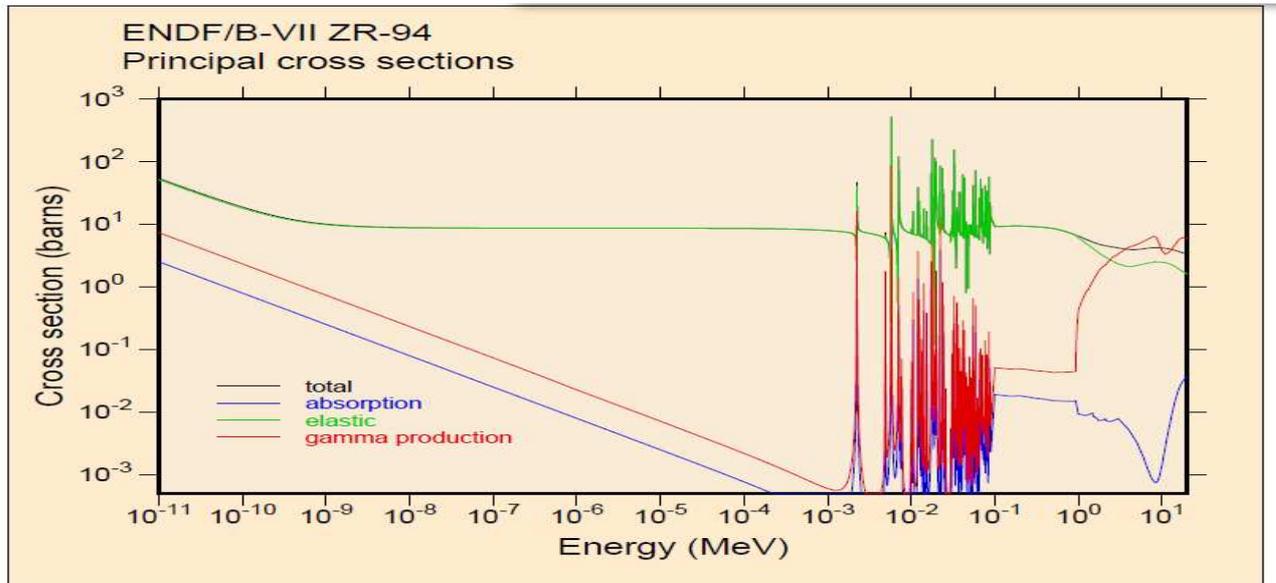


Figura 19: Función de excitación para la reacción de captura sobre ^{94}Zr [Evaluated Nuclear Data File (ENDF) dirección internet: www-nds.iaea.org/endl], donde se muestran los picos de resonancia en un rango que abarca inclusive hasta los 100 keV.

Sin embargo, el efecto mencionado en el párrafo anterior tendría un mayor impacto en ^{96}Zr , dado que si bien tiene picos de resonancia en el rango de 10 keV a 100 keV (figura 20) de menor magnitud en comparación con el ^{94}Zr , el 78,9 % de su actividad inducida procede de la componente epitérmica (tabla 7, capítulo 3.2), por lo que un cambio en la generación de fotoneutrones y neutrones rápidos por el berilio causaría la distorsión del espectro neutrónico y por lo tanto variación en la determinación de f .

Una consecuencia importante derivada de este efecto es que la determinación del parámetro α , como descriptor del comportamiento no ideal del espectro epitérmico, varía al emplear ^{96}Zr como monitor. Esto se puede apreciar en la figura 22, con el conjunto de monitores ^{197}Au - ^{94}Zr - ^{96}Zr - ^{177}Lu .

La captura de fotoneutrones y neutrones rápidos generados por el berilio, debida a los picos de resonancia del ^{96}Zr , incrementa la actividad inducida derivada de la componente epitérmica en el producto de la reacción, $^{97\text{m}}\text{Nb}$. En la figura 22, la recta azul que describe la función $\phi_t = f(\phi_e)$ de $^{97\text{m}}\text{Nb}^*$ (el signo * se agrega a modo de diferenciar del estado original) sigue un comportamiento paralelo en relación a la función $\phi_t = f(\phi_e)$ de $^{97\text{m}}\text{Nb}$ original, de color celeste. Este nuevo comportamiento implica una variación del punto de intersección; se modifica así la función $\phi_t = f(\phi_e)$ ^{198}Au (trazo color amarillo) a $\phi_t = f(\phi_e)$ $^{198}\text{Au}^*$ de trazo color marrón. Tales cambios generan un nuevo valor del parámetro α con tendencia negativa y, a su vez, menores valores del parámetro f .

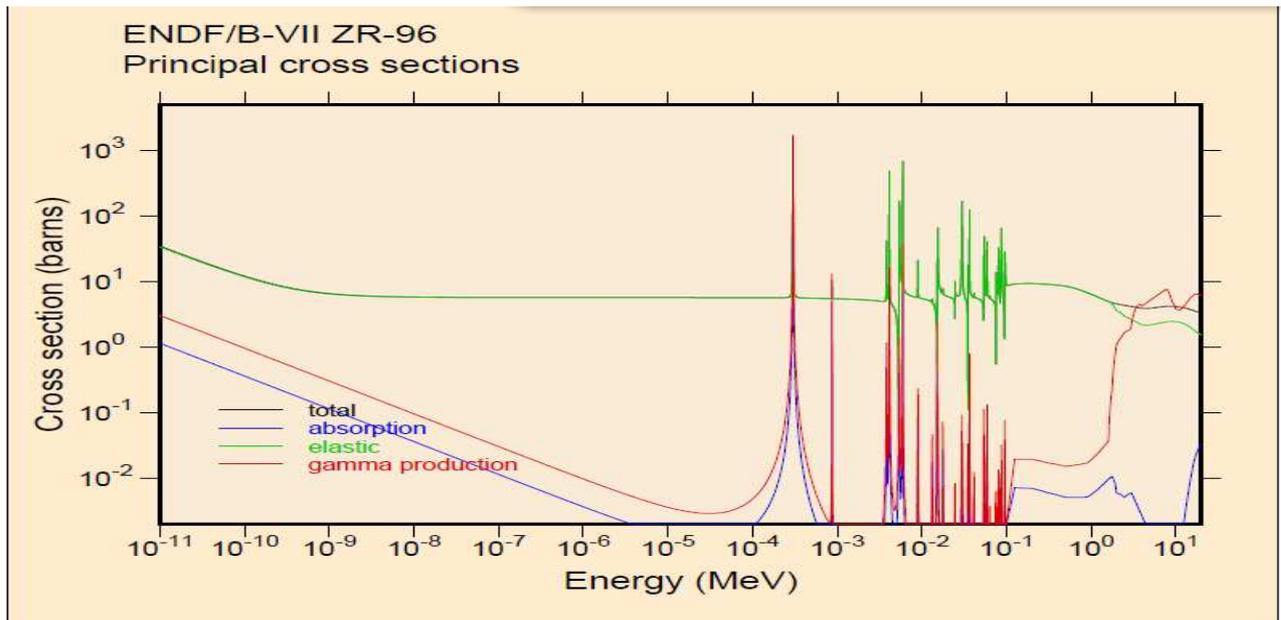


Figura 20: Función de excitación para la reacción de captura sobre ^{96}Zr [Evaluated Nuclear Data File (ENDF) dirección internet: www-nds.iaea.org/endl]. Los picos de resonancia abarcan hasta una energía de 100 keV pero con menor “intensidad”, en comparación con lo observado en la función de excitación correspondiente al ^{94}Zr .

Obviamente, el grado de distorsión de la distribución de la energía neutrónica en la zona epitérmica dependerá de la configuración del núcleo y del monto de berilio utilizado, así como del material estructural empleado. En la configuración N°30 del núcleo del reactor RP-10, (figura 3, capítulo 2.1) la posición de irradiación empleada correspondiente al tubo neumático (A1) está rodeada de dos bloques de grafito y solo uno de berilio, mientras que la posición “in core” (E5) se encuentra rodeada en forma lateral por 10 bloques de berilio. Tal configuración disminuye la posibilidad de corroborar experimentalmente, en el punto de irradiación estudiado (A1), el efecto de distorsión de la componente epitérmica causado por el berilio. No es así el caso del reactor RID (figura 21), cuya configuración muestra una disposición de bloques de berilio rodeando casi la periferia de la grilla del núcleo.

Koster-Ammerlaan *et al* (2011), en la facilidad de irradiación usada en el reactor RID, encontró que la diferencia en el valor de α calculado por el conjunto de monitores Au-Zr con respecto al obtenido mediante Au-Mo-Cr puede llegar a traducirse en una diferencia de concentración en molibdeno hasta un 5%.

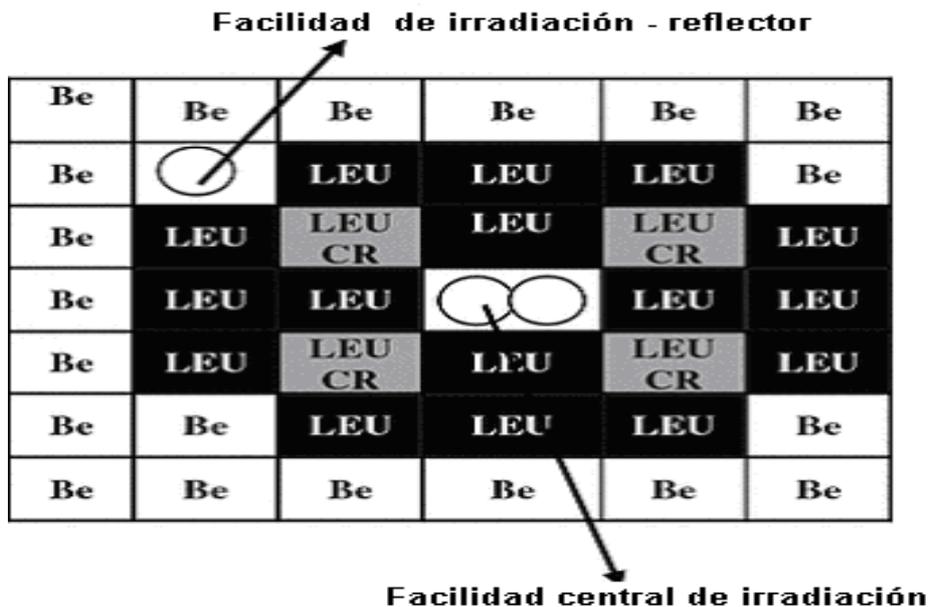


Figura 21: Presentación esquemática del núcleo del Delft Hoger Onderwijs Reactor (HOR) y facilidades de irradiación.

Algunos antecedentes de la situación comentada en los párrafos precedentes pueden encontrarse en el trabajo publicado por Kennedy y Pierre (2003) en donde se observaron variaciones hasta del 10%, en términos de concentración, para elementos cuya activación es mayormente epitérmica, como arsénico, yodo y cadmio. La caracterización del espectro neutrónico, en la facilidad de irradiación predominantemente epitérmica del reactor tipo Slowpoke (Ecole Polytechnique, Canadá) se realizó utilizando el método de triple monitor desnudo (^{198}Au - ^{94}Zr - ^{96}Zr). Los valores de f y α se compararon con los obtenidos mediante el método multielemental de la razón de cadmio, usando ^{198}Au , ^{60}Co y ^{101}Mo , y los resultados indicaron una diferencia sistemática del 10 % entre ambos métodos. Se calculó adicionalmente la masa de cada elemento determinado por el método k_0 , observando que para el ^{95}Zr se hallaba 4,6 % más alta que lo esperado.

Considerando lo mencionado por Koster-Ammerlaan *et al* (2011), tanto el ^{198}Au , ^{60}Co y ^{99}Mo no tienen problemas, dado que sus picos de resonancia se encuentran en energías menores que 10 keV. En cambio, la captura adicional de fotoneutrones por los picos de resonancia del ^{96}Zr (figura 20) y especialmente del ^{94}Zr conllevan el incremento de la actividad inducida por la componente epitérmica con lo cual el valor de f disminuye (debido al aumento del ϕ_e calculado). Este resultado es consistente con lo observado por Kennedy y Pierre (2003).

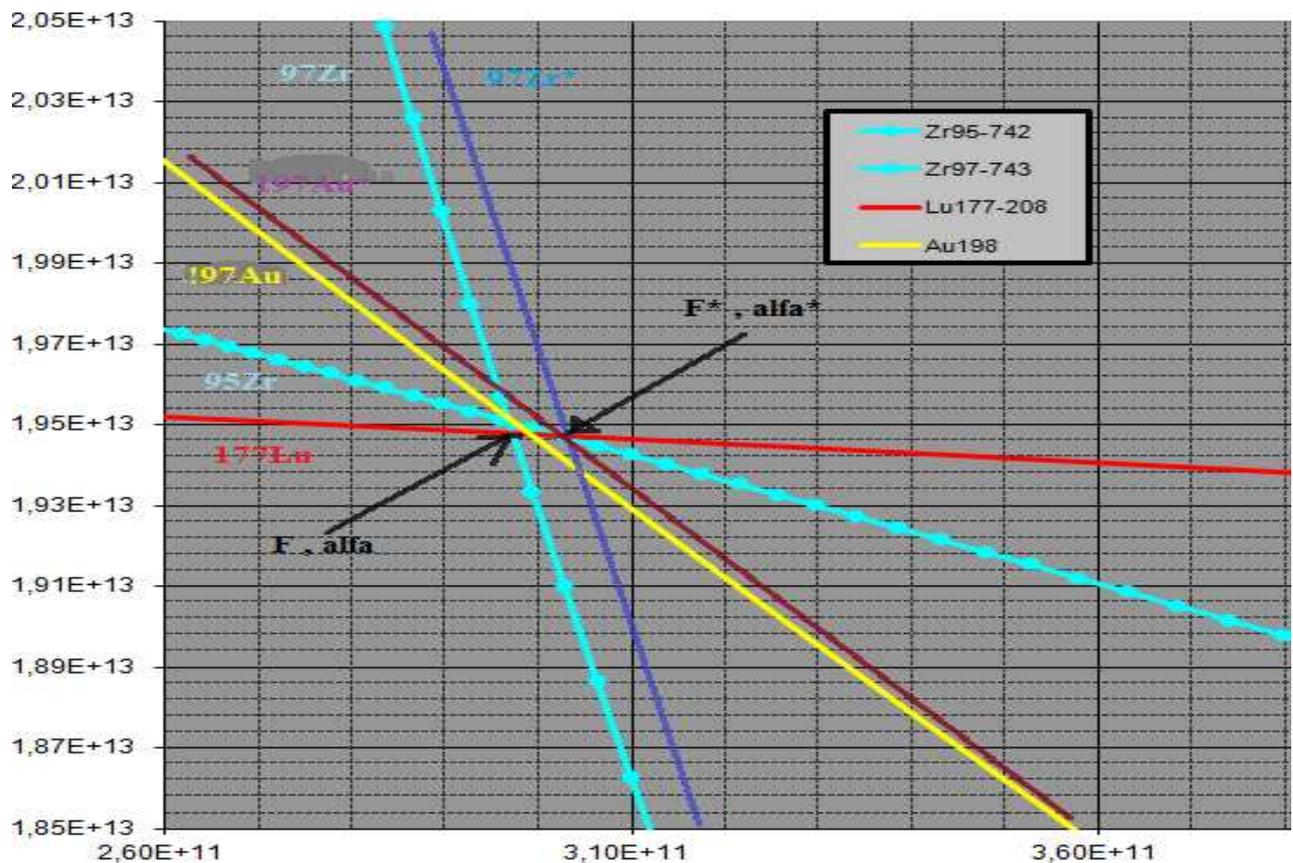


Figura 22: Variación hipotética de los valores de parámetros f y α por cambios en el comportamiento del monitor ^{96}Zr debido a la distorsión del espectro neutrónico. La recta azul correspondiente a la función $\phi_t = f(\phi_e)$ de $^{97}\text{Zr}^*$ (modificada por efecto de los fotoneutrones y neutrones rápidos producidos por el berilio) genera un nuevo punto de intersección descrito como f^*, α^* .

La pregunta obvia ante tales evidencias es si estos resultados constituyen cuestiones específicas por el tipo de reactor o si es necesario un cambio en la concepción metodológica del modelo.

Smodis *et al* (2003) propuso una nueva alternativa de cálculo de los parámetros característicos de flujo neutrónico basada en la redefinición de las constantes nucleares del k_0 con una descripción más realista de la forma espectral de la componente epitérmica. Sugiere que el parámetro α no es constante y que afecta a aquellos monitores particularmente sensibles a neutrones de alta energía, como en el caso de ^{94}Zr . Sobre esta base, calculó un valor de 14685 eV para la energía efectiva de resonancia, a diferencia de la frecuentemente empleada ($\bar{E}_r = 6260$ eV).

En razón de las evidencias mostradas, cabe esperar discrepancias en los resultados de experiencias tales como la determinación del valor de Q_0 para las reacciones $^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr}$ y $^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97}\text{Zr}$, [Smodis *et al*, 2003] y [Lin *et al*, 2009], realizadas en facilidades de irradiación con diferentes características espectrales.

Este comportamiento implica que el zirconio es un muy buen detector de anomalías en el rango de 10 a 100 keV del espectro epitérmico, pero en general tales anomalías no serán percibidas por los demás nucleidos. Así, la información sobre el espectro epitérmico que entregan los isótopos del zirconio estará muy influida por pequeñas anomalías que pueden ocurrir en el rango de 10 a 100 keV, que al no ser importantes para los demás nucleidos llevan a la conclusión de que el zirconio no es un buen monitor del flujo epitérmico.

Este no es el caso del ^{98}Mo , cuyo comportamiento frente a la influencia de los fotoneutrones difiere de la del binomio ^{94}Zr - ^{96}Zr , y que permite obtener resultados más consistentes de los parámetros característicos de flujo en las diversas facilidades de irradiación estudiadas [Koster-Ammerlaan *et al*, 2011].

Las constantes nucleares y el esquema de desintegración del ^{98}Mo son favorables para una óptima activación, al igual que para la medición, exceptuando la necesidad de determinar correcciones por coincidencia en caso de conteo a distancia cercana al detector. Sin embargo, tal como se mencionó anteriormente, la falta de consenso en torno a sus valores de I_0 y σ_0 limita su uso en reemplazo del oro como comparador analítico en el método k_0 -INAA.

El ^{197}Au es, considerado, por ahora el comparador analítico por excelencia. Las consideraciones expuestas en los capítulos previos fundamentan tal afirmación; a ellas se suma el hecho de tener sus picos de resonancia en una región exenta de la influencia de los fotoneutrones y neutrones rápidos generados por el berilio. Entre las diversas razones mencionadas, la referida a sus parámetros críticos σ_0 e I_0 cobra vital importancia. La adecuada dimensión que presentan, su baja incertidumbre relativa ($< 0,1\%$) y la aceptación de sus valores por consenso internacional son requisitos ampliamente alcanzados, a punto tal que el ^{197}Au es empleado como estándar de flujo en activación neutrónica y estándar primario para medición de integrales de resonancia.

Un segundo grupo de requisitos relacionados a condiciones espectrales, contempla los siguientes criterios: complejidad del esquema de desintegración, necesidad de corrección por coincidencia y adecuado periodo de semidesintegración, así como espectro de emisión gamma con picos de energía plena de alta intensidad relativa.

El ^{197}Au cumple con los criterios mencionados, al tener un esquema de desintegración simple, con pico de energía plena de alta intensidad y sin corrección por coincidencia, en un rango intermedio de energía (411,8 keV) en el que no hay mayor interferencia espectral, a excepción de las transiciones de 411,12 del ^{152}Eu ($\gamma = 2.22\%$) y 411,5 keV de ^{99}Mo ($\gamma = 0,0145\%$). Su periodo es adecuado, desde el punto de vista de los requerimientos experimentales, facilitando el control del tiempo muerto de conteo y la posibilidad de reutilizar el monitor, disminuyendo por ende la gestión de residuos radiactivos respectiva.

Un tercer grupo de requisitos a considerar se relaciona con criterios de accesibilidad y óptimas condiciones de preparación y manipulación. Los requisitos para tales criterios han sido anteriormente mencionados en el capítulo 1.5, en donde la incerteza asociada a las abundancias isotópicas de las especies consideradas no existe para el caso del ^{197}Au , por ser monoisotópico.

Un criterio adicional a considerar es la posibilidad de contaminación cruzada en el comparador vía cutánea o ambiental. Dicha posibilidad es mínima en el caso del oro. En lo referente a los requerimientos de estabilidad química y estequiometría, la aleación Al-0,1 % Au (IRMM-530R) de frecuente uso en métodos k_0 -NAA, tiene una aceptable homogeneidad expresada en términos de fracción de masa ($1,003 \pm 0,005$) g.kg^{-1} para $n = 50$ [Ingelbrecht *et al*, 2001]. En tanto, la aleación con el aluminio ofrece una alta resistencia a la oxidación u otra degradación química bajo condiciones normales de almacenamiento, por lo que se puede considerar altamente estable. Sin embargo, el problema con el oro radica en que su comportamiento en la región epitérmica presenta un apreciable grado de dependencia del parámetro α . Aunque en principio esta dependencia no es muy grande, si se emplean valores incorrectos de α , como los obtenidos empleando zirconio como monitor epitérmico, el oro fallará como comparador.

De acuerdo con las experiencias realizadas, el ^{176}Lu es el único monitor factible para la determinación de la temperatura neutrónica.

Ya se hizo mención a las favorables características del cobalto como monitor en la zona térmica. Alternativamente, el ^{55}Mn también podría emplearse como monitor de flujo térmico, siempre que se considere un decaimiento no mayor que diez periodos del ^{56}Mn .

Se puede entonces establecer que un monitor multipropósito (o bien un conjunto de monitores) compuesto por Au, Co, Mo y Lu sería el más adecuado para los fines establecidos, mientras que manganeso y zinc podrían ser considerados también como monitores secundarios.

Dados los valores de sección eficaz e integral de resonancia de ^{121}Sb y ^{123}Sb , así como las características favorables de sus productos de activación, sería viable su aplicación como monitores de flujo, no investigada en el presente trabajo. En un estudio preliminar, abordado por Koyama y Matsushita (1980) se concluye en la necesidad de una mejor determinación de los valores de σ_0 . Estos mismos autores proponen también un conjunto de monitores para la caracterización del espectro y del flujo neutrónico, entre los cuales se encuentran U, Au, Co y Lu.

Sobre ideas similares, Díaz Rizo (1997) realizó un trabajo que incluyó a un mayor número de monitores, entre los que se encontraban inicialmente: Zr, Lu, Th, Co, U, Au y Sn. Un detalle a tomar en cuenta, en relación con el estándar de uranio, es que fue preparado a partir de U_3O_8 , sin

considerar la probable variación isotópica de $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$, a la que se hará mención a continuación. El ^{238}U posee, según Mughabghab (2003), una $\sigma_0 = (2,680 \pm 0,019)$ b y un interesante valor de $Q_0 = 103,36$ que lo hacen apropiado como monitor epitérmico. Sin embargo, variaciones isotópicas ($0,24 \pm 0,01$ %) con respecto al valor aceptado para ^{235}U fueron encontradas en soluciones estándar de aplicación en ICP (Krachler y Carbol, 2010). Este hecho permite inferir la presencia de uranio empobrecido, en vez de uranio natural, en drogas de laboratorio, lo que implicaría la necesidad de redeterminar la concentración de ^{238}U .

Fueron discutidas en los capítulos anteriores los resultados obtenidos en la caracterización del espectro y del flujo neutrónico mediante la combinación de una serie de monitores, donde la determinación del parámetro α fue uno de los objetivos principales. Es necesario aclarar, no obstante, que en el análisis de muestras geológicas o arqueológicas no se requiere una extrema exactitud, que para fines prácticos puede llegar a conciliarse en un máximo del 5%.

Desde esta perspectiva, la no consideración del parámetro α implicaría tendría efecto directo en la determinación de la concentración del analito de interés. Tal efecto se calculó a partir del formulismo empleado por Montoya *et al* (1999) donde para una concentración ρ de un elemento j, donde los subíndices c y j designan al comparador y al elemento estudiado.

$$\Delta\rho_j(\%) = 100 \left(1 - \frac{[f(0)+Q_{o,c}(0)][f(\alpha)+Q_{o,j}(\alpha)]}{[f(\alpha)+Q_{o,c}(\alpha)][f(0)+Q_{o,j}(0)]} \right)$$

Se determinó para un valor $f(0) = 72$, con $T_n = 47^\circ \text{C}$ y $f(0,038) = 58$. Con estos datos se calculó el error porcentual expresado como $\Delta\rho$, cuyos resultados aparecen en la tabla 11. Según los resultados obtenidos, obviar el valor de α o simplemente no tomarlo en cuenta implicaría un error sistemático no mayor que 1%, en término de concentración, en caso de emplear los monitores ensayados en este trabajo como compradores, exceptuando al ^{197}Au y al ^{96}Zr .

Tabla 11: Error calculado (expresado en %) por no consideración de α ($\alpha = 0$) para una relación de flujos $f = 58$ y $\alpha = 0,038$

| Comparador | ^{198}Au | ^{60}Co | ^{51}Cr | ^{59}Fe | ^{177}Lu | ^{56}Mn | ^{99}Mo | ^{46}Sc | ^{65}Zn | ^{95}Zr | ^{97}Zr |
|-------------------|-------------------|------------------|------------------|------------------|-------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|
| Núcleo | | | | | | | | | | | |
| ^{197}Au | 0,00 | -2,58 | -2,65 | -2,68 | -3,02 | -2,66 | -2,36 | -2,65 | -2,83 | -3,45 | -6,18 |
| ^{59}Co | 2,52 | 0,00 | -0,07 | -0,10 | -0,43 | -0,08 | 0,21 | -0,06 | -0,24 | -0,85 | -3,51 |
| ^{50}Cr | 2,59 | 0,07 | 0,00 | -0,03 | -0,35 | -0,01 | 0,28 | 0,01 | -0,17 | -0,78 | -3,44 |
| ^{58}Fe | 2,61 | 0,10 | 0,03 | 0,00 | -0,33 | 0,02 | 0,31 | 0,03 | -0,14 | -0,75 | -3,41 |
| ^{176}Lu | 2,93 | 0,43 | 0,35 | 0,33 | 0,00 | 0,35 | 0,64 | 0,36 | 0,19 | -0,42 | -3,07 |

| | | | | | | | | | | | |
|------------------|------|-------|-------|-------|-------|-------|------|-------|-------|-------|-------|
| ⁵⁵ Mn | 2,59 | 0,08 | 0,01 | -0,02 | -0,35 | 0,00 | 0,29 | 0,01 | -0,16 | -0,77 | -3,43 |
| ⁹⁸ Mo | 2,31 | -0,21 | -0,29 | -0,31 | -0,64 | -0,29 | 0,00 | -0,28 | -0,45 | -1,07 | -3,73 |
| ⁴⁵ Sc | 2,58 | 0,06 | -0,01 | -0,03 | -0,36 | -0,01 | 0,28 | 0,00 | -0,18 | -0,79 | -3,44 |
| ⁶⁴ Zn | 2,75 | 0,24 | 0,17 | 0,14 | -0,19 | 0,16 | 0,45 | 0,18 | 0,00 | -0,61 | -3,26 |
| ⁹⁴ Zr | 3,34 | 0,85 | 0,77 | 0,75 | 0,42 | 0,77 | 1,06 | 0,78 | 0,61 | 0,00 | -2,64 |
| ⁹⁶ Zr | 5,82 | 3,39 | 3,32 | 3,30 | 2,98 | 3,32 | 3,60 | 3,33 | 3,16 | 2,57 | 0,00 |

Un detalle importante a considerar es el comportamiento del ⁹⁹Mo como comparador. A diferencia de los monitores “epitérmicos” tradicionales, ¹⁹⁷Au y ⁹⁶Zr, su empleo como tal (considerando $\alpha = 0$) genera un error sistemático no mayor que el 1% en los nucleídos bajo estudio. La trascendencia de este hecho radica en que podría reemplazar al oro como comparador, y en términos más favorables, pero se requeriría una mejor determinación de los valores de sus parámetros críticos de σ_0 e I_0 .

Los resultados obtenidos en el presente trabajo, sumados a las evidencias aportadas por otros autores, muestran que es necesario continuar en esa línea de experimentación, dada la importancia que implica conocer una probable modificación de la expresión $1/E^{1+\alpha}$, si se piensa en minimizar el impacto del comportamiento no ideal del flujo epitérmico en el cálculo de concentraciones mediante el método paramétrico del k_0 .

CONCLUSIONES

La conclusión primaria que se desprende del desarrollo de la presente tesis es que la elección del comparador óptimo (o, en forma más amplia, de un conjunto posible de comparadores) es un problema notablemente más complejo que lo que aparenta ser, pues además de las características físicas, químicas y nucleares que debe reunir, requiere la realización de una consistente caracterización de la facilidad de irradiación, que necesariamente debe efectuarse de modo experimental.

A su vez, y tal como surge de las experiencias aquí realizadas, esta caracterización tiene que basarse en un modelo teórico adecuado del espectro neutrónico. El problema se complica aún más, porque establecer el modelo teórico y realizar la caracterización experimental no son etapas cancelatorias, sino que implican un tratamiento iterativo y de manera recursiva, lo que demanda mayor tiempo de investigación y subsecuentemente mayor esfuerzo experimental.

En primer lugar, se aportan pruebas concluyentes en lo referente al monitor bi-isotópico $^{94}\text{Zr} - ^{96}\text{Zr}$, cuya utilización ha sido defendida desde hace varias décadas por muchos autores: los resultados obtenidos muestran que debe quedar descartado como comparador. Adicionalmente, se ha demostrado que su empleo como monitor de flujo neutrónico es cuestionable, no solo por la gran dependencia del ^{96}Zr a las variaciones del parámetro α , que tornan al menos dudosos los resultados de flujo en la zona epitérmica, sino también por la relativamente alta participación de la componente epitérmica en la actividad inducida por el ^{94}Zr , que restringe su utilidad como monitor térmico, sobre todo considerando que ^{59}Co y ^{64}Zn son más adecuados para tal fin.

Sobre la premisa de la elección de monitores y comparadores seleccionados con base en la calidad de determinación de los valores de sus propiedades nucleares, así como de la viabilidad experimental del uso de los mismos, los monitores recomendados para su uso como comparadores, según los resultados del presente estudio, son ^{59}Co , ^{197}Au y ^{98}Mo . No obstante, para la adopción definitiva del ^{98}Mo sería necesaria una mejor determinación de su sección eficaz de captura. Análoga consideración puede formularse en relación con el eventual uso de ^{64}Zn y ^{50}Cr , en especial con respecto a este último. Ambos podrían ser muy eficientes comparadores si sus secciones eficaces para la reacción (n,γ) fueran objeto de determinaciones más seguras.

La solución que se propone en el presente trabajo para el problema de la elección de monitores y comparadores, que como se ha visto está lejos de ser trivial, es el desarrollo de un método de cálculo riguroso en su concepción, con el fin de asegurar la obtención de resultados confiables. Más allá de esta pauta primordial, puede mencionarse que el método desarrollado es de simple realización y que brinda una determinación completa de todos los parámetros, incluyendo la determinación de los flujos en forma separada, como parte de un proceso único. Este hecho

marca una diferencia sustancial con respecto a los publicados en la literatura y empleados actualmente, pues se evita las interdependencias en la determinación de los parámetros de caracterización que ellos presentan y que pueden conducir a importantes errores.

El párrafo anterior brinda el marco de referencia para destacar uno de los logros más relevantes de este desarrollo: el problema de la determinación del parámetro que relaciona la densidad del flujo neutrónicos de las componentes térmica y epitérmica (f) y del parámetro vinculado a la forma espectral de la densidad neutrónica epitérmica (α) ha sido solucionado aplicando un enfoque integral y distinto a los empleados tradicionalmente. Tal carácter novedoso se extiende a la evaluación de su incertidumbre, que se realiza desde otra perspectiva de cálculo, no sólo más adecuada desde el punto de vista metodológico, sino también más eficiente, pues elimina la indeterminación para valores de α cercanos a cero, inconveniente frecuente en los métodos convencionalmente aplicados.

No se puede aún arribar a una conclusión definitiva acerca de la influencia de los venenos neutrónicos o de la absorción de fotoneutrones producidos por presencia del reflector de berilio, como factores generadores de una probable distorsión de la componente epitérmica del ^{96}Zr en la facilidad de irradiación empleada. Si tal influencia se viera confirmada en el futuro, constituiría una desventaja adicional en contra de la utilización del zirconio como monitor de flujo.

Es tal vez pertinente cerrar este trabajo con una reflexión: posiblemente los resultados aquí obtenidos y las conclusiones que de ellos se desprenden puedan constituir una herramienta válida en la elaboración de criterios para la elección del comparador en el análisis por activación paramétrico. No obstante, su mayor utilidad quizás radique en la apertura de nuevos caminos para seguir estudiando estos problemas. En ello también descansa la riqueza del tema propuesto.

REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS

Amaldi E. ; Fermi E. , 1936

“On the absorption and the diffusion of slow neutrons”

Physic Reviews, Vol. 50, 899 – 928

Arboccó F.F. ; Strijckmans K. ; Vermaercke P. ; Verheyen L. ; Sneyers L. , 2010

“The impact of polyethylene vials on reactor channel characterization in k_0 -NAA”

J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 286 (2010) 569-575

Arribére M.A. ; Kestelman A.J. , 1995

“Automatización del método de determinación de flujos térmico y epitérmico en análisis por activación neutrónica”

Proc. Workshop on Applications of k_0 and other parametric methods of INAA, Lima- Perú, Marzo 1995.

IAEA – ARCAL IV

Arribére M. A. ; Cohen I.M. ; Kestelman A.J. ; Ribeiro Guevara S. ; Arrondo M. ; Fornaciari Iljadica M. C. , 2005

“La caracterización del espectro neutrónico en un reactor nuclear y la determinación de datos nucleares”

Proyecciones, Vol. 5, No. 1, 9-23

Beckurtz K.H. ; Wirtz K. , 1964

“Neutron physics”

Springer Verlag – Berlin

Brockmann J.D. ; Robertson J.D. , 2009

“Analysis of k_0 neutron activation analysis at the University of Missouri Research Reactor”

Appl. Radiat. Isot, Vol. 67, 1084-1088

Bucharm W.E. , 1979

“Elements of nuclear physics”

Longman Inc. New York

Cohen I.M. ; Fornaciari Iljadica M.C. , 2011

“Some problems of parametric neutron activation analysis based on the use of radioactive daughters of longer-lived mothers with low mother/daughter half-life ratios”

J. Radioanal. Nucl. Chem., DOI: 10.1007/s10967-011-1313-6.

Chilian C. ; St-Pierre J. ; Kennedy G. , 2008

“Complete thermal and epithermal neutron self-shielding corrections for NAA using a spreadsheet”
J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 278, 745-749

Cohen I. M. ; Furnari J. C. , 1999

“Considerations about the selection of nuclear data used in neutron activation analysis”
Appl. Radiat. Isot. , Vol. 50, 743-752

Cohen I.M. ; Arrondo M. ; Arribère M.A. ; Fornaciari Iijadica M.C. , 2006

“A method for fast determination of the α parameter in nuclear reactors”
Nuclear Science and Engineering: 153, 1-8

Coplen T.B. ; Böhlke J. K. ; De Bievre P. ; Ding T. ; Holden N. E. ; Hopple J. A. ; Krouse H. R. ; Lamberty A. ; Peiser H. S. ; Revesz K. ; Rieder S. E. ; Rosman K. J. R. ; Roth E. ; Taylor P. D. P. ; Vocke R. D. ; Xiao Y. K. , 2002

“Isotope abundance variations of selected elements”
Pure Appl. Chem., Vol. 74, N°10, 1987-2017

De Corte F. ; Speecke A. ; Hoste J. , 1969

“Reactor neutron activation analysis by a triple comparator method”
J. Radioanal. Nucl. Chem, Vol. 3, 205-215

De Corte F. , 2001

“The standardization of standardless NAA”
J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 248, N°1, 13-20

De Corte F. ; Moens L. ; Simonits A. ; De Wispelaere A. ; Hoste J. , 1979

“Instantaneous α determination without Cd Cover in the $1/E^{1+\alpha}$ Epithermal Neutron Spectrum”
J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 52, No. 2, 295-304.

De Corte F. ; Moens L.; Sordo-El Hammami K. ; Simonits A. ; Hoste J. , 1979.

“Modification and generalization of some methods to improve the accuracy of α -determination in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal neutron spectrum”
J. Radioanal. Chem., Vol. 52, 305–317

De Corte F. ; Sordo-El Hammami K. ; Moens L. ; Simonits A. ; De Wispelaere A. ; Hoste J. , 1981

“The accuracy and precision of the experimental α -determination in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal reactor neutron spectrum”

J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 62, No. 1-2, 209-255

De Corte F. ; Simonits A. ; De Wispelaere A. ; Hoste J. , 1987

“Accuracy and applicability of the k_0 standardization method”

J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, Vol. 113, 145-161

De Corte F. ; Simonits A. , 2003

“Recommended nuclear data for use in the k_0 standardization of neutron activation analysis”

Atomic Data and Nuclear Data Tables, Vol. 85, 47– 67.

De Corte F. , 1987

“The traceability of the neutron activation analysis (NAA) k_0 – standardization method”

J. Trace Microprobe Techniques, 5, 115

Díaz Rizo O. ; Álvarez I. ; Herrera E. ; Lima L. ; Torres J. ; Manso M.V. ; López M.C. ; Ixquiac M. ;

De La Rosa D. , 1997

“HAV-1: a multipurpose multimonitor for reactor nuclear flux characterization”

J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 220, N°1, 99-102

Dorval E.L. ; Arribére M.A. ; Ribeiro Guevara S.

“Medición de la sección eficaz de reacción $^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$ en un flujo neutrónico mixto”

En Internet: [iaea.org/inis/collection/NCL/collection store/ 38115205.pdf](http://iaea.org/inis/collection/NCL/collection%20store/38115205.pdf)

El Abd A. , 2010

“Measurements of the thermal neutron cross sections and resonance integrals for $^{186}\text{W}(n,\gamma)^{187}\text{W}$ and $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ reactions”

J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 274, 321-326

Erdtmann G. ; Petri H., 1986

“Nuclear activation analysis: fundamentals and techniques”

From “Treatise on Analytical Chemistry, Second Edition-Part I, Vol. 14” Edited by Elving, J. Ph., N. Y.,

Wiley & Sons.

Furnari J. C. ; Cohen I. M. , 1998

“Application of the concept of traceability to the management of nuclear data”

Appl. Radiat. Isot. , Vol. 49, N° 12, 1523-1527

Girardi F. ; Guzzi G. ; Pauly J. , 1965

"Reactor neutron activation analysis by the single comparator method"

Anal. Chem., 37, 1085-1092

Hogdahl O.T., 1962

"Neutron absorption in pile neutron activation analysis determination of copper and gold in silver"

Radiochemical Methods of Analysis, Vol.1, International Atomic Energy Agency, Vienna.

Holden E.N. , 1993

"Critical evaluation of resonance integrals for activation analysis"

Trabajo presentado en la 37° Asamblea General de IUPAC, Lisboa-Portugal

IAEA, Vol. 1 y Vol. 2, (2007)

"Update of X-ray and gamma ray decay data standards for detector calibration and other applications"

URL: http://www-nds.iaea.org/xgamma_standards/

Ingelbrecht C. ; Derbyshire M. ; Robouch P. , 2001

"Certification of gold mass fraction in Al-0.1%Au alloy"

European Commission, Joint Research Centre, Institute for Reference Materials and Measurements. Geel, Belgium, EUR 19930 EN

ISO GUM, 2004

"Guide to the expression of uncertainty in measurement. Supplement 1: Numerical methods for the propagation of distributions"

Kennedy G. ; St-Pierre J. , 2003

"Is the k_0 method accurate for elements with high Q_0 values?"

J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 257, N°3, 475-480.

Kocher D.C. , 1981

"Radioactive decay data tables"

Report DOE/TIC-11026

Koster-Ammerlaan M.J.J. ; Bode P. ; Winkelman A.J.M. , 2011

"Photoneutrons from beryllium: the source of problems with Zr-Au flux monitoring in k_0 standardization based neutron activation analysis"

J. Radioanal. Chem., DOI: 10.1007/s10967-011-1241-5

Koster-Ammerlaan M.J.J. ; Bacchi M.A. ; Bode P. ; de Nadai Fernandes E.A. , 2008

"A new monitor for routine thermal and epithermal neutron fluence rate monitoring in k_0 INAA"

Appl. Radiat. Isot., Vol. 66,1964-1969

Kolotov V.P. ; De Corte F. , 2004

IUPAC_KONAA_v.4_Access2000p.mdb. Base de datos compilada en forma electrónica
Pure Applied Chemistry, Vol. 76, N°10, 1921-1925

Koyama M. ; Matsushita R. , 1980

“Use of neutron spectrum sensitive monitors for instrumental neutron activation analysis”
Bull. Inst. Chem. Res., Kyoto Univ., Vol. 58, No. 2, 235-243

Krachler M. ; Carbol P. , 2010

“Validation of isotopic analysis of depleted, natural and enriched uranium using high resolution ICP-OES”
J. Anal. At. Spectrom. , Vol. 26, 293-299

Kucera J. ; Bode P. ; Stepanek V. , 2000

“The 1993 ISO Guide to the expression of uncertainty in measurement applied to NAA”
J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 245, 115-122

Laboratoire Nationale Henri Becquerel, 2011

“Recommended Data”

Dirección en Internet: www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm

Lin X. ; Gerstenberg H. ; Lierse von Gostomski ; Henkelmann R. ; Türler A.; Rossbach M. , 2009

“Determination of k0-values for the reactions $^{94}\text{Zr} (n,\gamma)^{95}\text{Zr}$ and $^{96}\text{Zr}(n,\gamma) ^{97}\text{Zr}-^{97m}\text{Nb}$ by irradiation in highly thermalized neutron flux”
Appl. Radiat. Isot, Vol. 67, 2092-2096

Montoya E.H. , 1995

“Evaluación y estandarización del análisis por activación neutrónica según el método del k-sub-cero, en el reactor nuclear rp-10. Estudio preliminar empleando irradiaciones cortas”
Tesis de Maestría en Química (1995), Facultad de Ciencias, Universidad Peruana Cayetano Heredia.

Montoya E.H. ; Cohen I.M.; Mendoza P. ; Torres B. ; Bedregal P. , 1999

“The corrections for non-ideal behavior of the epithermal neutron spectrum and the resolution of the simplicity in parametric activation analysis”
J. Radioanal. Chem., Vol. 240, N°2, 475-479

Montoya E.H. ; Cohen I.M. ; Mendoza P. ; Bedregal P. , 2010

“The development of the k_0 method in Peru: past, present and future perspectives

Nuclear Instruments and Methods A, Vol. 622, N°2, 381-384

Molnar G. L. , 2000

“Nuclear data for activation analysis”

J. Radioanal. Nucl. Chem, Vol. 244 (2000) 27-33

Moens L. ; De Corte F. ; Simonits A. ; De Wispelaere A. ; Hoste J. , 1979 A

“The effective resonance energy \bar{E}_r as a parameter for the correction of resonance integrals in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal neutron spectra; Tabulation of \bar{E}_r Values for 96 isotopes”

J. Radioanal. Chem., Vol. 52, No. 2, 379-387

Moens L. ; De Corte F. ; De Wispelaere A. ; Hoste J. ; Simonits A. ; Elek A. ; Szabó E. , 1984

“ k_0 measurements and related nuclear data compilation for (n, γ) reactor neutron activation analysis”

J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 82/2, 385-452

Moon P.B. ; Tillman J.R. , 1935

“Selective absorption of slow neutrons”

Nature, vol. 136, 66-67

Mughabghab S.F. , 2003

“Thermal neutron capture cross sections, resonance integrals and g-factors”

International Nuclear Data Committee (NDS)-440 Distr. PG+R; IAEA

OP De Beeck J. , 1985

“Energy dependence of the epithermal neutron spectrum shape parameter α with respect to application of comparator type NAA”

J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 90/1, 167-187

Rosman K.J.R. ; Taylor P.D.P. , 1998

“Isotopic compositions of the elements 1997 (Technical Report)”

Pure Appl. Chem., Vol.70, N°1, 217-235

Rosbach M. ; Blaauw M. ; Bacchi M.A. ; Lin X. , 2007

“The k_0 -IAEA program”

J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 274 N°3, 657-662

Ryves T. B. , 1969

“A New thermal flux convention”

Metrologia, Vol. 5., No. 4, 119

Ryves T. B. ; Paul E. B. , 1968

“The construction and calibration of a standard thermal neutron flux facility at the National Physical Laboratory”

J. Nucl. Energy, Vol. 22, 759-775.

Schumann P. ; Albert D. , 1965

“Untersuchung epithermischer neutronenspektren mit dünnen resonanzsonden”

Kernenergie, 2, 88

Schötzig U. ; Schrader H. ; Schönfeld E. ; Günther E. ; Klein R , 2001

“Standardization and decay data of ^{177}Lu and ^{188}Re “

App. Radiat. Isot, Vol. 55, N° 1, 89-96

Segovia M.S. , 2005

“Estudio sobre los parámetros de caracterización del comportamiento no ideal de la componente epitérmica del espectro neutrónico en reactores nucleares”

Tesis de Maestría en Radioquímica, Facultad Regional Buenos Aires, Universidad Tecnológica Nacional, República Argentina

Simonits A. ; De Corte F. ; Van Lierde S. ; Pommé S. ; Robouch P. ; Eguskiza M. , 2000

“The k_0 and Q_0 Values for the Zr-isotopes: A re-investigation”

J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 245, No 1, 199-203

Simonits A. ; De Corte F. ; Hoste J. , 1975

“Single-comparator methods in reactor neutron activation analysis”

J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 24, 31-46.

Simonits A. ; De Corte F. ; Hoste J. , 1976

“Zirconium as a multi-isotopic flux ratio monitor and a single comparator in reactor neutron activation analysis”

J. Radioanal. Nucl. Chem, Vol. 31, 467-486

Simonits A. ; De Corte F. ; Moens L. ; Hoste J. , 1984

“Critical evaluation and experimental determination of the nuclear activation and decay parameters for the reactions: $^{50}\text{Cr}(n,\gamma)^{51}\text{Cr}$, $^{58}\text{Fe}(n,\gamma)^{59}\text{Fe}$, $^{109}\text{Ag}(n,\gamma)^{110m}\text{Ag}$ ”

J. Radioanal. Nucl. Chem, articles, 81/2, 369-396

Simonits A. , Jovanovic S. , De Corte F. , Moens L. , Hoste J. , 1984

“A method for experimental determination of effective resonance energies related to (n, γ) reactions”

J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles 82/1, 169-179

Smodiš B. ; Bucâr T. , 2006

“Overall measurement uncertainty of k_0 -based neutron activation analysis”

J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 269 N°2, 311-316

Smodiš B. ; Trkov A. ; Jacimovic R. , 2003

“Effects of the neutron spectrum on the neutron activation analysis constants for ^{94}Zr and ^{96}Zr ”

J. Radioanal. Nucl. Chem., vol. 257, 481-487

Stoughton R.W. ; Halperin J. , 1959

“Heavy nuclide cross sections of particular interest to the thermal reactor operation: conventions, measurements and preferred values”

Nucl. Sci. & Eng. 6:100-118.

Steele A. , Douglas R.J. ; 2005

“Simplifications from simulations”

Institute for National Measurement Standards, National Research Council of Canada

Trkov A. , 2002

“Validation of thermal cross sections and resonance integrals of SG-23 evaluated nuclear data library”

IAEA, Vienna

Van Hung T. , 2010

“Modified method of α determination in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal neutron spectrum of reactor”

J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 285, 331-336

Wieser M.E. , 2006

“Atomic weights of the elements 2005”, (IUPAC technical report)

Pure Appl. Chem., Vol. 78, N°11, 2051-2066

Yusuf O.S. ; Fleming R.F. , 1994

“Direct measurement of k_0 for monitors neutron activation analysis”

J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, Vol. 179, N°1, 105-112

Yücel H. ; Karadag M. , 2004

“Experimental determination of the α -shape factor in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal-isotopic neutron source spectrum by dual monitor method”

Annals of Nuclear Energy, Vol. 31, 681-695

NOMENCLATURA

| | |
|---------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| A_0 | actividad a final de irradiación corregida por factores temporales de decaimiento y de conteo [Bq] |
| coi | Factor de corrección por coincidencia |
| C | Factor de corrección por tiempo de medición |
| C_n | Área neta, corregida por factor coi, calculada según método del área total empleando función escalonada para evaluación de fondo del pico de energía plena. |
| α | Parámetro que describe la desviación del flujo epitérmico de la ley $1/E$ |
| λ | Constante de desintegración radiactiva [s^{-1}] |
| θ | Abundancia isotópica del isótopo precursor |
| D | Factor de corrección por decaimiento |
| f | razón de la densidad del flujo neutrónico de las componente térmica y epitérmica |
| ε | Eficiencia geométrica de medición: se considera la distancia entre la muestra y la superficie externa del detector (cobertor de aluminio). |
| E_m | Energía correspondiente a la velocidad modal de la distribución maxwelliana [eV] |

| | |
|---------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| E_{cd} | Energía de corte de cadmio [eV] |
| E_n | Energía del neutrón [eV] |
| E_γ | Energía del fotón gamma [keV] |
| $g(T)$ | factor de corrección de Westcott para la posible no idealidad de la sección eficaz |
| G_{th} | Factor de autoblandaje de neutrones térmicos |
| G_{epi} | Factor de autoblandaje de neutrones epitérmicos |
| k_0 | Constante de cálculo, definida por Simonits, De Corte y Hoste para el cálculo de la concentración en el análisis paramétrico |
| K | Constante de Boltzman [$1,380662 \cdot 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$] |
| k | Factor empírico, establecido por Girardi, que considera la razón de actividades específicas del radioisótopo investigado y del comparador bajo condiciones operativas constantes. |
| I_0 | Integral de resonancia reducida (sin la componente $1/v$) para la distribución de flujo epitérmico ideal $1/E$ [b] |
| $I_0(\alpha)$ | Integral de resonancia reducida (sin la componente $1/v$) para la distribución de flujo epitérmico no ideal $1/E^{1+\alpha}$ [b] |
| I_0 | Integral de resonancia definida a partir de una energía de corte de cadmio usualmente establecida en 0,55 eV [b] |
| $I_0(\alpha)$ | Integral de resonancia corregida, considerando la influencia del parámetro α [b] |
| σ_0 | Sección eficaz de captura para $v_n = v_0 = 2200\text{m/s}$ [b] |
| ϕ_e | Constante que define al flujo neutrónico epitérmico [$\text{n cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$] |
| ϕ_r | Flujo neutrónico rápido [$\text{n cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$] |
| ϕ_t | Flujo neutrónico térmico [$\text{n cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$] |
| M | Peso atómico del elemento de interés [g mol^{-1}] |
| m | Masa en reposo del neutrón [$1,6726485 \cdot 10^{-27} \text{ kg}$] |
| n_{th} | Número total de neutrones por unidad de volumen |
| N | Densidad neutrónica térmica o maxwelliana |
| N_A | Constante de Avogadro [$6,022045 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$] |

| | |
|-----------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Q_0 | Razón entre la integral de resonancia y de la sección eficaz de captura del isótopo a activar |
| $Q_0(\alpha)$ | Razón entre la integral de resonancia corregida, considerando influencia del parámetro α , y la sección eficaz de captura del isótopo a activar |
| γ | Probabilidad de emisión del fotón gamma por desintegración |
| Γ_γ | Ancho de resonancia radiativa |
| σ_i | Sección eficaz parcial en el máximo de la energía de resonancia i |
| σ_{ef} | Sección eficaz efectiva según convención Stoughton-Halperin [b] |
| S | Factor denominado de “Saturación”, definido como $(1-e^{-\lambda t_i})$ que varía según el periodo del nucleido producido y el tiempo de irradiación empleado. |
| $T_{1/2}$ | Período de semidesintegración |
| t_d | Tiempo de decaimiento: lapso entre final de irradiación e inicio de conteo [s] |
| t_i | Tiempo de irradiación: lapso de permanencia de la muestra en la instalación de irradiación [s] |
| t_m | Tiempo prefijado de medición, también denominado tiempo vivo [s] |
| T_m | Tiempo muerto de conteo, estimado por el propio sistema de adquisición [%] |
| t_r | Tiempo real de medición, que considera al tiempo muerto de calculado por el sistema de adquisición [s]. |
| T | Temperatura absoluta en grados Kelvin [K] |
| μ | Constante empírica, de valor 4 para reactor moderado con agua liviana, como es el caso del RP-10 |
| v | Velocidad del neutrón incidente [$m s^{-1}$] |
| w | Masa del elemento analizado [ug] |
| T_{esp} | Tasa de conteo específica, definida como: $T_{esp} = \frac{C_n}{S C D w}$ |
| | donde: |
| | $C = (1 - e^{-\lambda t_r}) (\lambda t_r)^{-1}$, $D = e^{-\lambda t_d}$ y $S = (1 - e^{-\lambda t_i})$ |

GLOSARIO DE SIGLAS

| | |
|--------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| LNHB : | Laboratoire Nationale Henri Becquerel (Francia) |
| NUDAT: | N uclear D atabase ; base de datos administrada por National Nuclear Data Center del Brookhaven National Laboratory (Estados Unidos) |
| DDEP: | D ecay D ata E valuation P roject |
| IAEA: | I nternational A gency of E nergy A tomic |
| ENSDF: | E valuated N uclear S tructure and D ata F ile |
| ENDF: | E valuated N uclear D ata F ile |
| WPEC: | W orking Party on E valuation C o-operation (SG-23, IAEA) |
| MCNP: | M onte C arlo N P article; programa diseñado para simulación de procesos nucleares |
| TECDOC | T echnical D ocuments; reportes técnicos sobre diversas actividades realizadas por el Organismo Internacional de Energía Atómica (IAEA sus siglas en inglés) |
| ORNL: | O ak R idge N ational L aboratory |