

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

M. A. Arribere^{1,2,5}, I. M. Cohen³, A. J. Kestelman^{1,2},
S. Ribeiro Guevara¹, M. Arrondo³, M. C. Fornaciari Iljadica⁴

¹ Comisión Nacional de Energía Atómica, Centro Atómico Bariloche;

² Universidad Nacional de Cuyo, Instituto Balseiro, Avenida Bustillo km. 9,7 (8400) Río Negro, Argentina.

³ Universidad Tecnológica Nacional, Facultad Regional Buenos Aires, Departamento de Ingeniería Química. Avenida Medrano 951, Buenos Aires (C1179AAQ), Argentina.

⁴ Comisión Nacional de Energía Atómica, Centro Atómico Ezeiza. Unidad de Actividad Radioquímica y Química de las Radiaciones, Presbítero González y Aragón N°15, (B1802AYA) Ezeiza, Pcia. Bs. As., Argentina.

⁵E-Mail: arribere@cab.cnea.gov.ar

Resumen

Se discute la influencia de la caracterización del espectro de neutrones en diferentes posiciones de irradiación de un reactor nuclear en la determinación de datos nucleares confiables. Se describen las experiencias efectuadas en el reactor RA-6, del Centro Atómico Bariloche, perteneciente a la Comisión Nacional de Energía Atómica, para la caracterización de las componentes rápida y epitérmica del espectro neutrónico y los trabajos realizados en la determinación de constantes nucleares de activación.

Abstract

The influence of the characterization of the neutron spectrum at different irradiation positions of a nuclear reactor on the determination of reliable nuclear data is discussed. The experiments carried out at the RA-6 reactor of Centro Atómico Bariloche (Comisión Nacional de Energía Atómica), for the characterization of the fast and epithermal components of the neutron spectrum are described, and also the work performed in connection with the determination of activation nuclear constants.

Introducción

Aun cuando los reactores nucleares son las instalaciones de irradiación preferentemente usadas en la producción de radioisótopos a escalas de laboratorio e industrial y en análisis por activación, se observa, en relación con muchas reacciones inducidas en la región de neutrones rápidos y, en menor medida, en la de neutrones epitérmicos, una llamativa escasez, y en ocasiones ausencia, de los datos nucleares pertinentes, específicamente, valores de secciones eficaces promediadas sobre un espectro de fisión e integrales de resonancia. Esta situación, que explica la necesidad de desarrollar métodos de determinación destinados a remediar estas carencias, es sólo uno de los problemas vinculados a la selección de datos nucleares de activación; el otro hecho significativo, en los casos de reacciones más estudiadas, es la generalizada dispersión de buena parte de los valores publicados para las constantes mencionadas.

La ausencia de valores confiables, obtenidos por consenso a partir de la concordancia entre mediciones realizadas por distintos laboratorios, tiende a desorientar al usuario, quien se encuentra en un estado de cierta indefensión ante la necesidad de elegir entre datos divergentes (Cohen y Furnari, 1999). Más allá de la costumbre, difundida entre muchos compiladores de datos, de mezclar en forma indiscriminada valores experimentales con otros surgidos de evaluación o cálculo, la realidad demuestra que aún preservando únicamente a los primeros las diferencias siguen siendo grandes. Entre las causas que motivan la dispersión de valores publicados para una misma constante se encuentran:

1. Utilización de conjuntos de datos de entrada (por ejemplo, masas atómicas relativas, abundancias isotópicas, probabilidades de emisión, secciones eficaces para neutrones térmicos) no consistentes.
2. Diversidad de reacciones nucleares en la estandarización, que representan términos de referencia no coincidentes para las determinaciones originadas en diferentes laboratorios. Adicionalmente, la observación formulada en el acápite anterior es válida para los datos relacionados con las reacciones nucleares estándar.
3. Falta de actualización de los conjuntos de datos de entrada, tanto para la reacción en estudio como para la reacción estándar, cuando los valores empleados históricamente son luego reemplazados por otros más confiables. Esta reconversión de los valores publicados a partir de un nuevo conjunto de datos de entrada (renormalización) sólo puede efectuarse si la trazabilidad del valor en cuestión se preserva adecuadamente (Furnari y Cohen, 1998).
4. Estimación "optimista" de la incertidumbre asociada a muchas determinaciones, donde no se evalúan correctamente todas las fuentes de incertidumbre individuales. De esta forma, datos que tendrían algún grado de solapamiento pasan a ser, desde el punto de vista estadístico, diferentes.
5. Adopción de diferentes convenciones para la expresión del flujo neutrónico, sin la aclaración pertinente, que inciden en las características de la constante medida. Así, por ejemplo, bajo la denominación común "integral de resonancia", se engloban valores de integrales de resonancia absoluta y reducida (que tiene en cuenta sólo los picos de resonancia), medidas a partir de la energía de empalme entre las componentes térmica y epitérmica, o bien a partir de la energía de corte de cadmio (el concepto de energía de corte de cadmio será explicado más adelante); ésta, a su vez, se considera, según los diferentes autores, igual a 0,5 eV o 0,55 eV, o aún a otros valores.
6. Ausencia de adecuada caracterización del espectro neutrónico en la posición del reactor usada para la irradiación. De esta forma, valores válidos para un espectro en particular asumen, en la posterior publicación y su inclusión en tablas, un carácter supuestamente universal, obviamente erróneo.

El usuario del dato nuclear puede disponer de cierto control acerca de los primeros cinco factores. Si bien el proceso es indudablemente tedioso, la consulta de las fuentes primarias permite conocer procesos y datos de entrada. Sobre esta base, el mismo usuario podrá efectuar la renormalización o incluso rechazar al valor cuando la información conexas no sea debidamente suministrada. En cambio, la caracteriza-

ción de la posición de irradiación es patrimonio y responsabilidad del generador del dato; si ésta no se efectúa o es incorrecta, un valor erróneo se sumará a los existentes.

El presente trabajo da cuenta de las experiencias realizadas para la caracterización de las componentes epitérmica y rápida del espectro neutrónico en diferentes posiciones del reactor RA-6, del Centro Atómico Bariloche. A partir de los resultados, se describirán algunos trabajos de determinación de datos nucleares de activación y su aplicación.

Convenciones y Fórmulas

No existe una expresión matemática única para describir al espectro neutrónico total de un reactor. Las convenciones propuestas efectúan la división, con límites más o menos variables, en tres regiones: la de neutrones térmicos, asociada en general a los mayores flujos, y las de neutrones epitérmicos y rápidos.

Se acepta para el flujo térmico una descripción basada en una distribución maxwelliana; no se hará mención adicional para esta componente, que no ha sido en este trabajo objeto de caracterización especial, pues existen suficientes datos de secciones eficaces para las reacciones inducidas con neutrones de este rango de energías.

Los neutrones rápidos creados por un proceso de fisión y que no interactuaron aún con el moderador presentan el espectro característico del nucleido que fisiona. En el caso del ^{235}U , el combustible más frecuente en los reactores nucleares, la distribución ha sido exhaustivamente estudiada. Las representaciones más utilizadas emplean funciones semiempíricas del tipo:

$$\Phi_r(E) = \int_0^\infty \phi_r \chi(E) dE$$

donde $\Phi_r(E)$ es el flujo de neutrones rápidos en función de la energía, ϕ_r una constante y $\chi(E)$ es la distribución normalizada de los neutrones.

Las reacciones nucleares en esta zona del espectro sólo ocurren cuando la energía de los neutrones supera un valor mínimo, E_u (energía umbral). El umbral energético depende del balance de masas de átomos y partículas y, en los casos que involucran la emisión de una partícula cargada, como en el de las reacciones (n,p) y (n,α) , de la altura de la barrera coulombiana.

La tasa de producción (por núcleo) de un nucleido a partir de una reacción umbral se expresa según:

$$R_u = \int_0^\infty \sigma_r(E) \Phi_r(E) dE$$

$\sigma_r(E)$ es la sección eficaz diferencial y $\Phi_r(E)$ la distribución del flujo de neutrones rápidos. Ambas funciones son en general complicadas y muchas veces no conocidas con exactitud, por cuya razón se define como referencia una sección eficaz integral, promediada sobre el espectro de fisión del ^{235}U :

$$\bar{\sigma}_r = \frac{\int_0^\infty \sigma_r(E) \Phi_r^f(E) dE}{\int_0^\infty \Phi_r^f(E) dE} = \frac{\int_0^\infty \sigma_r(E) \chi(E) dE}{\int_0^\infty \chi(E) dE} = \int_0^\infty \sigma_r(E) \chi(E) dE \quad (1)$$

donde Φ_r^f es la distribución de energías de neutrones provenientes de la fisión del ^{235}U . En el estudio de las secciones eficaces integrales de las reacciones umbral se define también un parámetro conocido como "energía umbral efectiva", E_{uef} , que surge de considerar a la sección eficaz diferencial como una función escalón, de valor σ_{ef} a partir de esta energía. Así,

$$\begin{aligned} \sigma(E) &= 0 & \text{si} & \quad E < E_{uef} \\ \sigma(E) &= \sigma_{ef} & \text{si} & \quad E \geq E_{uef} \end{aligned}$$

con la condición:

$$\int_{E_u}^{\infty} \sigma_r(E) \chi(E) dE = \sigma_{ef} \int_{E_{uef}}^{\infty} \chi(E) dE$$

La energía umbral efectiva no tiene significado físico exacto, pero da idea acerca del rango de energías de los neutrones que contribuyen mayoritariamente a la formación del isótopo activado. Por ejemplo, la reacción $^{54}\text{Fe}(n,\alpha)^{51}\text{Cr}$ tiene energía umbral, de acuerdo al balance de masas, igual a 0,843 MeV (reacción exoérgica) pero el umbral efectivo es 9,1 MeV, pues se requiere energía adicional para que la partícula cargada pueda salir del núcleo. De esta forma, E_{uef} es un umbral más realista, pues tiene en cuenta la barrera coulombiana y la distribución en energía de los neutrones incidentes.

La representación del flujo neutrónico en la zona epitérmica se supone, en su forma ideal, proporcional a la inversa de la energía (Westcott y colaboradores, 1958; Stoughon y Halperin, 1959). La fórmula corrientemente empleada para su descripción es:

$$\Phi_e(E) = \frac{\phi_{epi}}{E} \Delta(E)$$

Donde ϕ_{epi} es una constante y $\Delta(E)$ una función escalón que define el empalme entre la región térmica y la epitérmica, según:

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

μ es una constante empírica, cuyo valor es 4 para reactores moderados con agua, k la constante de Boltzmann y T la temperatura de la distribución.

Los neutrones epitérmicos, al igual que los térmicos, inducen las reacciones (n,γ) , conocidas como reacciones de captura radiante, o simplemente de captura. Cuando se dividen las componentes térmica y epitérmica del flujo, la tasa de reacción por núcleo para estas reacciones puede expresarse, de acuerdo a la convención de Högdahl (1962), según:

$$R_{cap} = \int_0^{\infty} \sigma(E) \Phi_t(E) dE + \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \Phi_e(E) dE$$

donde E_{Cd} , ligeramente superior a la energía de empalme μkT , es la energía de corte de cadmio, absorbedor de neutrones térmicos frecuentemente utilizado para inducir activación puramente epitérmica. La división planteada, válida sólo cuando no existen resonancias entre las energías correspondientes a μkT y E_{Cd} , representa de hecho el establecimiento de regiones "subcádmica" y "epicádmica", antes que térmica y epitérmica. El valor numérico de la primera de las integrales es:

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

siendo σ_0 la sección eficaz a la velocidad del neutrón de 2200 m.s⁻¹, velocidad más probable para una distribución de Maxwell a T = 293,2 K, y ϕ_s el flujo subcádmico.

Considerando un flujo epitérmico ideal y definiendo:

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

la segunda integral se expresa en la forma:

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

I_0 es la integral de resonancia, cuyos valores aparecen en la literatura consignados a partir de límites inferiores diversos, según sea el espesor de cadmio considerado, e inclusive a partir de la energía de empalme μkT , que también es variable según el tipo de reactor. Se adoptará aquí, como límite inferior, $E_{Cd} = 0,55$ eV, que corresponde a la absorción de neutrones por una cubierta de cadmio de 1 mm de espesor.

La fórmula que describe al flujo epitérmico, idealmente proporcional a la inversa de la energía, no expresa del todo correctamente la situación real, donde los elementos estructurales causan distorsión en el espectro. Ryves (1969) propone, para describir el fenómeno, una dependencia del tipo $E^{1+\alpha}$, donde α es una constante empírica, cuyo valor se encuentra en general comprendido entre -0,1 y +0,1, de acuerdo a las características del reactor y a la posición de irradiación.

La inclusión del parámetro α convierte a la expresión de la integral de resonancia en:

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

(El término $1eV^\alpha$ aparece por la necesidad de incluir una energía de referencia; por razones de comodidad, ésta se toma arbitrariamente igual a la unidad). La fórmula que vincula a las integrales de resonancia $I(\alpha)$ e I_0 resulta:

$$I_0(\alpha) = \left[\frac{I_0 - 2(E_0/E_{Cd})^{1/2}\sigma_0}{(\bar{E}_r)^\alpha} + \frac{2(E_0/E_{Cd})^{1/2}\sigma_0}{(2\alpha + 1)E_{Cd}^\alpha} \right] \cdot 1eV^\alpha \quad (2)$$

E_0 es la energía de referencia de la distribución térmica y \bar{E}_r es la llamada energía media de resonancia, característica de cada nucleido, que por cálculo corresponde a una energía virtual equivalente a la suma ponderada de todas las resonancias. Cuando la energía de referencia es 0,025 eV (energía correspondiente a la velocidad más probable para una distribución de neutrones térmicos a T = 293, 2 K) y la energía de corte de cadmio es 0,55 eV, la expresión numérica pasa a ser:

$$I_0(\alpha) = \left[\frac{I_0 - 0,429\sigma_0}{(\bar{E}_r)^\alpha} + \frac{0,429\sigma_0}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right] \cdot 1eV^\alpha$$

Algunos autores (Jovanovic y colaboradores, 1985; De Corte y Hoste, 1989) han sostenido la importancia de considerar las desviaciones del comportamiento ideal del flujo epitérmico en el análisis por acti-

vación paramétrico, donde los cálculos se realizan a partir de las relaciones entre las actividades de los nucleidos de interés y comparadores simples¹, a través de sus constantes nucleares. Por otro lado, Montoya y colaboradores (1999) demostraron que los errores son fuertemente dependientes del comparador elegido, con lo cual no es imprescindible en análisis por activación contar con el valor de α .

No obstante, el aspecto más relevante, prácticamente soslayado o 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 (integral de resonancia/sección eficaz) existentes en la literatura serían cuestionables, en tanto no se haya caracterizado adecuadamente el espectro en la posición de irradiación.

El reactor RA-6 y la caracterización de sus posiciones de irradiación

El reactor RA-6 es un reactor de tipo piletta, de 500 kW de potencia. El flujo térmico máximo, que depende de la configuración particular del núcleo, varía entre $\sim 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ en la parte central a $\sim 2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ en la periferia. El flujo rápido en el núcleo es aproximadamente $3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. El núcleo, de configuración variable, está formado por elementos combustibles de tipo MTR (Material Testing Reactor) y la refrigeración se realiza con agua natural desmineralizada, que hace también las veces de moderador.

Existen tres tipos de posiciones de irradiación: la columna térmica, los conductos de irradiación y las posiciones de acceso directo.

La columna térmica está constituida por bloques de grafito. Una parte se encuentra dentro del tanque del reactor (columna térmica interna, CTI) y la otra fuera (columna térmica externa, CTE). La CTI tiene accesos para el sistema neumático de transferencia de muestras y está en contacto con la grilla y la CTE tiene cinco conductos con tapones de grafito con espacios portamuestras.

Los conductos de irradiación son cinco; tres de ellos nacen en el tanque del reactor y atraviesan el blindaje de hormigón que rodea dicho tanque, los dos restantes, para acceder a flujos mayores, nacen en la grilla y atraviesan el tanque y el blindaje de hormigón.

Las posiciones de acceso directo son las cajas de irradiación, el sistema neumático y las espadas que penetran entre las placas de los elementos combustibles. Las cajas de irradiación son cajas vacías, idénticas a las que contienen a los elementos combustibles.

En el Reactor RA-6 es posible medir con precisión los tiempos de irradiación usando alguna de las posiciones en las que están ubicados los cabezales del sistema neumático. Hasta 1996, las posiciones disponibles eran dos, una ubicada en la columna térmica interna (CTI) y la otra en la periferia del núcleo (D8) que ya había sido empleada para la determinación de secciones eficaces (Salas Bacci, 1991; Furnari y colaboradores, 1994; Cohen y colaboradores, 1996a). A partir de la realización de un trabajo más amplio, que involucraba la medición de secciones eficaces de reacciones umbral inducidas sobre elementos livianos (Arribére, 1997), se colocó un cabezal del sistema neumático en una caja de irradiación (F5) del centro del núcleo. De esta forma fue posible comparar las desviaciones del flujo rápido, con respecto a un espectro de fisión, en esta última posición y en D8.

La tasa de activación por núcleo con neutrones de fisión, para una reacción umbral, está dada por:

$$R_u = \int_0^{\infty} \sigma_r(E) \Phi_r^f(E) dE = \int_0^{\infty} \sigma_r(E) \phi_r \chi(E) dE = \bar{\sigma}_r \phi_r \int_0^{\infty} \chi(E) dE = \bar{\sigma}_r \phi_r$$

¹ Comparador es un elemento que posee al menos un isótopo con características nucleares favorables y puede ser empleado con fines de estandarización. La masa incógnita se determina a partir de la relación entre la actividad inducida sobre el elemento investigado y la inducida en el comparador.

Las igualdades anteriores son válidas para un flujo de neutrones de fisión y con la sección eficaz definida por la ecuación (1). El límite inferior de integración de las dos primeras integrales no es cero, formalmente, sino que es el correspondiente a la energía umbral de la reacción, pero de acuerdo a la definición $\bar{\sigma}_r$, sí lo es en la tercera. A partir de esta ecuación es posible calcular ϕ_r según:

$$\phi_r = \frac{C \lambda t_m PA}{m \theta N_A i_E a_E \epsilon_E \bar{\sigma}_r (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} (1 - e^{-\lambda t_m})}$$

donde

C: velocidad de conteo (N° de cuentas netas del pico medido dividido por el tiempo vivo de medición)

λ : constante de desintegración del radionucleido

PA: masa atómica relativa del elemento

m: masa del elemento presente en la muestra

θ : abundancia isotópica del precursor de la irradiación

N_A : número de Avogadro

i_E : probabilidad de emisión de la radiación medida

a_E : factor de atenuación de la radiación medida

ϵ_E : eficiencia del detector, para la energía de la radiación medida y la distancia de medición

$\bar{\sigma}_r$: sección eficaz, promediada sobre un espectro de fisión, para la reacción considerada

t_i : tiempo de irradiación

t_d : tiempo de decaimiento

t_m : tiempo real de medición

Un modo de verificar que el espectro corresponde a uno de fisión es medir " ϕ_r " mediante una serie de reacciones que presentan diferentes umbrales (" ϕ_r " se expresa entre comillas, puesto que ha sido definido para un flujo de fisión y debería ser invariante; las diferencias aparecen cuando se hacen cálculos usando esta hipótesis y la misma no se cumple).

Tanto en D8 como en F5 se irradiaron monitores de flujo rápido de energías umbral efectivas (E_{uef}) comprendidas entre 2,6 MeV y 11,6 MeV mediante el sistema neumático de transferencia de muestras al núcleo. Las reacciones consideradas se presentan en la **Tabla 1**.

Tabla 1. Reacciones umbral utilizadas para caracterizar el flujo rápido

Material	Reacción	Periodo del Producto	E_{uef} [MeV]	$\bar{\sigma}_r$ [mb]
Níquel	$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	$70,82 \pm 0,03$ d	$2,60^1$	111 ± 3
Hierro	$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	$312,0 \pm 0,1$ d	$2,80^1$	$81,7 \pm 2,2$
Titanio	$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	$83,81 \pm 0,01$ d	$4,40^1$	$11,8 \pm 0,4$
Molibdeno	$^{92}\text{Mo}(n,p)^{92m}\text{Nb}$	$10,15 \pm 0,02$ d	$6,00^2$	$7,3 \pm 0,4$
Aluminio	$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	$14,959 \pm 0,001$ d	$6,70^1$	$0,720 \pm 0,025$
Titanio	$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	$1,8208 \pm 0,0042$ d	$6,90^1$	$0,307 \pm 0,011$
Cobalto	$^{59}\text{Co}(n,\alpha)^{56}\text{Mn}$	$2,5785 \pm 0,0002$ h	$7,00^1$	$0,161 \pm 0,007$
Niobio	$^{93}\text{Nb}(n,2n)^{92m}\text{Nb}$	$10,15 \pm 0,02$ d	$10,0^1$	$0,48 \pm 0,04$
Manganeso	$^{55}\text{Mn}(n,2\alpha)^{54}\text{Mn}$	$312,0 \pm 0,1$ d	$11,6^2$	$0,258 \pm 0,013$

¹ Baard y colaboradores, 1989; ² Horibe, 1983

Las características y los parámetros nucleares de los materiales usados como monitores de flujo, así como los detalles experimentales de las determinaciones y los cálculos de los flujos y sus incertidumbres pue-

den ser consultados en el trabajo de Arribére (1997). Los resultados están indicados en la Tabla 2 y en las Figuras 1 y 2.

Tabla 2. Resultados de las mediciones de flujos rápidos en las posiciones de irradiación D8 y F5 del Reactor RA-6.

Reacción	Umbral Efectivo [MeV]	ϕ_r en D8 [$10^{11} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$]	ϕ_r en F5 [$10^{12} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$]
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	2,60	$6,16 \pm 0,41$	$1,874 \pm 0,067$
$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	2,80	$5,95 \pm 0,45$	$1,875 \pm 0,119$
$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	4,40	$6,55 \pm 0,32$	$1,836 \pm 0,082$
$^{92}\text{Mo}(n,p)^{92m}\text{Nb}$	6,00	$6,83 \pm 0,64$	$1,92 \pm 0,14$
$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	6,70	$6,80 \pm 0,32$	$1,896 \pm 0,079$
$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	6,90	$6,66 \pm 0,35$	$1,867 \pm 0,087$
$^{59}\text{Co}(n,\alpha)^{56}\text{Mn}$	7,00	$7,08 \pm 0,42$	-
$^{93}\text{Nb}(n,2n)^{92m}\text{Nb}$	10,0	$6,98 \pm 0,66$	$1,93 \pm 0,19$
$^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$	11,6	$7,61 \pm 0,78$	$1,91 \pm 0,19$

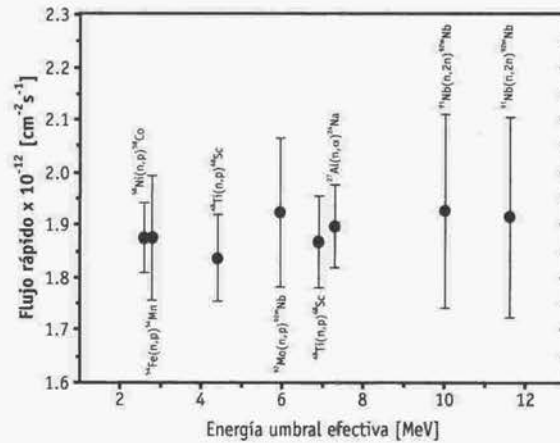


Figura 1: Flujo rápido medido en la posición de irradiación F5.

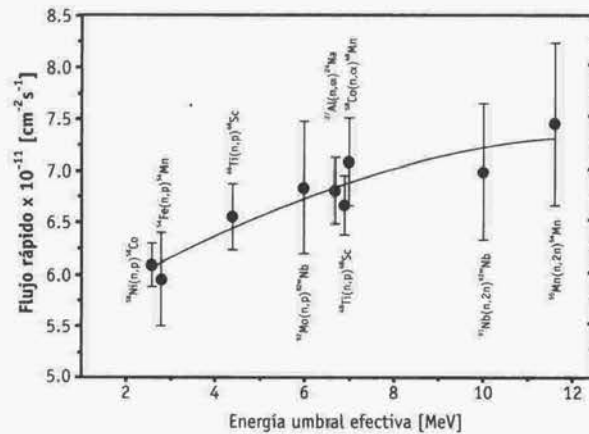


Figura 2: Flujo rápido medido en la posición de irradiación D8.

Los valores de ϕ_r obtenidos en F5 coinciden dentro de las incertidumbres y se puede observar que todos los datos experimentales están comprendidos dentro de la incertidumbre del valor calculado

con la reacción sobre níquel. En D8, aunque la incertidumbre de los resultados para las reacciones de mayor umbral es grande (debido en buena parte a la incertidumbre en la sección eficaz) se nota una tendencia al aumento de ϕ_r con el incremento del umbral. La desviación entre los valores obtenidos con las reacciones de mínimo y máximo umbral, es de aproximadamente 20%. Esta diferencia se da en casos extremos y es posible comparar tasas de producción de reacciones con neutrones rápidos utilizando monitores con energías umbral similares a la de la reacción de interés. Para fines analíticos la posición de irradiación es aceptable, siempre que se tomen las precauciones correspondientes. No obstante, la posición F5, aún considerando la necesidad de cambiar el cabezal de irradiación para cada una de las determinaciones y la limitación del tiempo de irradiación que impone el alto flujo térmico en el núcleo, es la más adecuada para la determinación de secciones eficaces de reacciones umbral.

La posibilidad de caracterización del flujo epitérmico en las posiciones de irradiación del reactor RA-6 para la determinación de las constantes nucleares de activación se encontró durante varios años limitada por las dificultades que representaba la medición del parámetro α . Los métodos publicados (De Corte y colaboradores, 1981; Cohen y colaboradores, 1996b) son engorrosos y requieren la irradiación de al menos tres monitores de flujo o, alternativamente, dos monitores irradiados en condiciones diferentes: bajo el espectro neutrónico completo y utilizando exclusivamente la componente epitérmica, mediante absorbedores de cadmio. Adicionalmente, y dependiendo del procedimiento adoptado, la precisión de los resultados es regular o muy pobre y sólo puede ser aceptable para las correcciones aplicables en análisis por activación.

Un desarrollo reciente (Cohen y colaboradores, 2005a) demostró que, para algunos nucleidos específicamente seleccionados, α puede determinarse en forma simple, a través de una única irradiación de dos monitores bajo cobertura de cadmio, con muy buena precisión. Sobre esta base, el estudio teórico permitió seleccionar al par $^{96}\text{Zr} - ^{198}\text{Au}$ para efectuar las mediciones de este parámetro.

La Tabla 3 muestra los valores de las mediciones de α determinados en la posición F5, del núcleo del reactor, mientras que en la Tabla 4 se encuentran los valores correspondientes a una posición periférica, I6.

Tabla 3. Determinación de α en la posición F5 del reactor RA-6

Medición	Fecha	Valor	Promedio
1	11-08-2004	-0,0214	
2	20-10-2004	-0,0233	-0,0233 \pm 0,0029
3	18-11-2004	-0,0255	
4	19-11-2004	-0,0231	

A lo largo de varios meses de seguimiento, los resultados indican una significativa constancia, que tendería a demostrar que α en una posición de irradiación depende solamente de la configuración particular del núcleo del reactor, en contra de la opinión de Bode y colaboradores (1992) quienes sostienen que tanto este parámetro como f (relación entre flujos térmico y epitérmico) pueden variar sustantivamente entre irradiaciones.

Los valores de α , pequeños en valor absoluto, muestran que las características de ambas posiciones de irradiación son enteramente favorables para la determinación de datos nucleares relacionados con la activación epitérmica.

Como resulta lógico suponer, las diferencias entre $I_0(\alpha)$ y $Q_0(\alpha)$ con respecto a I_0 y Q_0 , cuyos valores son los que deben determinarse para que su carácter sea universal, son menores cuanto menor sea el valor de α . En este caso, las diferencias menores implican incertidumbres más bajas, por propagación de errores, en los datos finales.

Tabla 4. Determinación de α en la posición I6 del reactor RA-6

Medición	Fecha	Valor	Promedio
1	17-08-2004	0,0254	
2	22-10-2004	0,0283	0,0267 \pm 0,0015
3	29-10-2004	0,0265	

La determinación de constantes nucleares y sus aplicaciones

Las reacciones umbral inducidas en los reactores nucleares tienen importancia en diversos campos de la tecnología nuclear. En análisis por activación implican: a) opciones de determinación para los elementos en los que las reacciones de captura presentan problemas de detección de sus productos, o son directamente no aplicables; b) interferencias para las reacciones de captura, cuando conducen al mismo radionucleido; c) alternativas de validación de los métodos basados en las reacciones de captura. Las reacciones umbral tienen también aplicación en la producción de trazadores: a partir de reacciones (n,p) y (n, α), principalmente, es posible obtener radionucleidos con alta actividad específica. En tecnología de reactores, reacciones de diferentes umbrales se emplean, con el auxilio de técnicas de deconvolución, en la determinación de la forma del espectro de neutrones rápidos.

La evaluación de cualquier reacción umbral depende del conocimiento de su sección eficaz, promediada sobre un espectro de fisión. En el Laboratorio de Análisis por Activación Neutrónica del Centro Atómico Bariloche se han efectuado, a partir de la caracterización del flujo rápido en las posiciones de irradiación, numerosas determinaciones de estas secciones eficaces para reacciones de interés donde los datos eran escasos o no existentes. La metodología general aplicada ha sido descrita en trabajos anteriores (Arribére, 1997; Suárez y colaboradores, 1997a y 1997b; Ribeiro Guevara, 2001). Los campos de aplicación y la nómina, con carácter no excluyente, comprenden:

- **Aplicaciones analíticas:** determinaciones para la utilización del germanio como monitor de flujo integral (Furnari y Cohen, 1994; Furnari y colaboradores, 1994; Cohen y colaboradores, 1996a; Furnari y colaboradores, 1996; Furnari y colaboradores, 1997); evaluación de reacciones umbral inducidas sobre elementos livianos para el desarrollo de métodos de validación y cálculo de interferencias (Arribére, 1997; Arribére y colaboradores, 1999 y 2000); evaluación de interferencias por reacciones umbral sobre elementos de transición (Salas Bacci, 1991; Suárez y colaboradores, 1997b).
- **Dosimetría neutrónica:** determinación de secciones eficaces para reacciones de alto umbral energético (Arribére y colaboradores, 2003).
- **Aspectos generales de la tecnología nuclear:** determinación de secciones eficaces de reacciones umbral inducidas sobre escandio (Suárez y colaboradores, 1997b); níquel (Arribére y colaboradores, 2001); zinc (Cohen y colaboradores, 2005b); determinación de secciones eficaces en pares isoméricos discriminando aportes entre estados (Ribeiro Guevara, 2001; Ribeiro Guevara y colaboradores, 2002).

Han sido ya mencionados los estudios previos destinados tanto a la caracterización del flujo epitérmico en reactores como a evaluar la influencia del parámetro α en análisis por activación (Cohen y colaboradores, 1996b; Montoya y colaboradores, 1997). La experiencia operativa del Laboratorio de Análisis por Activación Neutrónica, avalada por la participación en múltiples ejercicios internacionales de intercomparación de resultados analíticos, tiende a demostrar que no resulta específicamente necesaria la determinación de α cuando se usa el análisis sobre la base de la irradiación con flujos predominantemente térmicos y en las posiciones del reactor RA-6 corrientemente empleadas.

Las consideraciones anteriores no excluyen la necesidad de determinar datos nucleares más confiables

en la región epitérmica, sobre todo si se utiliza la activación exclusivamente con neutrones de ese rango de energías. A partir del desarrollo del nuevo método para la medición de α (Cohen y colaboradores, 2005) se ha podido demostrar que las características de las posiciones corrientemente empleadas son muy favorables para la determinación de integrales de resonancia y cocientes Q_0 . De las posiciones estudiadas, la posición F5 es la más conveniente, puesto que el flujo epitérmico es allí mayor en valor absoluto.

Tal como está indicado en la fórmula (2), la determinación de I_0 a partir de la medición de $I_0(\alpha)$ requiere el conocimiento de \bar{E}_r , la energía efectiva de resonancia. El método corrientemente empleado para la determinación de energías efectivas de resonancia fue desarrollado por Moens y colaboradores (1979), en el que se obtiene por cálculo, a través de los parámetros de resonancia del precursor, una expresión aproximada, únicamente válida para valores de \bar{E}_r bajos y/o α cercanos a cero. Sin embargo, no es ésta la principal objeción que puede plantearse al método, pues el problema principal radica en el hecho de que los parámetros de resonancia no pueden ser discriminados cuando existen estados isoméricos. En consecuencia, los valores actuales de energías efectivas de resonancia excluyen la posibilidad de su aplicación para los casos de activación que conducen a nucleidos metaestables, como así tampoco a los fundamentales cuando la contribución de la transición isomérica es menor que el 100 % o cuando el periodo del isómero no es mucho más corto que el de su hija.

Con el objeto de superar los inconvenientes mencionados en el párrafo anterior se está trabajando en el desarrollo de un método para la determinación experimental de \bar{E}_r (Segovia, 2005). Se proyecta, sobre la base de los valores medidos para \bar{E}_r con este nuevo método, determinar valores de integrales de resonancia y cocientes Q_0 para varias reacciones nucleares. Se encuentran entre ellas las que conducen al par isomérico $^{71m}\text{Zn} - ^{71}\text{Zn}$, para las cuales no hay datos publicados y sólo se dispone de valores de trabajo (Cohen y colaboradores, 2005b) y otras dos frecuentemente usadas en análisis por activación, $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116m1}\text{In}$ y $^{109}\text{Ag}(n,\gamma)^{110m}\text{Ag}$, donde se espera mejorar los valores existentes.

Conclusiones

La disponibilidad de datos nucleares de activación en reactores nucleares, que es insuficiente en muchos casos, debería ser sometida a exhaustiva revisión en aquellos otros casos donde existen valores publicados. En este estado de situación, es necesaria la generación de nuevos datos, de confiabilidad probada. El empleo de una rigurosa metodología, aplicada a todos los pasos de las determinaciones, y la adecuada caracterización del espectro de neutrones en la posición de irradiación elegida, son requisitos indispensables en la consecución de este objetivo.

Referencias

- ARRIBÉRE, M. A. (1997) Tesis Doctoral. Instituto Balseiro, Universidad Nacional de Cuyo, Argentina.
- ARRIBÉRE, M. A.; RIBEIRO GUEVARA, S.; KESTELMAN, A. J.; COHEN, I. M. (1999) *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles* 241, 25.
- ARRIBÉRE, M. A.; COHEN, I. M.; KESTELMAN, A. J.; RIBEIRO GUEVARA, S. (2000) *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles* 244, 417.
- ARRIBÉRE, M. A.; RIBEIRO GUEVARA, S.; SUAREZ, P. M.; KESTELMAN, A. J. (2001) *Nucl. Sci. Eng.* 139, 24.
- ARRIBÉRE, M. A.; RIBEIRO GUEVARA, S.; KOROCHINSKY, S. A.; BLOSTEIN, J.J.; KESTELMAN, A. J. (2003) *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles* 256, 505.
- BAARD, J. H.; ZIPJ, W. L.; NOLTHENIUS, H.J. (1989) *Nuclear Data Guide for Reactor Neutron Metrology*. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands.
- BODE, P.; BLAAUW, M.; OBRUSNIK, I. (1992) *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles* 157, 301.
- COHEN, I. M.; KESTELMAN, A. J.; FURNARI, J. C.; ARIBÉRE, M. A. (1996a) *J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters*, 212, 353.
- COHEN, I. M.; FURNARI, J. C.; MONTOYA, E. H.; ARIBÉRE, M. A.; KESTELMAN, A. J.; MENDOZA, P.; TORRES, B. (1996b) *Proc. Second International k0 Users Workshop*. Ljubljana, Slovenia, 30 September - 3 October.
- COHEN, I. M.; FURNARI, J. C. (1999) *Appl. Rad. Isotopes* 50, 743.
- COHEN, I. M.; ARRONDO, M.; ARIBÉRE, M. A.; FORNACIARI ILJADICA, M. C. (2005a) Enviado para su publicación en *Nucl. Sci. Eng.*
- COHEN, I. M.; RIBEIRO GUEVARA, S.; ARIBÉRE, M. A.; FORNACIARI ILJADICA, M. C.; KESTELMAN, A. J.; OHACO, R. A.; SEGOVIA, M. S.; YUNES, A. N. (2005b) enviado para su publicación en *Radiochimica Acta*.
- DE CORTE, F.; SORDO EL-HAMMAMI, K.; MOENS, L.; SIMONITS, A.; DE WISPELAERE, A.; HOSTE, J. (1981) *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 62, 209.
- DE CORTE, F.; HOSTE, J. (1989) *Isotopenpraxis* 25, 269.
- FURNARI, J. C.; COHEN, I. M. (1994) *Biological Trace Element Research* 43-5, 503.
- FURNARI, J. C.; COHEN, I. M.; KESTELMAN, A. J. (1994) *Appl. Rad. Isotopes* 45, 573.
- FURNARI, J. C.; COHEN, I. M.; ARIBÉRE, M. A.; KESTELMAN, A. J. (1997) *Proceedings of the 4th Meeting on Nuclear Applications (en CD ROM)*; Poços de Caldas, Brasil; 18 - 22 de agosto de 1997.
- FURNARI, J. C.; COHEN, I. M. (1998) *Appl. Rad. Isot.* 49, 1523.
- HÖGDAHL, O. T. (1962) *Rept. MMPP-226-1*.
- HORIBE, O. (1983) *Ann. Nucl. Energy* 10, 359.
- JOVANOVIĆ, S.; DE CORTE, F.; SIMONITS, A.; MOENS, L.; VUKOTIĆ, P.; ZEJNILOVIĆ, R.; HOSTE, J. (1985) *Proceedings of the First Balkan Conference on Activation Analysis*, p. 19 - 24. INIS - mf - 11126.
- MOENS, L.; DE CORTE, F.; SIMONITS, A.; DE WISPELAERE, A.; HOSTE, J. (1979) *J. Radioanal. Chem.* 52, 379.
- MONTOYA R, E. H.; COHEN, I. M.; MENDOZA HIDALGO, P.; TORRES CHAMORRO, B.; BEDREGAL SALAS P. (1999) *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles* 240, 475.
- RIBEIRO GUEVARA, S. (2001) Tesis Doctoral. Instituto Balseiro, Universidad Nacional de Cuyo, Argentina.
- RIBEIRO GUEVARA, S.; ARIBÉRE, M. A.; KESTELMAN, A. J. (2002) *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles* 254, 557.
- RYVES, T. B. (1969) *Metrologia* 5, 119.
- SALAS BACCI, A. (1991) Tesis de Maestría. Universidad Mayor de San Andrés, La Paz, Bolivia.
- SEGOVIA, M. S. (2005) Tesis de Maestría. Facultad Regional Buenos Aires, Universidad Tecnológica Nacional, Argentina.
- STOUGHTON, R. W.; HALPERIN, J. (1959) *Nucl. Sci. & Eng.* 6, 100.
- SUAREZ, P. M.; ARIBÉRE, M. A.; RIBEIRO GUEVARA, S.; KESTELMAN, A. J. (1997a) *Nucl. Sci. Eng.* 127, 245.
- SUAREZ, P. M.; ARIBÉRE, M. A.; KESTELMAN, A. J.; COHEN, I. M. (1997b) *Radiochimica Acta* 78, 11.
- WESTCOTT, C. H.; WALKER, W. H.; ALEXANDER, T. K. (1958) *Proc. 2nd. Int. Conf. in Peaceful Uses of Atomic Energy - Geneva Vol. 16, Session A11*, p. 202; Vienna, IAEA.