

Carrera de Doctorado en Ingeniería Nuclear

Determinación de secciones eficaces de reacciones con neutrones de reactor discriminando los aportes de los estados metaestable y fundamental

Sergio Ribeiro Guevara

Tesis presentada ante el Instituto Balseiro, Universidad Nacional de Cuyo y Comisión Nacional de Energía Atómica, para optar por el título de Doctor en Ingeniería Nuclear

**José Lolich
Director**

**Abraham J. Kestelman
Asesor Científico**

**Sergio Ribeiro Guevara
Doctorando**

Agosto de 2001

Índice General

Índice de tablas	v
Índice de figuras	ix
Resumen	xv
Abstract	xvii
1. Introducción	1
1.1 Reacciones nucleares con neutrones	2
1.2 Secciones eficaces	4
1.3 Neutrones de reactor	7
1.3.1 El reactor RA-6	7
1.3.2 El espectro de fisión	9
1.4 Espectrometría γ	12
1.4.1 Eficiencia del sistema de medición	13
1.4.2 Autoabsorción	20
2. Isómeros: estado metaestable y fundamental generados por reacciones nucleares. Metodología de cálculo utilizada para determinar sus secciones eficaces	23
2.1 Isómeros	23
2.1.1 Decaimiento β de los estados metaestables	25
2.1.2 Decaimiento electromagnético de los estados Metaestables	26
2.1.3 Isómeros estudiados en este trabajo	27
2.2 Reacciones nucleares con neutrones: ecuaciones	36
2.2.1 Reacciones que generan un solo producto radioactivo	36
2.2.2 Reacciones que generan dos isómeros	38
2.2.3 Reacción con neutrones que genera dos isómeros, decayendo con emisiones γ no instantáneas	42
2.2.4 Incertezas de las mediciones	49

2.2.5	Determinación de la suma de secciones eficaces de producción de estados isoméricos	52
3.	Secciones eficaces de reacciones con neutrones promediadas en flujo de fisión que generan dos estados isoméricos; determinaciones efectuadas	57
3.1	Reacciones $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$	58
3.1.1	Ecuaciones	59
3.1.2	Mediciones	61
3.1.3	Resultados	63
3.2	Reacciones $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{54}\text{Fe}^f$ y $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{54}\text{Fe}^m$	64
3.2.1	Ecuaciones	66
3.2.2	Mediciones	68
3.2.3	Resultados	71
3.3	Reacciones $^{46}\text{Sc}(n,2n)^{45}\text{Sc}^f$ y $^{46}\text{Sc}(n,2n)^{45}\text{Sc}^m$	74
3.3.1	Ecuaciones	74
3.3.2	Mediciones	75
3.3.3	Resultados	77
3.4	Reacciones $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$ y $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$	78
3.4.1	Ecuaciones	80
3.4.2	Mediciones	80
3.4.3	Resultados	83
4.	Evaluación del método de las rectas	87
4.1	Análisis de las ecuaciones	87
4.1.1	Ecuaciones de aplicación del método de las rectas cuando la vida media de ambos isómeros es igual	89
4.1.2	Análisis paramétrico	90
4.2	Evaluación de la aplicación del método de las rectas en los casos estudiados	95
5.	Resumen y conclusiones	99

Agradecimientos	105
Referencias	107
Publicaciones	111

Índice de Tablas

Tabla 1.1.1	Q y Eu de algunas reacciones nucleares	3
Tabla 1.3.1	Evaluación del espectro neutrónico rápido en las posiciones de irradiación F5 y D8 del núcleo del reactor RA-6 Medición del flujo rápido utilizando monitores de diferente energía umbral efectiva	10
Tabla 2.1.1	Parámetros del decaimiento del $^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Co}^m$	28
Tabla 2.1.2	Parámetros del decaimiento del $^{53}\text{Fe}^f$ y $^{53}\text{Fe}^m$	31
Tabla 2.1.3	Parámetros del decaimiento del $^{44}\text{Sc}^f$ y $^{44}\text{Sc}^m$	33
Tabla 2.1.4	Parámetros del decaimiento del $^{89}\text{Zr}^f$ y $^{89}\text{Zr}^m$	35
Tabla 2.2.1	Evaluación de los parámetros de la ecuación (2.2.19) para diferente tiempos de irradiación, decaimiento y medición	47
Tabla 2.2.2	Determinación de $\sigma_f + \sigma_m g$ en reacciones que se estudian en este trabajo Análisis de las condiciones de cálculo en función de los tiempos de irradiación, decaimiento y medición	55
Tabla 3.1	Parámetros característicos del monitor utilizado en las determinaciones: $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m}$	58
Tabla 3.1.1	Isótopos del níquel: reacciones con neutrones rápidos	59
Tabla 3.1.2	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$ Ajuste lineal, utilizando el método de Deming, de la evolución temporal de los parámetros X e Y	63

Tabla 3.1.3	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$ Secciones eficaces determinadas en cada muestra utilizando los resultados del ajuste lineal	64
Tabla 3.1.4	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$ Resultados	64
Tabla 3.2.1	Isótopos del hierro: reacciones con neutrones rápidos	65
Tabla 3.2.2	Material a estudiar: hierro enriquecido en el isótopo ^{54}Fe	66
Tabla 3.2.3	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^f$ y $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^m$ Ajuste lineal, utilizando el método de Deming, de la evolución temporal de los parámetros X e Y	71
Tabla 3.2.4	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^f$ y $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^m$ Resultados	72
Tabla 3.2.5	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^f$ y $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^m$ Resultados finales	74
Tabla 3.3.1	Isótopos del escandio: reacciones con neutrones rápidos	74
Tabla 3.3.2	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^f$ y $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$ Resultados	77
Tabla 3.4.1	Isótopos del circonio: reacciones con neutrones rápidos	78
Tabla 3.4.2	Material a estudiar: circonio enriquecido en el isótopo ^{90}Zr	79

Tabla 3.4.3	Autoatenuación de radiación γ en la muestra medida Factores de corrección	81
Tabla 3.4.4	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$ y $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$ Ajuste lineal, utilizando el método de Deming, de la evolución temporal de los parámetros X e Y	83
Tabla 3.4.5	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$ y $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$ Resultados	84
Tabla 3.4.6	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$ y $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$ Resultados finales	85
Tabla 4.1	Evaluación de las condiciones de aplicación del método de las rectas Resumen	94
Tabla 4.2	Evaluación de las condiciones de aplicación del método de las rectas Parámetros de las reacciones estudiadas	96
Tabla 5.1	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de ^{235}U Condiciones de aplicación del método de las rectas en los casos estudiados	101
Tabla 5.2	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de ^{235}U Resultados	103

Índice de Figuras

Figura 1.3.1	Configuración típica del núcleo del reactor nuclear RA-6	8
Figura 1.3.2	Evaluación del espectro neutrónico rápido en las posiciones de irradiación F5 y D8 del núcleo del reactor RA-6 Medición del flujo rápido utilizando monitores de diferente energía umbral efectiva	11
Figura 1.4.1	Dispositivo de medición de radiación γ Ubicación relativa de la fuente radioactiva y el detector	15
Figura 2.1.1	Primeros niveles energéticos del núcleo ^{89}Y Esquema de decaimiento del estado metaestable	23
Figura 2.1.2	Estados isoméricos del núcleo ^{58}Co Esquema de decaimiento del estado fundamental y del metaestable	28
Figura 2.1.3	Esquema de decaimiento de los niveles excitados del ^{58}Fe alimentados por decaimiento del $^{58}\text{Co}^f$	29
Figura 2.1.4	Estados isoméricos del núcleo ^{53}Fe Esquema de decaimiento del estado fundamental y del metaestable	29
Figura 2.1.5	Esquema de decaimiento de los niveles excitados del ^{53}Mn alimentados por decaimiento del $^{53}\text{Fe}^f$	30
Figura 2.1.6	Esquema de decaimiento de los niveles excitados del $^{53}\text{Fe}^f$ alimentados por decaimiento del $^{53}\text{Fe}^m$	30
Figura 2.1.7	Estados isoméricos del núcleo ^{44}Sc Esquema de decaimiento del estado fundamental y del metaestable	31
Figura 2.1.8	Esquema de decaimiento de los niveles excitados del ^{44}Ca alimentados por decaimiento del $^{44}\text{Sc}^f$	32
Figura 2.1.9	Esquema de decaimiento de los niveles excitados	

	del ^{44}Ca alimentados por decaimiento del $^{44}\text{Sc}^m$	32
Figura 2.1.10	Estados isoméricos del núcleo ^{89}Zr Esquema de decaimiento del estado fundamental y del metaestable	33
Figura 2.1.11	Esquema de decaimiento de los niveles excitados del $^{89}\text{Y}^{f+m}$ alimentados por decaimiento del $^{89}\text{Zr}^f$	34
Figura 2.1.12	Esquema de decaimiento de los niveles excitados del $^{89}\text{Y}^{f+m}$ alimentados por decaimiento del $^{89}\text{Zr}^m$	34
Figura 2.2.1	Esquema de una reacción nuclear con neutrones cuyo producto no es estable y tiene un estado metaestable	38
Figura 2.2.2	Esquema de una reacción nuclear con neutrones cuyo producto no es estable y tiene un estado metaestable, y el estado fundamental del producto decae a un estado metaestable	43
Figura 3.1.1	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$	62
Figura 3.2.1	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^f$ y $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^m$	70
Figura 3.3.1	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^f$ y $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$	76
Figura 3.4.1	Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$ y $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$	82
Figura 4.1	Análisis paramétrico del método de las rectas Variación del error del parámetro de ajuste a en función de la relación de secciones eficaces $L > 0, \lambda_m > \lambda_f$	91
Figura 4.2	Análisis paramétrico del método de las rectas Variación del error del parámetro de ajuste a en	

función de la relación de secciones eficaces
 $L < 0, \lambda_m < \lambda_f$

92

**Para Daniela, para Muriel,
para Pablo, y para Simón**

Resumen

Las secciones eficaces de producción de reacciones nucleares son parámetros fundamentales de los distintos isótopos. En este trabajo se ha desarrollado una metodología de cálculo, *el método de las rectas*, que permite determinar simultáneamente las secciones eficaces de producción del estado excitado y del fundamental de reacciones nucleares que generen un estado isomérico además del fundamental. Para ello se mide la evolución temporal de la emisión γ asociada al decaimiento del estado fundamental. Con las mediciones de la emisión γ que se estudia, efectuadas con diferentes tiempos de decaimiento, y los tiempos de irradiación, decaimiento y medición, es posible calcular dos variables que tienen una relación lineal. Los valores de estas variables pueden, por lo tanto, ajustarse por una función lineal, obteniéndose dos parámetros de ajuste que están relacionados con las secciones eficaces de producción de los estados fundamental y metaestable.

El método de las rectas se puede aplicar en la determinación de secciones eficaces de cualquier reacción nuclear que genere un isómero, sin importar la energía o el tipo de partícula incidente. Una ventaja del método que estudiamos respecto de los usuales se encuentra en que, al no ser necesario medir emisiones asociadas al decaimiento del estado metaestable, permite la determinación de su sección eficaz de producción aunque no tenga emisiones γ asociadas a su decaimiento. O también si, teniendo emisiones γ , su medición es difícil por ser pequeña su producción o por plantear dificultades analíticas. Debido a que en el método de las rectas no es necesario establecer condiciones experimentales que dependen de los valores relativos de las vidas medias de los estados fundamental y metaestable, es posible por este método determinar la sección eficaz de producción del estado fundamental aun en los casos en que las vidas medias de ambos estados no difieren sustancialmente; o sea en aquellos casos en que no es lícito considerar que uno de los estados a decaído completamente. Empleando el método directo en los casos en que la vida media del estado fundamental es mucho mayor que la del metaestable sólo es posible determinar la sección eficaz de la reacción suma de la producción de ambos estados, pero para determinar la de producción del fundamental es necesario conocer la del metaestable. Aplicando el método de las rectas es posible determinar la sección eficaz de producción de ambos estados sin esta última condición. La principal limitación del método la encontramos en la necesidad de que las condiciones analíticas permitan medir la emisión γ que estudiamos con diferentes tiempos de decaimiento. Por otra parte, del análisis de las ecuaciones en que se sustenta el método surge que hay un conjunto de condiciones en que el método no es aplicable, o su aplicación conlleva incertezas muy grandes, mientras que otro conjunto de condiciones resultan óptimas.

Se aplicó el método de las rectas al estudio de cuatro reacciones umbral con neutrones, determinándose las secciones eficaces promediadas en flujo de fisión térmica de

²³⁵U. Las determinaciones se efectuaron utilizando como monitor de flujo la reacción $^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{f+m}}$ ($\sigma=111 \pm 3$ mb; Baard et al., 1989). Las reacciones estudiadas plantean diferentes casos en la aplicación del método, tanto en las condiciones analíticas como en las condiciones intrínsecas de aplicación del método. Estas reacciones son: $^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{f}}$ y $^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{m}}$, $^{54}\text{Fe}(\text{n,2n})^{53}\text{Fe}^{\text{f}}$ y $^{54}\text{Fe}(\text{n,2n})^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$, $^{46}\text{Sc}(\text{n,2n})^{45}\text{Sc}^{\text{f}}$ y $^{46}\text{Sc}(\text{n,2n})^{45}\text{Sc}^{\text{m}}$, y $^{90}\text{Zr}(\text{n,2n})^{89}\text{Zr}^{\text{f}}$ y $^{90}\text{Zr}(\text{n,2n})^{89}\text{Zr}^{\text{m}}$. El primer caso tiene secciones eficaces de producción relativamente grandes, la vida media del fundamental es mucho mayor que la del metaestable y es posible medirlas utilizando el monitor de flujo elegido como monitor interno. Los valores obtenidos son $\sigma_{\text{f}} = 74.8 \pm 2.3$ mb y $\sigma_{\text{m}} = 36.6 \pm 1.2$ mb. Las secciones eficaces de captura térmica de los productos de esta reacción son significativamente grandes. Por lo tanto, en aplicaciones del níquel como monitor de flujo rápido en un campo con componente térmica y epitérmica, y cuando su irradiación es prolongada, es necesario corregir los resultados por el “quemado” de ambos productos. Para efectuar esta corrección en ambos productos es necesario conocer la sección eficaz de producción de los dos isómeros. No se han encontrado referencias de mediciones previas a este trabajo de la sección eficaz de la reacción $^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{f}}$, y sólo unas pocas de la reacción $^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{m}}$, con incertezas grandes.

Las reacciones sobre el ^{54}Fe tienen secciones eficaces de producción muy pequeñas, la vida media del estado fundamental es mayor que la del metaestable pero la diferencia es pequeña, y es posible utilizar como monitor interno la reacción $^{54}\text{Fe}(\text{n,p})^{54}\text{Mn}$ como control. Las principales dificultades para su estudio se encuentran en las condiciones analíticas, pero el método de las rectas se aplica en condiciones óptimas, lo que permite determinar secciones eficaces muy pequeñas. Los valores obtenidos son $\sigma_{\text{f}} = 1.14 \pm 0.13$ μb y $\sigma_{\text{m}} = 0.52 \pm 0.16$ μb .

Las reacciones $^{46}\text{Sc}(\text{n,2n})^{45}\text{Sc}^{\text{f}}$ y $^{46}\text{Sc}(\text{n,2n})^{45}\text{Sc}^{\text{m}}$ se producen con secciones eficaces relativamente grandes, y la vida media del estado fundamental es mucho menor que la del metaestable. En este caso es posible determinar en forma directa la sección eficaz de producción del estado metaestable, siendo este valor $\sigma_{\text{m}} = 19.9 \pm 3.0$ mb, consistente con el obtenido con el método de las rectas. Los valores obtenidos son $\sigma_{\text{f}} = 27.3 \pm 1.3$ mb y $\sigma_{\text{m}} = 22.0 \pm 2.7$ mb.

Las reacciones $^{90}\text{Zr}(\text{n,2n})^{89}\text{Zr}^{\text{f}}$ y $^{90}\text{Zr}(\text{n,2n})^{89}\text{Zr}^{\text{m}}$ tienen secciones eficaces de producción relativamente pequeñas y la relación de vidas medias de los isómeros es similar a la del caso del ^{58}Ni . En este caso para aplicar el método de las rectas es necesario estudiar una emisión asociada al decaimiento del $^{89}\text{Y}^{\text{m}}$, que no es una emisión instantánea, y por lo tanto es necesario modificar las ecuaciones deducidas para el caso general. No se obtuvieron resultados satisfactorios a través de la aplicación del método de las rectas. Se determinaron en forma directa las secciones eficaces de producción del estado metaestable y de la reacción suma, $^{90}\text{Zr}(\text{n,2n})^{89}\text{Zr}^{\text{f+m}}$. En este caso se puede considerar que la sección eficaz de la reacción $^{90}\text{Zr}(\text{n,2n})^{89}\text{Zr}^{\text{f+m}}$ es igual a la suma de las secciones eficaces de producción de cada estado, y por lo tanto por diferencia podemos determinar la sección eficaz del estado fundamental. Los valores medidos son $\sigma_{\text{f+m}} = 119.6 \pm 3.4$ μb y $\sigma_{\text{m}} = 13.86 \pm 0.40$ μb , mientras que $\sigma_{\text{f}} = 105.8 \pm 3.4$ μb .

Abstract

Cross sections of nuclear reactions are fundamental parameters of the different isotopes. In this work we develop a methodology, *the straight-line method*, which allows simultaneous determination of cross sections for the ground and metastable states of nuclear reactions that generate, besides the ground state, one isomeric state. The method involves the measurement of the time dependent γ emissions associated with the ground state decay. Through these measurements, performed at different time intervals, two variables—that are functions of the irradiation, decay and counting times—and that are linearly correlated, can be calculated. The values obtained for these two variables are fitted with a straight line, and the coefficients obtained have a known relationship with the cross sections of the metastable and ground state.

The straight-line method can be used to determine cross sections of any nuclear reaction that generates two different states, regardless of the type and energy of the incident particle. An advantage of this method is that we do not have to measure emissions associated to the decay of the metastable state, thus allowing for the measurement of the production cross section of this state even if it has no emissions or if the emissions are weak or difficult to measure. Since in the straight-line method it is not necessary to impose experimental conditions which are dependent on the relative values of the isomeric and ground states half lives, it is then possible to determine, by this method, the production cross section for the ground state even in those cases where the assumption that one of the states has decayed completely, cannot be warranted. In cases where the ground state half life is much longer than that of the isomeric state, when employing direct methods, it is only possible to determine the sum cross section for the production of both states; therefore, if the metastable production cross section is known, then it is possible to determine, by subtraction, the ground state production cross section. When using the straight-line method, both cross sections can be determined separately. The main limitation of the method is the need to measure the γ emission associated to the ground state decay at different time intervals. A parametric analysis of the equations associated to the method shows that under certain conditions it is not possible to apply the method, while under other conditions the method delivers optimum results.

The method was applied to the study of four neutron threshold reactions, measuring cross sections averaged over a ^{235}U fission neutron spectrum. The measurements were performed using the monitor reaction $^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{f+m}}$ ($\sigma=111 \pm 3$ mb; Baard et al., 1989). These reactions involve different analytical conditions and different situations in the application of the method. The reactions studied are: $^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{f}}$ and $^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{m}}$, $^{54}\text{Fe}(\text{n,2n})^{53}\text{Fe}^{\text{f}}$ and $^{54}\text{Fe}(\text{n,2n})^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$, $^{46}\text{Sc}(\text{n,2n})^{45}\text{Sc}^{\text{f}}$ and $^{46}\text{Sc}(\text{n,2n})^{45}\text{Sc}^{\text{m}}$, and $^{90}\text{Zr}(\text{n,2n})^{89}\text{Zr}^{\text{f}}$ and $^{90}\text{Zr}(\text{n,2n})^{89}\text{Zr}^{\text{m}}$. The first case has cross sections that are rather large, the half life of the ground state is much longer than that of the metastable state, and the

monitor reaction used is an internal monitor. The values obtained are $\sigma_f = 74.8 \pm 2.3 \text{ mb}$ and $\sigma_m = 36.6 \pm 1.2 \text{ mb}$. The capture cross section of the products $^{58}\text{Co}^f$ and $^{58}\text{Co}^m$ for neutrons in the thermal range, are large. Therefore, when the monitor reaction $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m}$ is used in a neutron flux with thermal component, and when the irradiation time is large, the results have to be corrected by burn-up of both products. To perform the correction, it is necessary to know the production cross section of both isomers. No previous reference to this work informing the cross section of the reaction $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ was found, and few of the reaction $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$, with large uncertainties.

The ^{54}Fe reactions have small cross sections, the half life of the metastable state is slightly longer than that of the ground state, and the reaction $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$ can be used as an internal monitor to check the results. The values obtained are $\sigma_f = 1.14 \pm 0.13 \text{ }\mu\text{b}$ and $\sigma_m = 0.52 \pm 0.16 \text{ }\mu\text{b}$. In this case the main difficulties are associated with the analytical conditions but the method is applied in optimal conditions, allowing for the determination of very small cross sections.

$^{46}\text{Sc}(n,2n)^{45}\text{Sc}^f$ and $^{46}\text{Sc}(n,2n)^{45}\text{Sc}^m$ reactions have relatively large production cross sections, and the ground state half life is much shorter than that of the metastable state. In this case the metastable state production cross section can be determined by usual methods with the results $\sigma_m = 19.9 \pm 3.0 \text{ mb}$, value that is consistent with that obtained applying the straight-line method. The cross sections obtained applying the straight-line method are $\sigma_f = 27.3 \pm 1.3 \text{ mb}$ and $\sigma_m = 22.0 \pm 2.7 \text{ mb}$.

$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$ and $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$ reactions have relatively small production cross sections, and the half life relation of the products is similar to the ^{58}Ni case. To apply the straight-line method in this case, we have to study the gamma emission of the $^{89}\text{Y}^m$. This emission is not instantaneous, and a modification of the general equations was required. The application of the straight-line method did not give satisfactory results. Direct methods were applied to determine the metastable state production cross section and the cross section for the reaction $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^{f+m}$. In this case the cross section of this reaction is equal to the sum of the production cross section for each state, and we can determine the ground state production cross section by subtraction. The values obtained are $\sigma_{f+m} = 119.6 \pm 3.4 \text{ }\mu\text{b}$ and $\sigma_m = 13.86 \pm 0.40 \text{ }\mu\text{b}$, while $\sigma_f = 105.8 \pm 3.4 \text{ }\mu\text{b}$.

1. Introducción

Las secciones eficaces de reacciones nucleares con neutrones son parámetros fundamentales de los materiales de uso nuclear, y están asociadas a la aplicación de diversas técnicas nucleares. Son parámetros característicos de cada isótopo de los distintos elementos, y son una medida de la probabilidad de que al incidir un neutrón de cierta energía cinética en un material se produzca una cierta reacción nuclear. Por lo tanto, en toda circunstancia en que haya interacción de algún material con neutrones, habrá secciones eficaces involucradas.

Sus aplicaciones son muy diversas. Por ejemplo, un buen conocimiento de las secciones eficaces permite optimizar la gestión de combustible de las centrales de producción eléctrica, con el consiguiente impacto económico. En general, el conocimiento de las secciones eficaces permite determinar los productos radioactivos que se generan en un material que se coloca en un campo de neutrones, así como sus emisiones. O, a la inversa, evaluando el espectro de radiación gamma (espectro γ) inducido por la irradiación con neutrones de un cierto material, y conociendo la sección eficaz de las reacciones que se producen, es posible conocer la composición del material estudiado.

Reacciones de tipo umbral (reacciones que sólo son posibles con neutrones de alta energía cinética) de diversos materiales son utilizadas en determinaciones de flujo neutrónico o de fluencia, en la evaluación del espectro energético de un cierto campo de neutrones o en mediciones de dosis absorbida de neutrones rápidos. Este tipo de monitores de flujo es utilizado en los reactores nucleares con diversos propósitos. En particular en la determinación del daño de los materiales estructurales de los reactores nucleares de producción eléctrica, que es un parámetro determinante de la vida útil de la instalación o de sus componentes.

En este trabajo expondremos la medición de las secciones eficaces de algunas reacciones nucleares umbral producidas por neutrones rápidos. Las reacciones que estudiamos tienen la peculiaridad de generar dos isómeros del núcleo producto. Desarrollaremos una metodología de cálculo que permite, siguiendo la evolución temporal del espectro γ emitido por los productos de la reacción, determinar simultáneamente las secciones eficaces de generación de ambos isómeros. Las reacciones nucleares que estudiamos se inducen con neutrones de reactor un reactor de investigación, midiéndose secciones eficaces promediadas en la distribución energética de neutrones generados en la fisión del ^{235}U por neutrones térmicos.

1.1 Reacciones nucleares con neutrones

Los primeros trabajos experimentales sobre la interacción de neutrones con núcleos atómicos que permiten obtener niveles excitados de 8 MeV, se desarrollaron hacia 1935. Fermi y Amaldi por un lado, y Moon y Tillman por otro, trabajaron en la interacción de neutrones de energía cercana a la térmica con núcleos de ^{107}Ag produciendo el isótopo ^{108}Ag , y su decaimiento produciendo ^{108}Cd , una partícula β^- y un neutrino (Burcham, 1979). Estas experiencias mostraron que reacciones con neutrones de energía cercana a la térmica tenían menor probabilidad de ser de dispersión y mayor probabilidad de ser de captura que la que surgía de la aplicación de los modelos desarrollados hasta ese momento. Para explicar estos resultados Niels Bohr propuso en 1936 que estas reacciones se producen con la formación de un estado intermedio, llamado *núcleo compuesto*, conglomerado formado por el núcleo original y la partícula que interactúa con él (Burcham, 1979). Por lo tanto las reacciones de captura 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 una partícula (protón, neutrón, etc.) o rayos γ , pudiendo ocurrir, en principio, todas estas posibilidades. La desintegración del núcleo compuesto sólo depende de sus propiedades, su energía y momento angular, y es independiente de cómo se formó. A la incorporación del neutrón al núcleo original está asociada una energía de excitación del núcleo compuesto que es igual a la energía cinética del neutrón en el sistema centro de masas, mas su energía de unión. Si la energía de excitación es suficientemente grande el núcleo compuesto se podrá desintegrar emitiendo una partícula; la energía necesaria para esta disociación es de alrededor de 8 MeV (Kaplan, 1962).

El núcleo compuesto tiene varios estados excitados con vidas medias diferentes, durante las que permanece, en promedio, en ese estado excitado antes de desintegrarse emitiendo una partícula o un rayo γ . Por lo tanto el núcleo excitado podrá desintegrarse, si su energía de excitación es suficiente y con diferente probabilidad según su vida media, tanto emitiendo partículas (protón, neutrón o α) como radiación γ (Kaplan, 1962).

Aplicando la ley de conservación de energía, separando la energía en reposo y la energía cinética, en una reacción con neutrones sobre un núcleo X (en reposo), con un producto Y emitiendo una partícula y, obtenemos que

$$(E_n + m_n c^2) + M_X c^2 = (E_Y + M_Y c^2) + (E_y + m_y c^2) \quad (1.1.1)$$

M_X	masa del núcleo inicial en reposo
m_n	masa del neutrón en reposo
M_Y	masa del núcleo producto en reposo
m_y	masa de la partícula emitida en reposo
E_n	energía del neutrón incidente
E_Y	energía del núcleo producto
E_y	energía de la partícula emitida

Si denominamos Q al balance de energías cinéticas de la reacción, tenemos que

$$Q = E_Y + E_y - E_n = (M_X + m_n - M_Y - m_y)c^2 \quad (1.1.2)$$

Si Q es positivo la reacción es exoérgica, mientras que si es negativo, es endoérgica. Cuando la reacción es endoérgica, la energía $-Q$ necesaria para excitar el núcleo compuesto lo suficiente para que se desintegre produciendo la reacción que se estudia debe ser provista por la energía cinética del neutrón incidente. El valor mínimo de energía cinética de neutrón necesario para que se produzca la reacción se denomina *energía umbral*. La energía umbral, E_u , tiene la siguiente expresión (Kaplan, 1962):

$$E_u = -Q \left(1 + \frac{m_n}{M_X} \right) \quad (1.1.3)$$

Éste es el tipo de reacciones que estudiamos en este trabajo. En la tabla 1.1.1 se muestran los valores de Q y E_u de las reacciones nucleares que se estudian en este trabajo. Los núcleos producidos en estas reacciones tienen dos isómeros (ver sección 2); en el cálculo de Q y E_u del estado metaestable se agrega la energía de excitación a la del estado fundamental.

Tabla 1.1.1 Q y E_u de algunas reacciones nucleares

Reacción nuclear	Estado fundamental		Estado metaestable	
	Q^a (MeV)	E_u (MeV)	Q^a (MeV)	E_u (MeV)
$^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^{f+m}$	- 11.324	11.58	- 11.595	11.86
$^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^{f+m}$	- 13.378	13.63	- 16.418	16.73
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m}$	+ 0.400	-	+ 0.376	-
$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^{f+m}$	- 11.970	12.10	- 12.557	12.70

^a el valor de Q se determinó con la fórmula 1.1.2, utilizando los valores de masa nuclear de Tuli, 2000

En muchos casos, los núcleos Y producidos en la reacción nuclear no son estables sino que decaen por mecanismos como *captura electrónica*, emisión β^+ o β^- , y emisión γ o *conversión interna* en el caso de decaimiento de los estados metaestables al nivel fundamental. El análisis de la radiación γ asociada a estos decaimientos nos permite estudiar estas reacciones, como veremos mas adelante.

1.2 Secciones eficaces

La sección eficaz de un cierto núcleo se interpreta como la probabilidad de que se produzca un cierto evento en la interacción de un neutrón con ese núcleo. Los eventos posibles se pueden dividir en dispersión elástica y absorción del neutrón, caracterizándose este grupo de reacciones por la formación de un núcleo compuesto como producto de la interacción (ver sección 1.1). Cuando el neutrón es absorbido el decaimiento del núcleo compuesto puede generar:

- ⇒ la emisión de otro neutrón, reacción (n,n') o dispersión inelástica.
- ⇒ la emisión de radiación γ , reacciones (n,γ) .
- ⇒ la emisión de partículas, reacciones (n,p) , (n,d) , (n,α) , $(n,2n)$, $(n,3n)$, etc.
- ⇒ en el caso de algunos pocos núcleos, produciéndose su división en una reacción de fisión nuclear.

Cada una de estas reacciones se produce con una cierta probabilidad, y por lo tanto tiene una sección eficaz asociada.

En forma estricta, la sección eficaz de un cierto evento (σ), producto de la interacción de neutrones con un cierto núcleo, se define como el factor de proporcionalidad entre el número de esos eventos por unidad de tiempo y por unidad de volumen que se producen (φ), y el producto del número de núcleos por unidad de volumen de un material homogéneo (N) y el número de neutrones por unidad de tiempo de un haz que incide perpendicularmente en una superficie de área unitaria de ese material (J) (Beckurtz y Wirtz, 1964). Se supone que el espesor del material que atraviesa el haz de neutrones es suficientemente pequeño como para que la intensidad del haz permanezca constante.

$$\varphi = \sigma N J \quad (1.2.1)$$

De acuerdo a esta definición, expresada en la fórmula (1.2.1), las secciones eficaces tienen unidades de superficie. Como unidad se utiliza el barn (b), que equivale a 10^{-24} cm^2 .

La sección eficaz de una cierta reacción nuclear es fuertemente dependiente de la energía cinética del neutrón incidente, y, como se vio en la sección 1.1, algunas reacciones sólo se producen cuando la energía cinética del neutrón supera cierto valor umbral. Este es el caso de la mayoría de las reacciones que emiten partículas. Los neutrones de mayor energía que podemos encontrar en un reactor nuclear, que es la fuente que utilizaremos en este trabajo, son los producidos en la fisión del ^{235}U inducida con neutrones térmicos, y su rango de energías está comprendido entre 0.5 y 20 MeV. A estos neutrones se los denomina *rápidos*, componente rápida de una distribución de flujo determinada o *flujo rápido*. Luego de producidos, los neutrones interactúan con los materiales que componen el núcleo del reactor disminuyendo su energía hasta llegar al equilibrio térmico. En esta situación su distribución de energías se puede representar por una función de Maxwell, siendo la energía más probable a una temperatura de 293.6 °K, correspondiente a una velocidad del neutrón de 2200 ms^{-1} , 0.0253 eV (Beckurtz y Wirtz, 1964). Este rango de neutrones se denomina *térmico*, componente térmica de una distribución de flujo

determinada o *flujo térmico*. Un tercer rango de estudio de las secciones eficaces de reacciones con neutrones es el correspondiente a energías intermedias entre los térmicos y los rápidos (0.5 a 500 keV), y se los denominan neutrones *epitérmicos*, componente epitérmica de una distribución de flujo determinada o *flujo epitérmico*.

En todas las aplicaciones los neutrones incidentes tienen una distribución energética característica. Es el caso de los neutrones producidos por la fisión espontánea del ^{252}Cf o por la fisión inducida por neutrones térmicos del ^{233}U , ^{235}U o ^{239}Pu . Otra distribución característica es la mencionada en el párrafo anterior, la de los neutrones que están en equilibrio térmico en un medio poco absorbente, y que se puede representar por una función Maxwelliana. En estos casos es conveniente trabajar con secciones eficaces promediadas en la distribución energética característica de la fuente de neutrones que consideramos, σ_p , definida según la ecuación 1.2.2.

$$\sigma_p = \int_0^{\infty} \sigma(E)\chi(E)dE \quad (1.2.2)$$

$\chi(E)$ distribución energética característica normalizada de los neutrones, esto es:

$$\int_0^{\infty} \chi(E)dE = 1$$

Las determinaciones de secciones eficaces que se van a exponer en este trabajo se efectúan con neutrones de distribución energética característica de la fisión de ^{235}U con neutrones térmicos. Este espectro de energías de neutrones se ha representado con diversas expresiones analíticas. Baard et al., 1989, resumen las principales expresiones propuestas que se exponen a continuación, donde E es la energía de los neutrones expresada en MeV.

- | | | |
|------|---|-----------------------|
| i. | $\chi(E) = 0.48395e^{-E} \sinh\sqrt{2E}$ | Watt, 1952 |
| ii. | $\chi(E) = 0.45274e^{\frac{-E}{0.965}} \sinh\sqrt{2.29E}$ | Cranberg et al., 1956 |
| iii. | $\chi(E) = 0.76985e^{\frac{-E}{1.29}} \sqrt{E}$ | Leachman, 1956 |
| iv. | $\chi(E) = 0.5827e^{-0.992E} \sinh(1.27\sqrt{E})$ | Wood, 1973 |
| v. | $\chi(E) = 0.4395e^{\frac{-E}{0.988}} \sinh\sqrt{2.249E}$ | Magurno et al., 1982 |

Otras representaciones han sido propuestas por Grundl y Eisenhauer, 1975 y 1977, basadas en formas funcionales de Maxwell, pero se determinó que en el rango de energías de 0.5 a 15 MeV la forma funcional propuesta por Wood es más adecuada, y sólo para reacciones con umbrales muy altos se observan diferencias significativas (Baard et al., 1989; Suárez et al., 1997). La expresión propuesta por Magurno et al., 1982, que es una modificación de la propuesta por Watt-Cranberg, es la utilizada en la popular biblioteca de datos nucleares ENDF/B-V.

Respecto de la otra función involucrada en el cálculo de la sección eficaz promediada en una distribución energética de neutrones (ecuación (1.2.2)), es posible obtener en forma teórica una expresión funcional de la variación de la sección eficaz con la energía del neutrón incidente para reacciones nucleares con emisión de partículas. La ecuación (1.2.3) muestra una forma funcional propuesta (Suárez et al., 1997).

$$\sigma(E) = \frac{g}{2} \operatorname{erfc}\left(\frac{h-E}{t\sqrt{2}}\right) \quad (1.2.3)$$

siendo **g**, **h** y **t** parámetros de ajuste de la función para cada reacción considerada,

y definiéndose la función $\operatorname{erfc}(x)$ como: $\operatorname{erfc}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_x^{\infty} e^{-t^2} dt$

En la sección 1.1 habíamos visto que la mayoría de las reacciones con emisión de partículas sólo son posibles si el neutrón incidente tiene una energía cinética mayor que cierto umbral, y mostramos algunos ejemplos en la tabla 1.1.1. En estos casos, la sección eficaz es cero para neutrones de energía menor a ese umbral, y el límite inferior de la integral de la ecuación (1.2.2) puede escribirse igual a E_u . La variación de la sección eficaz de estas reacciones tiene una forma típica caracterizada por un incremento abrupto a partir del umbral de energía hasta llegar a un cierto valor, manteniéndose alrededor de ese valor (plateau) en una amplia zona, para luego decrecer con energías altas. Si bien para neutrones de energía mayor pero cercana al umbral la reacción es posible, la sección eficaz es muy pequeña; sólo se produce en forma significativa para neutrones de energía mayor al umbral. En el caso de la reacción $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m}$, por ejemplo, la tabla 1.1.1 muestra que es exoérgica, pero para neutrones de baja energía la sección eficaz es muy baja y sólo comienza a producirse en forma significativa con neutrones de fisión. Por esta razón, es útil definir una energía umbral que nos muestre cuándo la reacción comienza a ser significativa. Este parámetro se denomina *umbral efectivo*, y se lo define como el límite inferior de integración de la distribución energética de flujo que multiplicado por el valor de sección eficaz promedio de la zona constante o de plateau, dé como resultado la sección efectiva promediada en ese flujo (Beckurtz y Wirtz, 1964). La ecuación (1.2.4) expresa la condición que debe cumplir la energía umbral efectiva de acuerdo a su definición.

$$\sigma_p = \int_{E_u}^{\infty} \sigma(E) \chi(E) dE = \sigma_0 \int_{E_u^{ef}}^{\infty} \chi(E) dE \quad (1.2.4)$$

E_u^{ef} energía umbral efectiva

σ_0 sección eficaz promedio en la zona constante o de plateau

En el ejemplo ya mencionado, si bien la reacción $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m}$ es exoérgica, tiene una energía umbral efectiva de 2.60 MeV (Baard et al., 1989) para neutrones producidos por la fisión térmica del ^{235}U .

1.3 Neutrones de reactor

1.3.1 El reactor RA-6

La irradiación de las muestras estudiadas se efectuó en el reactor de investigación y entrenamiento RA-6, del Centro Atómico Bariloche. El núcleo del reactor está formado por elementos combustibles de uranio enriquecido al 90 % en ^{235}U . Cada elemento combustible es del tipo MTR de 19 placas. Alrededor del núcleo (ver figura 1.3.1) se ubican bloques de grafito que tienen la misma forma exterior que los elementos combustibles, actuando el grafito como reflector de neutrones. En el núcleo y en el reflector del reactor se colocaron 3 cajas de irradiación, cuyas dimensiones son iguales a la de los elementos combustibles y dentro permiten ubicar las muestras a irradiar en las facilidades que describiremos mas adelante. Una configuración de núcleo típica se puede observar en la figura 1.3.1. Una de las cajas de irradiación está en la zona central del núcleo, posición F5, rodeada de elementos combustibles, siendo ésta la posición que tiene niveles de flujo más altos en los tres rangos. Valores típicos de flujo neutrónico en esta posición con el reactor generando su máxima potencia, 500 kW, son:

$$\begin{aligned} \phi_t &= 6 \times 10^{12} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1} \text{ en el rango de neutrones térmicos.} \\ \phi_e &= 2 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1} \text{ en el rango de neutrones epitérmicos.} \\ \phi_r &= 2 \times 10^{12} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1} \text{ en el rango de neutrones rápidos.} \end{aligned}$$

La segunda caja de irradiación se ubica en el reflector; posición D8 en la figura 1.3.1. En esta posición la relación entre la componente térmica del flujo y la epitérmica es mayor que en F5, siendo los valores típicos de flujo a plena potencia:

$$\begin{aligned} \phi_t &= 2 \times 10^{12} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1} \text{ en el rango de neutrones térmicos.} \\ \phi_e &= 2 \times 10^{10} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1} \text{ en el rango de neutrones epitérmicos.} \\ \phi_r &= 7 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1} \text{ en el rango de neutrones rápidos.} \end{aligned}$$

La tercer caja de irradiación se encuentra también en el reflector, pero alejada del núcleo. (posición I6 en la figura 1.3.1), para que la componente principal del flujo sea térmica, siendo su valor típico $\phi_t = 7 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. El reactor cuenta con cuatro barras de control gruesas (dos de ellas deben actuar como barras de seguridad y las otras dos como

control grueso), compuestas de una aleación de cadmio, indio y plata (BC en la figura 1.3.1), y 1 barra de ajuste fino (bcf en la figura 1.3.1) de acero inoxidable. Estas barras deslizan dentro de cajas combustibles a las que les han extraído dos placas combustibles. Durante la operación del reactor las dos barras de control modifican su posición dentro del núcleo de modo de mantener el reactor crítico a la potencia establecida, mientras que las otras dos, definidas como de seguridad, permanecen totalmente fuera del núcleo. Las cuatro 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. Las irradiaciones se efectuaron en la caja de irradiación ubicada en F5, dado que, como veremos en esta sección, es la única posición en que el espectro neutrónico rápido se aproxima al de fisión. Las barras de control y seguridad, por estar construidas con materiales que son fuertes absorbentes neutrónicos, distorsionan su distribución espacial y su espectro energético en la zona térmica y epitérmica. Dado que es posible seleccionar qué par de barras actúan como control o como seguridad, en todas las irradiaciones efectuadas para este trabajo el par de barras cercano a la posición de irradiación, E4 y E6, se definió como de seguridad, permaneciendo así fuera del núcleo sin distorsionar el flujo neutrónico en la zona de irradiación.

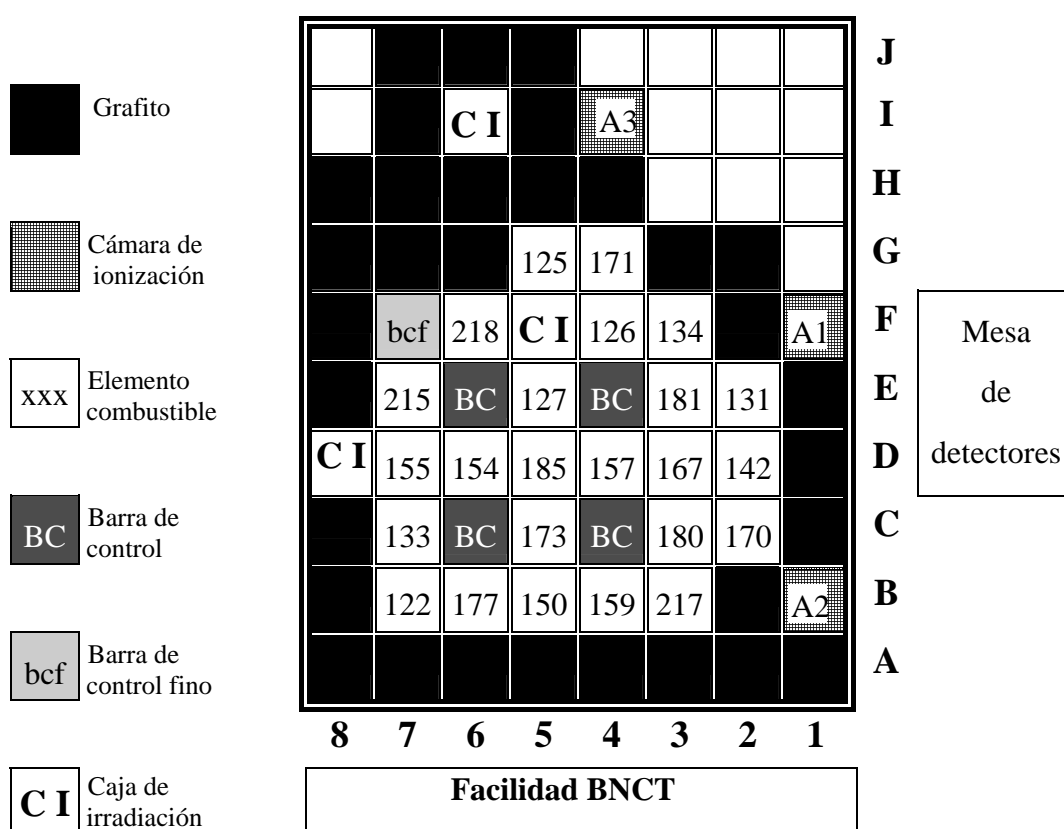


Figura 1.3.1 Configuración típica del núcleo del reactor nuclear RA-6.

Las muestras a estudiar se trasladan desde el laboratorio donde serán luego medidas hacia la posición de irradiación en el núcleo del reactor utilizando un sistema neumático de transporte. Luego de irradiadas vuelven al laboratorio a través del mismo sistema. El tiempo de transporte es de 1 s. Las muestras “viajan” dentro de una cápsula plástica de aproximadamente 5 cm de altura y 2 cm de diámetro.

Un aspecto importante a considerar en las determinaciones que nos proponemos es la formación de otros productos de activación que puedan interferir con las mediciones que realizamos. Las reacciones (n,γ) con neutrones térmicos suelen tener secciones eficaces varios órdenes de magnitud mayor que las que intentamos medir. Estas reacciones pueden producirse en impurezas presentes en el material que analizamos o en otros isótopos del núcleo que queremos estudiar. En la posición del núcleo del reactor RA-6 en que realizaremos las irradiaciones (F5; ver figura 1.3.1) el flujo térmico es $\phi_t=6\times 10^{12}$ n.cm⁻².s⁻¹, por lo que los productos de activación de estas reacciones pueden enmascarar completamente en el espectro γ que medimos las emisiones de interés, o al menos interferir en su determinación. Para minimizar estas interferencias se pueden tomar varias medidas. En algunos casos es necesario trabajar con materiales enriquecidos en el isótopo de interés o blindar el detector y así disminuir la detección de radiación γ de baja energía. Otra medida que se adoptó es la irradiación de las muestras recubiertas con cadmio. Este elemento es un fuerte absorbente de neutrones térmicos ($\sigma_{abs}=2520$ b, Pfennig, 1995, con una función de la energía que tiene forma de escalón que se corta en 0.5 eV), por lo que con esta forma de irradiación la muestra a estudiar no tiene una cantidad relevante de interacciones con la componente térmica del flujo neutrónico. El isótopo del cadmio que es un fuerte absorbente neutrónico es el ¹¹³Cd ($\sigma_t=20600$ b, Pfennig, 1995), pero el producto de la reacción, el ¹¹⁴Cd, es estable y por lo tanto no incide en las condiciones de irradiación. Sin embargo los isótopos ¹¹⁰Cd, ¹¹⁴Cd y ¹¹⁶Cd generan productos de activación emisores γ que, aunque su sección eficaz es relativamente pequeña, debido a la gran masa de material que se irradia producen alta actividad γ con implicancias radiológicas para el experimentador. Este aspecto limita el tiempo de irradiación del conjunto, y determina la disposición de blindajes de radiación γ y minimizar el tiempo de manipuleo de la muestra. De acuerdo a las características de la muestra, se utilizaron blindajes de cadmio de 0.5 y 1 mm de espesor.

1.3.2 El espectro de fisión

Como ya se mencionara, en este trabajo se efectúan mediciones de secciones eficaces promedio en el espectro de fisión del ²³⁵U con neutrones térmicos. Por lo tanto es de fundamental importancia constatar que la distribución energética de los neutrones en la posición de irradiación utilizada tiene estas características. El espectro neutrónico rápido de las posiciones de irradiación de todos los reactores nucleares, aún en lugares cercanos al centro del núcleo, tiene algún grado de apartamiento de una distribución “pura” de neutrones producidos por la fisión térmica del ²³⁵U. Esto se explica en que estas posiciones de irradiación están en un campo neutrónico junto con materiales estructurales constitutivos del núcleo del reactor, y los neutrones llegan a la posición de irradiación luego de atravesar el combustible nuclear, su encapsulado y el compuesto moderador en que está inmerso. Y cierta fracción de los neutrones producidos en la fisión interactúan con estos materiales modificando su energía pero manteniéndose en el rango rápido,

modificando así la distribución energética característica del espectro de fisión del ^{235}U con neutrones térmicos. La propia muestra a irradiar y los materiales que la contienen contribuyen a modificar el espectro.

Las facilidades experimentales que mejor se aproximan a tener una distribución “pura” de neutrones de fisión térmica del ^{235}U son los conversores de neutrones. Estas facilidades constan de una cámara de uranio enriquecido en ^{235}U a donde llegan las muestras a irradiar, revestida con cadmio en su parte interior y que contiene aire. Este recipiente se ubica en un campo de neutrones térmicos. De esta forma los materiales que se interponen entre la muestra y los núcleos de ^{235}U que se fisionan son mínimos, desapareciendo los núcleos livianos del moderador. Además las fisiones se producen sólo con neutrones térmicos, que no llegan a la muestra ya que son retenidos en el cadmio.

Si bien el espectro neutrónico de las posiciones de irradiaciones centrales de los reactores nucleares tiene cierto apartamiento de una distribución “pura” de neutrones producidos por la fisión térmica del ^{235}U , en general este apartamiento es pequeño y no se refleja en las mediciones que realizamos. En estos casos decimos que el espectro neutrónico se *aproxima* al de fisión. Esta condición se puede verificar en un caso concreto irradiando varios monitores de flujo rápido con diferente energía umbral efectiva de modo de abarcar el rango de fisión, y cuya sección eficaz promediada en el espectro de fisión de ^{235}U esté bien medida. Si los valores de flujo medidos con los distintos monitores no difieren entre sí, podemos afirmar que la posición de irradiación tiene un espectro *próximo* a la distribución de fisión pura.

Tabla 1.3.1 Evaluación del espectro neutrónico rápido en las posiciones de irradiación F5 y D8 (ver figura 1.3.1) del núcleo del reactor RA-6
Medición del flujo rápido utilizando monitores de diferente energía umbral efectiva^a

Reacción	Sección eficaz (mb)	Energía umbral efectiva (MeV)	ϕ_r (n.cm ⁻² .s ⁻¹)	
			D8 ($\times 10^{-11}$)	F5 ($\times 10^{-12}$)
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	111 ± 3	2.60^b	6.16 ± 0.41	1.874 ± 0.067
$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	81.7 ± 2.2	2.80^b	5.95 ± 0.45	1.875 ± 0.119
$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	11.8 ± 0.4	4.40^b	6.55 ± 0.32	1.836 ± 0.082
$^{92}\text{Mo}(n,p)^{92m}\text{Nb}$	7.3 ± 0.4	6.00^c	6.83 ± 0.64	1.92 ± 0.14
$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	0.720 ± 0.025	6.70^b	6.80 ± 0.32	1.896 ± 0.079
$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	0.307 ± 0.011	6.90^b	6.66 ± 0.35	1.867 ± 0.087
$^{59}\text{Co}(n,\alpha)^{56}\text{Mn}$	0.161 ± 0.007	7.00^b	7.08 ± 0.42	-
$^{93}\text{Nb}(n,2n)^{92m}\text{Nb}$	0.48 ± 0.04	10.0^b	6.98 ± 0.66	1.93 ± 0.19
$^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$	0.258 ± 0.013	11.6^c	7.61 ± 0.78	1.91 ± 0.19

^a Arribére, 1997

^b Baard *et al.*, 1989

^c Horibe, 1983

La posición del núcleo del reactor RA-6 elegida para las irradiaciones (posición F5 en la figura 1.3.1) está rodeada de elementos combustibles y alejada de materiales absorbentes neutrónicos fuertes, como se describió en la sección anterior. No se pudo colocar la caja de irradiación en una posición más cercana al centro del núcleo debido a que la disminución de reactividad asociada no era compatible con la operación del reactor. En esta posición y en la D8 (ver figura 1.3.1) se irradiaron monitores de flujo rápido de diferente umbral para estudiar la forma del espectro neutrónico (Arribére, 1997). En la tabla 1.3.1 se detallan las reacciones estudiadas.

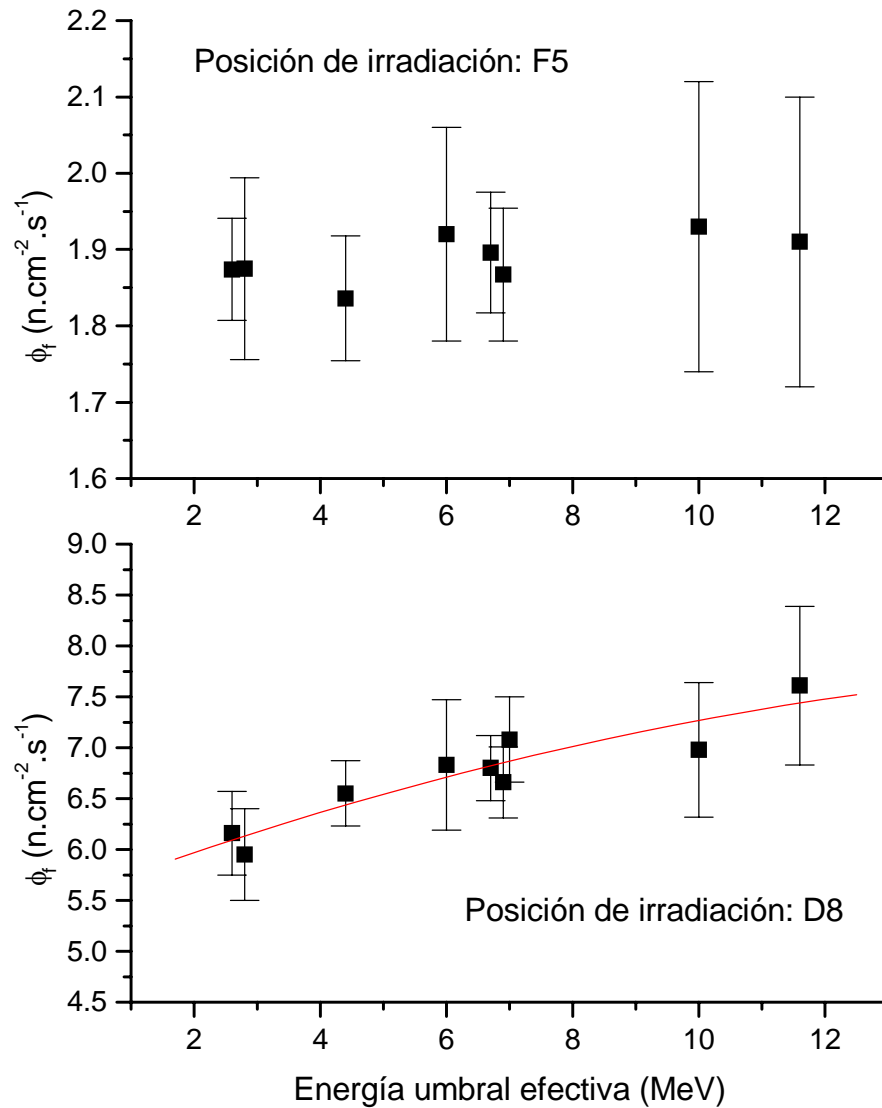


Figura 1.3.2 Evaluación del espectro neutrónico rápido en las posiciones de irradiación F5 y D8 del núcleo del reactor RA-6
Medición del flujo rápido utilizando monitores de diferente energía umbral efectiva (Arribére, 1997)

La tabla 1.3.1 y la figura 1.3.2 muestran los resultados de las mediciones de flujo neutrónico rápido utilizando monitores de flujo con diferente energía umbral efectiva. Los resultados obtenidos en la posición de irradiación D8 muestran un endurecimiento del espectro. Se observa una clara tendencia del flujo a ser mayor para mayores energías umbral efectivas de los monitores, aunque la mayoría de los valores coincide si consideramos la incerteza asociada a la medición (en las determinaciones de flujo consideramos secciones eficaces promediadas en un espectro de fisión de ^{235}U inducida con neutrones térmicos). En cambio en la posición de irradiación F5 no se observa esta tendencia; los valores medidos de flujo neutrónico tienen un comportamiento constante al variar la energía umbral efectiva del monitor utilizado. Por lo tanto podemos afirmar que en esta posición de irradiación el espectro neutrónico se aproxima al de fisión de ^{235}U inducida con neutrones térmicos.

1.4 Espectrometría γ

Las determinaciones de secciones eficaces que se exponen en este trabajo se realizaron a partir de la medición de las emisiones γ inducidas por las reacciones nucleares que se estudian. Estas mediciones se efectuaron utilizando espectrometría γ de alta resolución. Las reacciones nucleares con neutrones generan productos que básicamente emiten radiación X, γ , β^+ y β^- . A diferencia de las partículas β , la radiación electromagnética emitida tiene una energía definida, que es característica del átomo emisor en el caso de la radiación X, o puede ser asociada al decaimiento de un núcleo determinado, en el caso de la radiación γ . Esto hace posible el estudio de las reacciones nucleares de interés midiendo la radiación electromagnética emitida por el material estudiado luego de ser irradiado en un flujo neutrónico. La medición de radiación γ tiene la ventaja adicional, en la mayoría de los casos, que en muestras pequeñas la atenuación que sufre al atravesarla es mínima y no significativa. Con los detectores semiconductores disponibles actualmente es posible medir las emisiones γ individuales de los productos radioactivos de la muestra estudiada.

La primer etapa del procedimiento de medición es la identificación de los núcleos emisores de la muestra, e incluye los siguientes pasos:

- i. Medición de la distribución de altura de pulsos originadas en el detector, que reflejan la energía depositada en el mismo por la radiación electromagnética.
- ii. Correlación entre estas alturas de pulso y la energía que los originó (calibración en energía del sistema de detección).
- iii. Identificación del nucleido emisor a partir de las energías observadas en el espectro medido.

El sistema de medición consta de un detector de radiación de estado sólido (HPGe, en nuestro caso), módulos electrónicos de procesamiento de la señal y una memoria digital (analizador multicanal). Al detector va asociado un preamplificador cuyas salidas son pulsos de amplitud proporcional a la carga generada por la interacción de la radiación electromagnética con el cristal del detector. La señal es posteriormente amplificada por un módulo independiente, y luego digitalizada y almacenada en el analizador multicanal.

Para identificar los núcleos emisores que contiene la muestra, se contrastan las energías encontradas en el espectro medido con las existentes en la bibliografía, donde también se informa el núcleo emisor y la fracción de los decaimientos del núcleo que generan cada emisión γ .

En el analizador multicanal obtenemos el gráfico del número de rayos γ registrados por el sistema de detección en función de la energía depositada en el cristal. En este gráfico se dibujan picos centrados en la energía del rayo γ incidente. El área que encierran estos picos es proporcional al número de rayos γ de esa energía que incidieron en el detector, y por lo tanto midiendo ésta área podemos obtener el número de rayos γ de esa energía emitidos por la muestra, y con esto el número de desintegraciones del núcleo que lo genera. Esta segunda etapa del análisis por espectrometría γ constituye la determinación cuantitativa de la actividad de la muestra analizada, que se relaciona con el área medida a través de la eficiencia del sistema de medición. En la determinación de las áreas de un espectro γ suelen utilizarse rutinas que ajustan con diversos métodos los puntos medidos en el analizador multicanal, determinando la energía y el área de los picos que identifique. En nuestro caso utilizamos la rutina GAMANAL incluida en el paquete GANAAS distribuido por el Organismo Internacional de Energía Atómica (GANAAS, 1991).

El sistema de medición utilizado en las mediciones que se exponen en este trabajo consta de un detector HPGe intrínseco tipo N de 67 cm³, con FWHM de 2.0 keV a 1.33 MeV y una eficiencia de 12.3 % relativa a un cristal de NaI(Tl) de 7.6 x 7.6 cm para la energía de 1.33 MeV y una distancia de 25 cm. El detector consta de una ventana de berilio para minimizar la atenuación de la radiación de baja energía. En las mediciones que se efectuaron se utilizó un recubrimiento protector de aluminio debido a que se trabajó con emisiones de alta energía. En algunos casos se agregó a la protección de aluminio un blindaje de plomo para atenuar la radiación de baja energía, con placas de cadmio y cobre del lado del detector. Las muestras fueron medidas en recipientes de nylon de 10 mm de diámetro, que agregan un absorbente de 2 mm de espesor entre la fuente y el detector. En el caso de muestras en forma de polvo, éstas tuvieron aproximadamente 1 mm de espesor.

1.4.1 Eficiencia del sistema de medición

La eficiencia de detección, $Ef(E)$, se define como la relación entre el número de rayos γ de energía E contados por el detector, Σ^* , y el número total de rayos γ de energía E emitidos por la fuente radioactiva, $N_\gamma(E)$.

$$Ef(E) = \frac{\Sigma^*}{N_\gamma(E)} \quad (1.4.1)$$

La eficiencia es una característica del sistema de medición; depende de la energía del rayo γ y de la posición relativa de la muestra a medir respecto del detector (geometría de medición). La eficiencia se puede considerar como el producto de dos funciones

$$\mathbf{Ef(E)} = \mathcal{E}_i(\mathbf{E}) \times \mathcal{E}_g \quad (1.4.2)$$

siendo

$$\mathcal{E}_i(\mathbf{E}) = \frac{\text{número de rayos gamma detectados}}{\text{número de rayos gamma que inciden en el detector perpendicularmente}} = \frac{\Sigma^*}{N_{\gamma \text{det}}}$$

definida como la eficiencia intrínseca del detector. Este factor no depende de la geometría de medición.

$$\mathcal{E}_g = \frac{\text{número de rayos gamma que inciden en el detector}}{\text{número de rayos gamma emitidos por la fuente}} = \frac{N_{\gamma \text{det}}}{N_{\gamma}}$$

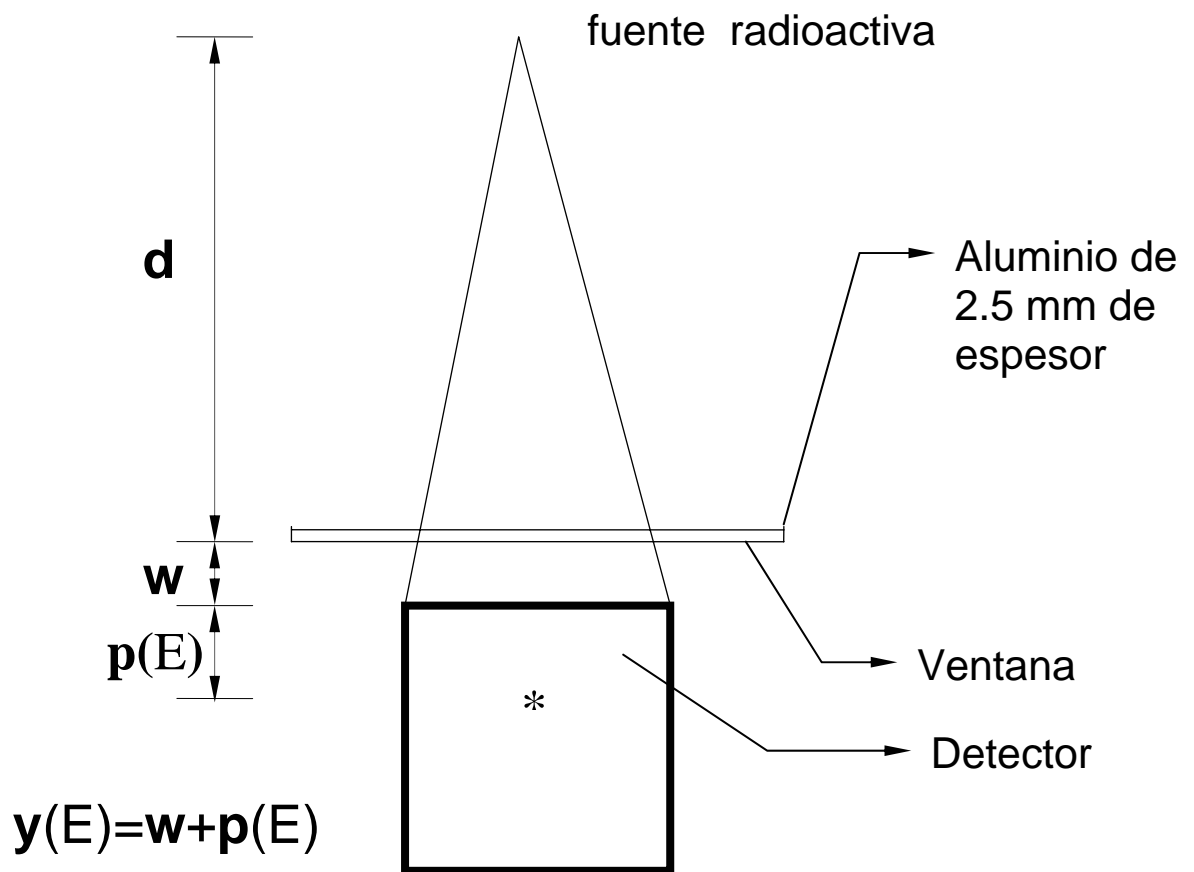
definida como la eficiencia geométrica, que sólo depende de la geometría de medición.

Las muestras estudiadas pueden ser consideradas como puntuales. En este caso la eficiencia geométrica es el ángulo sólido subtendido desde la fuente hasta la superficie activa del detector. La figura 1.4.1 muestra el esquema de la disposición de la muestra y el detector, en el que la fuente puntual se ubica sobre el eje del cristal de germanio del detector, cuya forma es cilíndrica. Si la fuente es puntual y la distancia de la fuente al detector es suficientemente grande de modo que podamos considerar que los rayos γ inciden en forma perpendicular sobre la superficie del detector, y consideramos que el cristal de germanio del detector es plano, sin espesor, la eficiencia geométrica se puede calcular de la siguiente forma:

$$\mathcal{E}_g = \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\theta_{\text{mas}}} \sin \theta d\theta \quad (1.4.3)$$

siendo

- θ ángulo formado por el rayo saliente de la muestra y el eje del cristal, sobre el que se ubica la fuente
- φ ángulo de la proyección del rayo saliente de la muestra sobre el plano de incidencia del detector, en un eje de coordenadas sobre ese plano
- θ_{max} máximo valor de θ que representa la incidencia de un rayo emitido por la fuente en el cristal, correspondiente a la línea subtendida por la fuente y el borde superior del cristal.



- d distancia desde la fuente a la ventana del detector
- w distancia entre la ventana del detector y la superficie activa
- $p(E)$ penetración efectiva en el cristal
- $y(E)$ penetración efectiva en el detector

Figura 1.4.1 Dispositivo de medición de radiación γ
Ubicación relativa de la fuente radioactiva y el detector (Arribére, 1997)

θ_{\max} se puede expresar de la siguiente forma:

$$\theta_{\max} = \arccos\left(\frac{\mathbf{d} + \mathbf{w}}{\sqrt{(\mathbf{d} + \mathbf{w})^2 + \mathbf{R}_D^2}}\right) \quad (1.4.4)$$

\mathbf{R}_D radio del cristal

\mathbf{d} distancia desde la fuente a la ventana del detector

\mathbf{w} distancia entre la ventana del detector y la superficie activa

Integrando la ecuación (1.4.3), con el valor de θ_{\max} obtenido en (1.4.4), obtenemos

$$\mathcal{E}_g = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{1}{\mathbf{a}}\right) \quad (1.4.5)$$

$$\text{con } \mathbf{a} = \sqrt{1 + \frac{\mathbf{R}_D^2}{(\mathbf{d} + \mathbf{w})^2}}$$

La condición establecida de que los rayos γ incidan en forma perpendicular al detector se verifica si $\mathbf{R}_D \ll \mathbf{d}$ o si el detector puede considerarse puntual, en cuyo caso la eficiencia geométrica se puede aproximar a

$$\mathcal{E}_g \cong \frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{R}_D}{\mathbf{d} + \mathbf{w}}\right)^2 \quad (1.4.6)$$

La eficiencia intrínseca no puede ser medida en forma práctica, ya que el detector es un monocristal de germanio encapsulado en vacío, y no tenemos acceso al mismo, presentando diversos problemas experimentales. Resulta experimentalmente más sencillo realizar determinaciones de la eficiencia absoluta del sistema de medición utilizando fuentes calibradas ubicadas lejos del detector, siendo 25 cm una distancia usual. Y luego se determina la variación del factor geométrico para cada posición de medición de la muestra respecto de la posición de calibración absoluta (Arribére, 1997). Se puede expresar esta variación utilizando la forma funcional que surge de la ecuación (1.4.6), $1/(\mathbf{d} + \mathbf{w})^2$, aplicando correcciones adecuadas (Gunnink y Niday, 1976; Plotts y Thorpe, 1984).

La absorción de la radiación γ es función de su energía; un haz de fotones de baja energía se absorberá cerca de la superficie del detector, mientras que uno de alta energía lo atravesará teniendo muy pocas interacciones, distribuidas homogéneamente en todo su volumen. Esto se puede considerar agregando un término asociado a la penetración de la

radiación γ en el cristal, y de esta forma se comprueba experimentalmente que el detector puede considerarse puntual. Éste término tiene la siguiente forma (Arribére, 1986):

$$\mathbf{h} = \mathbf{d} + \mathbf{Y}(\mathbf{E}) \quad (1.4.7)$$

con $\mathbf{Y}(\mathbf{E}) = \mathbf{w} + \mathbf{p}(\mathbf{E})$

siendo

$\mathbf{Y}(\mathbf{E})$ penetración efectiva dentro del detector de la radiación γ de energía E

$\mathbf{p}(\mathbf{E})$ penetración efectiva dentro del cristal de germanio de la radiación γ de energía E

De esta forma, el factor geométrico también depende de la energía de la radiación incidente. Por lo tanto, la eficiencia del sistema de detección para radiación γ de energía E emitida por una fuente puntual es

$$\mathbf{Ef}(\mathbf{E}, \mathbf{d}) = \mathcal{E}_i(\mathbf{E}) \times \mathcal{E}_g(\mathbf{E}, \mathbf{d})$$

Incorporando la expresión del factor geométrico de la ecuación (1.4.6), obtenemos

$$\mathbf{Ef}(\mathbf{E}, \mathbf{d}) = \frac{\mathcal{E}_i(\mathbf{E})}{4} \left(\frac{\mathbf{R}_D}{\mathbf{d} + \mathbf{Y}(\mathbf{E})} \right)^2 \quad (1.4.8)$$

Ésta expresión de la eficiencia aplicada a la posición en que se miden las fuentes patrón (\mathbf{d}_{ref}) queda como

$$\mathbf{Ef}(\mathbf{E}, \mathbf{d}_{\text{ref}}) = \frac{\mathcal{E}_i(\mathbf{E})}{4} \left(\frac{\mathbf{R}_D}{\mathbf{d}_{\text{ref}} + \mathbf{Y}(\mathbf{E})} \right)^2 \quad (1.4.9)$$

Relacionando las ecuaciones (1.4.8) y (1.4.9) obtenemos

$$\mathbf{Ef}(\mathbf{E}, \mathbf{d}) = \mathbf{Ef}(\mathbf{E}, \mathbf{d}_{\text{ref}}) \left(\frac{\mathbf{d}_{\text{ref}} + \mathbf{Y}(\mathbf{E})}{\mathbf{d} + \mathbf{Y}(\mathbf{E})} \right)^2 \quad (1.4.10)$$

La expresión de la eficiencia del sistema de medición en función de la posición de la muestra y de la energía del rayo γ incidente se completa determinando experimentalmente la eficiencia absoluta en función de la energía en la posición de referencia, $Ef(E, d_{ref})$, y la penetración efectiva, también en función de la energía, $Y(E)$. La evaluación de estas dos funciones para el sistema de detección utilizado se expone en los trabajos Arribére, 1986 y Arribére, 1997. Vamos a analizar algunos aspectos de interés en las mediciones que se exponen en este trabajo.

La eficiencia absoluta en la posición de referencia se evaluó midiendo fuentes patrón, y aplicando la siguiente:

$$Ef(E, d_{ref}) = \frac{\lambda \Sigma^*}{A_0 a(E) y_{\gamma, E} (1 - e^{-\lambda t_c}) e^{-\lambda t_d}} \quad (1.4.11)$$

- t_d tiempo de decaimiento
- t_c tiempo de medición
- $y_{\gamma, E}$ fracción de los decaimientos de la fuente patrón que producen la emisión γ de energía E
- Σ^* área medida del pico de energía E
- A_0 actividad de la fuente en la fecha de calibración, certificada por el proveedor
- $a(E)$ factor de autoatenuación de los rayos γ de energía E en el material de la fuente. Este factor es informado en el certificado de la fuente.

La expresión funcional de la eficiencia absoluta se obtuvo mediante el ajuste polinómico de la variable $\ln(E)$ por cuadrados mínimos de los valores determinados en la medición de las emisiones γ de las fuentes calibradas de ^{241}Am , ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{60}Co y ^{152}Eu (Ribeiro Guevara y Kestelman, 1993a). La distancia entre la fuente y la superficie del detector (posición de referencia) fue 264.5 mm. En una evaluación posterior se incluyó una fuente calibrada de ^{226}Ra , siguiendo el mismo procedimiento (Arribére, 1997). También se evaluó la absorción en función de la energía de los rayos γ incidentes, del blindaje de plomo que se utiliza en situaciones en que se quiere disminuir los aportes de baja energía (Ribeiro Guevara y Kestelman, 1993b). Esta modificación en el sistema de medición usual afecta sólo el factor $Ef(E, d_{ref})$ de la ecuación (1.4.10), que se obtiene realizando mediciones de las fuentes patrones con y sin el blindaje, obteniéndose un factor de corrección en función de E .

En algunas mediciones interesa determinar la relación de actividades γ de energía diferente, E y E' , emitidos por dos fuentes ubicadas en la misma posición respecto del detector. En estas condiciones la relación de eficiencias tiene la siguiente forma:

$$\frac{Ef(E', d)}{Ef(E, d)} = \frac{Ef(E', d_{ref})}{Ef(E, d_{ref})} \left(\frac{d_{ref} + Y(E')}{d_{ref} + Y(E)} \right)^2 \left(\frac{d + Y(E)}{d + Y(E')} \right)^2 \quad (1.4.12)$$

Si en la determinación de la eficiencia absoluta en la posición de referencia hubiésemos utilizado sólo las emisiones γ de una fuente patrón, en lugar de efectuar la evaluación funcional de la variable $Ef(E, d_{ref})$ podríamos haberla normalizado con el valor A_0 (actividad certificada de la fuente patrón), parámetro que desaparecería en el cociente de eficiencias del término derecho de la ecuación (1.4.12) al sustituir la función evaluada en E y E' . O sea, que en el caso planteado sólo intervienen en el cociente de eficiencias los factores de producción de cada rayo γ (y_γ) y la eficiencia relativa del sistema de medición en función de la energía, desapareciendo la actividad absoluta de la fuente patrón (A_0). Al eliminarse éste último parámetro, desaparece también su aporte al cálculo de la incerteza total del cociente de eficiencias. Cabe destacar que el aporte de la actividad certificada de las fuentes patrón a la incerteza total es de los más importantes. Si bien esto no es aplicable cuando utilizamos varias fuentes patrón en la evaluación de la función $Ef(E, d_{ref})$, el razonamiento muestra que al trabajar con el cociente de eficiencias se disminuye el aporte del cociente de eficiencias en la posición de referencia respecto de la propagación de sus aportes individuales, obteniéndose cálculos más precisos.

La incidencia de los factores geométricos disminuye drásticamente en la variable cociente de eficiencias respecto a las eficiencias individuales, si las muestras se miden en la misma posición. Sólo varía en el factor geométrico la penetración efectiva, al variar la energía. La expresión funcional de la penetración efectiva medida en el sistema de medición que utilizamos es la siguiente (Arribére, 1997):

$$Y(E) = -13.897 + 11.25 \ln(E) - 0.7319 \ln^2(E) \quad (1.4.13)$$

En la ecuación (1.4.13) E está expresada en keV e Y en mm. Se considera que la incerteza asociada a la determinación de $Y(E)$ es 2 mm.

Si consideramos que el intervalo de variación de E es [100, 2000] keV, con la ecuación (1.4.13) obtenemos que la penetración efectiva varía en el intervalo [22, 29] mm. La posición de referencia utilizada en las mediciones es 264.5 mm, por lo que el factor de la ecuación (1.4.12) que incluye el parámetro d_{ref} es muy cercano a 1 en todos los casos, siendo su incidencia en el cálculo del cociente de eficiencias muy pequeña y su aporte a la incerteza de éste cálculo, no significativa. Para posiciones de medición cercanas a la de referencia, el factor de la ecuación (1.4.12) que incluye el parámetro d es similar al inverso del factor que incluye al parámetro d_{ref} , por lo que su producto es aún más cercano a 1 que los valores individuales. En cambio, para posiciones de medición cercanas al detector el factor que incluye el parámetro d puede ser relevante si las energías E y E' son muy distintas.

De lo expuesto en los párrafos anteriores se concluye que la variable cociente de eficiencias del sistema de medición para diferentes energías, tiene asociadas incertezas significativamente menores que la propagación de las incertezas independientes, en el caso en que las muestras se miden en la misma posición respecto del detector.

1.4.2 Autoabsorción

Cuando se realizan mediciones por espectrometría γ es necesario considerar la atenuación de las emisiones en los materiales involucrados en la medición, como por ejemplo en el recipiente que contiene la muestra, y en la propia muestra. Los materiales asociados a la medición de las muestras son de baja absorción de la radiación, como ser materiales plásticos, y además todas las mediciones se efectúan en las mismas condiciones de modo que su incidencia se puede incluir en la determinación de eficiencia del sistema. Pero la autoatenuación en la fuente que se mide depende del elemento que estudiamos, del material que lo contiene y de la forma de la fuente, por lo que hay que hacer consideraciones particulares en cada caso. En las consideraciones que hemos expuesto se ha incluido la hipótesis de que las fuentes son suficientemente pequeñas como para que puedan considerarse puntuales, y por lo tanto la autoabsorción suele ser un efecto que se puede despreciar. No obstante, aún en los casos en que esto no es posible su incidencia es pequeña, y la autoabsorción de una fuente se puede calcular con razonable precisión si se conocen los elementos constitutivos de la misma, o en algunos casos se puede determinar en forma experimental.

Veamos en primer término qué pasa si colocamos un material absorbente entre la fuente y el detector. La fracción de rayos γ de energía E que desaparecen del haz está expresada en la ecuación (1.4.14), considerando que tenemos un haz colimado que atraviesa perpendicularmente un material absorbente con geometría “slab” de espesor X .

$$a(E) = 1 - \frac{N(E)}{N_0(E)} = 1 - e^{-\mu(E)X} \quad (1.4.14)$$

- $N_0(E)$ número de rayos γ de energía E que constituyen el haz antes de atravesar el material absorbente
- $N(E)$ número de rayos γ de energía E que constituyen el haz luego de atravesar el material absorbente
- X espesor del material absorbente
- $\mu(E)$ coeficiente de atenuación del material absorbente para la energía E
- $a(E)$ absorción: fracción de los rayos γ de energía E que constituyen el haz, que son removidos de él

Al detector llegan $N(E)$ rayos γ de energía E , mientras que nos interesa medir $N_0(E)$. De la ecuación (1.4.14) surge que

$$N_0(E) = \frac{1}{1 - a(E)} N(E) \quad (1.4.15)$$

por lo que el factor de corrección que tendremos que aplicar a la medición, $F_c(E)$, será

$$F_c(E) = \frac{1}{1 - a(E)} = e^{\mu(E)X} \quad (1.4.16)$$

Consideramos ahora la atenuación en la fuente que emite la radiación de energía E. Si la fuente es plana de espesor X, la distribución del material absorbente y del isótopo radiactivo es homogénea, y la medimos en una posición suficientemente alejada del detector de modo que podamos considerar que los rayos γ que llegan a él atraviesan la fuente en forma perpendicular, podemos plantear la siguiente ecuación:

$$N(E) = \int_0^X \frac{N_0(E)}{X} e^{-\mu(E)x} dx = N_0(E) \frac{1 - e^{-\mu(E)X}}{\mu(E)X} \quad (1.4.17)$$

y el factor de autoatenuación para una fuente de geometría “slab” se expresa como

$$a_r^s(E) = 1 - \frac{N(E)}{N_0(E)} = 1 - \frac{1 - e^{-\mu(E)X}}{\mu(E)X} \quad (1.4.18)$$

El factor de corrección que hay que aplicar a la medición que se obtenga es también el expresado por la ecuación (1.4.16), sustituyendo la absorción por el factor de autoatenuación.

Si no es posible evaluar el coeficiente de atenuación del material, $\mu(E)$, por no conocerse su composición por ejemplo, es posible conocer el factor de autoatenuación midiendo la transmisión, $t(E)$. La transmisión es la relación entre el número de rayos γ salientes del absorbente dispuesto en forma de “slab” de espesor X, sobre los entrantes. Por lo tanto, si consideramos que el haz es colimado e incide en forma perpendicular al absorbente, tenemos que

$$t(E) = \frac{N(E)}{N_0(E)} = e^{-\mu(E)X} = 1 - a(E) \quad (1.4.19)$$

Es posible medir la relación de la ecuación (1.4.19) midiendo en primer término la intensidad de un haz de rayos γ colimado de energía E, $N_0(E)$, y luego repetir la medición interponiendo el absorbente de espesor X, $N(E)$. Una vez medido $t(E)$, podemos obtener el factor de autoatenuación utilizando la reformulación (1.4.20) de la ecuación (1.4.18).

$$a_f^s(E) = 1 + \frac{1 - t(E)}{\ln[t(E)]} \quad (1.4.20)$$

Las fuentes medidas pueden aproximarse en muchos casos a la geometría “slab” considerada en los desarrollos precedentes. Por ejemplo, cuando se trata de chapas metálicas delgadas que se miden con su plano paralelo a la superficie del detector. O si el material es un polvo acondicionado en los recipientes de medición usados en nuestro laboratorio, que le dan una forma final a la muestra de un disco de 10 mm de diámetro y aproximadamente 1 mm de espesor (el espesor depende de la cantidad de muestra que se mida). Pero hay muestras cuya geometría no puede aproximarse a un “slab”. El caso más común es el de los alambres metálicos. En este caso la fuente puede considerarse como un cilindro de radio r , cuyo eje es perpendicular al eje del detector, y la autoatenuación puede expresarse como (Debertin y Helmer, 1988)

$$a_f^c(E) = \frac{8}{3\pi} \mu(E)r - \frac{1}{2} [\mu(E)r]^2 \quad (1.4.21)$$

para $\mu(E)r \ll 1$

Esta aproximación del factor de autoatenuación para una fuente cilíndrica es válida si la distancia de la fuente al detector es mucho mayor que las dimensiones de la fuente y que el radio del detector.

2. Isómeros, estado metaestable y fundamental generados por reacciones nucleares. Metodología de cálculo utilizada para determinar sus secciones eficaces

2.1. Isómeros

En general se entiende por isómeros a núcleos con el mismo número de protones y neutrones que tienen alguna propiedad nuclear diferente (Evans, 1955; Kaplan, 1962), en particular por estar en diferentes niveles energéticos, siendo la vida media de los niveles excitados suficientemente larga para ser medida. A los niveles excitados también se los denomina estados metaestables, y fundamental al de menor energía. Sin embargo algunos autores distinguen los estados isoméricos de los isómeros, definiéndolos como los niveles excitados de un cierto núcleo que tienen vidas medias suficientemente largas para ser medidas (Kaplan, 1962), o entienden que ésta es la definición de isómero, excluyendo al nivel fundamental (Cohen, 1971; Bowler, 1973; Burcham, 1979). En este trabajo adoptaremos la primer definición. La figura 2.1.1 muestra un ejemplo; el esquema de los dos primeros niveles energéticos del ^{90}Y , que presenta dos isómeros. El estado metaestable decae al fundamental que es estable. El estado metaestable tiene una vida media de 15.28 s^* , y decae emitiendo un rayo γ de 909 keV .

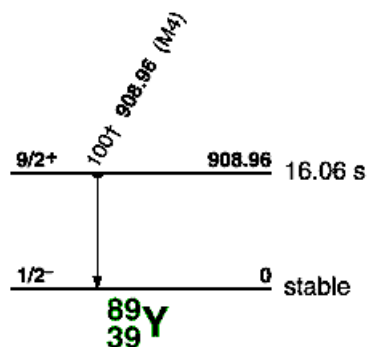


Figura 2.1.1 Primeros niveles energéticos del núcleo ^{89}Y
Esquema de decaimiento del estado metaestable (Firestone, 1996)

* En el texto y en las tablas se consignan los valores mas recientes, o los que se utilizaron en las determinaciones que se exponen en este trabajo, de los diferentes parámetros, mientras que en las figuras se conservan los valores de la referencia.

La existencia de uno o más niveles excitados de un núcleo, con vidas medias suficientemente largas para ser medidas, fue predicha por los desarrollos teóricos de C. F. von Weizsäcker en 1936 (Evans, 1955). Weizsäcker propuso la existencia de núcleos con niveles excitados cuyos momentos angulares difieren en varias unidades de los de menor energía o del fundamental, mostrando que, mientras que las transiciones γ que involucran diferencias de momentos angulares de 1 o 2 unidades tienen vidas medias de 10^{-13} s, las transiciones con diferencias de momento angular mayores tienen vidas medias mucho mayores, que pueden ser medidas. Y cada unidad adicional de momento angular involucrada en la transición de cierta energía, aumenta la vida media en un factor 10^6 (Kaplan, 1962).

En 1938 Feather y Bretscher encontraron el primer isómero, trabajando con isótopos radioactivos naturales. Encontraron que los núcleos UX_2 ($^{234}\text{Pa}^m$, $T_{1/2}=1.17$ m) y UZ ($^{234}\text{Pa}^f$, $T_{1/2}=6.70$ h), ambos generados por decaimiento β^- del UX_1 (^{234}Th , $T_{1/2}=24.10$ d) tenían vidas medias y emisiones diferentes. El núcleo UX_2 emitía tres grupos de electrones, con energía máxima 2.31 MeV (90%), 1.50 MeV (9%) y 0.58 MeV (1%), mientras que el UZ emitía cuatro grupos, de energía máxima 0.16 MeV (28%), 0.32 MeV (32%), 0.53 MeV (27%) y 1.13 MeV (13%). También se encontró una emisión γ asociada al 0.15 % de los decaimientos de UX_2 , correspondiente al decaimiento al nivel fundamental UZ , mientras que casi el 100% de los decaimientos son por β^- , generando el núcleo UII (^{234}U). El decaimiento de UZ es por β^- generando también el núcleo UII (^{234}U) (Evans, 1955; Kaplan, 1962).

Durante varios años el $^{234}\text{Pa}^{m+f}$ fue el único ejemplo de isómero, hasta que se comenzó a trabajar con isótopos radioactivos inducidos artificialmente. La primer pareja de isómeros generada artificialmente fue el $^{80}\text{Br}^{m+f}$ ($^{80}\text{Br}^f$, $T_{1/2}=17.68$ m; $^{80}\text{Br}^m$, $T_{1/2}=4.4205$ h). Blancos de bromo fueron bombardeados con neutrones térmicos, identificándose tres productos que decaían por β^- con vidas medias diferentes; 18 m, 4.9 h y 34 h. La generación de tres productos resultó sorprendente, ya que se esperaban sólo dos isótopos, producto de las reacciones (n, γ) de los dos núcleos estables del bromo: ^{79}Br y ^{81}Br . Para identificar el isótopo que generaba productos de vidas medias diferentes, se irradiaron blancos de bromo con radiación γ de 17 MeV. Nuevamente, se encontraron tres productos de la reacción (γ ,n) con los dos isótopos estables, con vidas medias de 6.4 m, 18 m y 4.4 h, deduciéndose así que el ^{80}Br tiene dos isómeros. Se pudo separar químicamente ambos isómeros, observándose que el de 4.4 h decaía en el de 18 m, emitiendo dos rayos γ en cascada de 49 keV y 37 keV. También se observó que el isómero de 18 m decaía por β^- en el 92 % de los casos, por β^+ en el 3 % y por captura electrónica en el 5 % (Kaplan, 1962).

En 1951 M. Goldhaber, R. D. Hill y S. W. Sunyar completaron la clasificación de las propiedades de 77 isómeros, con vidas medias de los estados metaestables entre 1 segundo y 8 meses. Se observó que la mayoría de los isómeros se producían en núcleos de número másico A impar, y que la mitad de estos estados metaestables correspondían a transiciones $M4$ (diferencia de 4 unidades en el momento angular), mientras que los restantes correspondían a transiciones $M3$, $E3$ y $E4$. En los casos estudiados, al graficar el número de isómeros en función de A , se observaron dos islas de isómeros (ésto es, un aumento notable en la cantidad de isómeros con ese número másico) correspondientes a números impares de A inmediatamente menores a los números mágicos 50 y 82 (Evans, 1955). Estos resultados son consistentes con las conclusiones de análisis teóricos previos, que

obtenían vidas medias de decaimientos γ entre 6×10^{-7} a 2×10^{21} segundos para transiciones con cambios de momento angular de 3 a 5 unidades.

Las islas de isómeros se producen en los isótopos que, por su número de nucleones, están cerca de completar una capa de la estructura nuclear que se obtiene del desarrollo del modelo nuclear de capas. Estas capas se completan con número de nucleones, tanto protones como neutrones, denominados mágicos, y se obtiene una configuración nuclear más estable, con energías de unión mayores que las que predice la fórmula semiempírica de masas, que las de los isótopos de número de nucleones similares. Los números mágicos de nucleones que predice el modelo de capas son 2, 8, 20, 50, 82 y 126. En la zona de las islas de isómeros las transiciones nucleares son del tipo E3 y M4, que corresponden a cambios en el momento angular de 3 y 4 unidades, con cambio de paridad. La existencia de islas de isómeros en la zona cercana previa a los números mágicos 50, 82 y 126 es consistente con los desarrollos teóricos del modelo de capas, que predice en esas zonas transiciones con cambios de energía pequeños y cambios de momento angular de varias unidades, lo que hace posible la existencia de estados excitados de un núcleo con vidas medias grandes (Bowler, 1973). La teoría que sustenta el modelo de capas supone que sólo un nucleón está involucrado en la transición, por lo que sólo los núcleos que tienen número impar de protones o neutrones tendrían isómeros, y por lo tanto el número másico A es impar. Esta condición se observa en la mayoría de los isómeros, y también en las islas de isómeros (Cohen, 1971). Sin embargo, existen isómeros que no cumplen con estas condiciones, correspondiendo a transiciones E2 o a núcleos con número de neutrones y protones par, y que no pueden explicarse bajo la hipótesis de transiciones de sólo un nucleón. Estos casos involucran transiciones colectivas de nucleones (Bowler, 1973).

La mayoría de los nucleidos que presentan isómeros tienen sólo un estado metaestable, pero también existen nucleidos que tienen dos. Los estados metaestables pueden decaer a través de dos mecanismos: decaimiento β o transiciones electromagnéticas. Muchos de los estados metaestables decaen por ambos mecanismos.

2.1.1. Decaimiento β de los estados metaestables

En este caso, el nivel excitado del núcleo decae emitiendo una partícula β^+ o β^- , o ambas como en el caso del $^{152}\text{Eu}^{\text{m2}}$, generando un núcleo con un protón más si el decaimiento es β^- , o con un protón menos si es β^+ . En la mayoría de los casos se generan estados excitados del núcleo producto, que, a los efectos experimentales, decaen instantáneamente (sus vidas medias son del orden de 10^{-16} s). Este decaimiento se produce emitiendo radiación γ que se asocia al decaimiento del estado metaestable del núcleo inicial, siendo la evolución temporal de estas emisiones γ regidas por la constante de decaimiento del estado metaestable del núcleo inicial. Si el estado fundamental del núcleo inicial no es estable, también puede decaer por el mismo mecanismo y alimentar los mismos niveles del núcleo producto, por lo que su decaimiento puede generar emisiones γ de la misma energía. Pero en este caso la evolución temporal de estas emisiones γ está regida por la constante de decaimiento del estado fundamental.

El decaimiento β es una de las tres formas básicas en que un núcleo inestable decae. A diferencia de las otras dos formas de decaimiento, α o γ , las partículas β^+ o β^- emitidas no tienen una energía definida, sino que tienen una distribución continua de energías a partir de cero y hasta un valor máximo que está relacionado con los niveles energéticos inicial y final del núcleo, como se verá más adelante. Esta característica de los decaimientos β llevaron a postular la existencia de una nueva partícula, el neutrino, transformándose el estado final del decaimiento β en un problema de tres cuerpos. Estudiando la participación del neutrino en diversos decaimientos se establece que su momento angular es $\frac{1}{2}$, y su masa debe ser extremadamente pequeña; menor a $60 \text{ eV}/c^2$ (la masa del electrón en reposo es $511 \text{ keV}/c^2$). Los neutrinos fueron observados experimentalmente por primera vez por Reines y Cowan, en 1953.

Un mecanismo alternativo a la emisión de una partícula β^+ es la captura electrónica. En este proceso, un electrón atómico, en general de la capa K, es absorbido por el núcleo en vez de producirse la emisión β^+ . Este proceso es competitivo del decaimiento β^+ , y está acompañado por la emisión de radiación X característica del átomo producto o electrones Auger.

El balance de masas, que representa el balance energético Q , entre el estado final e inicial de la reacción determina si ésta es posible cuando su valor es positivo. El planteo de este balance es diferente para cada uno de los tres procesos planteados.

$$Q^{\beta^-} = (M_Z - M_{Z+1})c^2 \quad \text{decaimiento } \beta^-$$

$$Q^{\beta^+} = (M_Z - M_{Z-1} - 2m_e)c^2 \quad \text{decaimiento } \beta^+$$

$$Q^{\text{CE}} = (M_Z - M_{Z-1})c^2 - B \quad \text{captura electrónica}$$

M_Z masa del núcleo inicial
 $M_{Z\pm 1}$ masa del núcleo final
 m_e masa del electrón
 B energía de unión del electrón capturado

En el caso de los procesos de decaimiento β , la energía se libera como energía cinética del electrón, neutrino o núcleo residual, y Q representa la energía máxima de las partículas β emitidas.

En algunos casos sucede que el balance de masas del decaimiento β^+ es negativo, por lo cual es energéticamente imposible, pero el del proceso de captura electrónica es positivo. En estas situaciones sólo es posible la captura electrónica.

2.1.2. Decaimiento electromagnético de los estados metaestables

Los procesos asociados al decaimiento de niveles excitados de un núcleo, que se describen en esta sección, se denominan electromagnéticos. La transición electromagnética de un estado excitado de un núcleo puede producirse por tres mecanismos que compiten

entre sí: la emisión de un rayo γ , conversión interna y creación interna de pares (Burcham, 1979). En el primer caso la energía liberada en la transición genera un fotón, y tenemos una emisión γ de esta energía y cuya evolución temporal se rige por la vida media del decaimiento del estado metaestable. Un ejemplo de este mecanismo es el que muestra la figura 2.1.1.

En el proceso de conversión interna, el núcleo excitado decae electromagnéticamente transfiriendo su energía de excitación a un electrón atómico en lugar de producir un rayo γ . Para que la conversión interna sea posible la energía de la transición debe ser mayor que la energía de unión del electrón emitido. La energía cinética del electrón emitido es la diferencia entre la energía de transición y su energía de unión, y por lo tanto tiene una energía discreta definida. Los electrones de conversión interna se identificaron por primera vez como una emisión de energía definida sobre la distribución continua de las emisiones del decaimiento β^- . Los electrones emitidos al interactuar con el núcleo durante su transición pueden ser de cualquiera de las capas atómicas, pero lo más frecuente es que pertenezcan a la capa K observándose también emisiones de electrones de las capas L y M. Las emisiones de electrones de conversión interna están acompañadas de rayos X característicos del átomo que se estudia o de electrones Auger, producidos por llenado de nivel atómico dejado vacante por el electrón emitido (Burcham, 1979). En el caso particular de transiciones en las que el momento angular del estado inicial y final es 0, la emisión γ no es posible, y el mecanismo que permite que la transición se produzca es la conversión interna.

Si la energía de la transición es mayor que $2m_e c^2$ (1022 keV), el núcleo excitado puede emitir un par electrón-positrón, y el mecanismo de decaimiento es la creación interna de pares. La probabilidad de que se produzca el decaimiento a través de este mecanismo es mayor en condiciones en que disminuye la probabilidad de la conversión interna (Burcham, 1979).

2.1.3. Isómeros estudiados en este trabajo

El caso más sencillo de isómeros es el que se muestra en el ejemplo de la figura 2.1.1. Es el caso de un núcleo que tiene sólo un estado metaestable que decae sólo en forma electromagnética, y el estado fundamental es estable. La figura 2.1.1 muestra el esquema de los niveles energéticos del ^{90}Y ; el estado metaestable decae al fundamental con una vida media de 15.23 s, emitiendo un rayo γ de 909 keV producto de una transición M4.

La figura 2.1.2 muestra parte del esquema de niveles energéticos del ^{58}Co . Este isótopo tiene dos isómeros. El estado metaestable decae en el fundamental con una vida media de 9.15 h, siendo la transición sólo electromagnética. El mecanismo principal de la transición electromagnética es la conversión interna, con la emisión de e^- como se describió en la sección 2.1.2, y una pequeña fracción de los decaimientos emite radiación γ . El estado fundamental de éste núcleo no es estable; decae con una vida media de 70.82 d, alimentando distintos niveles energéticos del núcleo ^{58}Fe . La transición se produce por captura electrónica y β^+ . En principio el decaimiento también se podría efectuar por β^- al

^{58}Ni , pero el Q de esta reacción, 381.5 keV, es mucho menor que el de la captura electrónica mencionada, 2307.4 keV (ver figura 2.1.2). La figura 2.1.3 muestra el esquema simplificado de decaimiento del ^{58}Fe , y cómo se alimentan sus estados excitados al decaer el $^{58}\text{Co}^f$. La mayoría de estos decaimientos, el 98.8 % (ver figura 2.1.3), alimentan el nivel de 810.8 keV, que en el 100 % de sus decaimientos emite un rayo γ de esa energía. El decaimiento electromagnético de este nivel excitado del ^{58}Fe se produce con una vida media de 6.54 ps (ver figura 2.1.3), por lo que se lo puede considerar instantáneo, y asociarlo al decaimiento del $^{58}\text{Co}^f$. Una fracción mucho menor de los decaimientos del $^{58}\text{Co}^f$ alimenta el nivel de 1674.7 keV del ^{58}Fe . La combinación de las fracciones de alimentación del nivel de 1674.7 y de decaimiento de ese nivel, hace que las emisiones de 1674.7 keV y 863.9 keV asociadas al decaimiento del $^{58}\text{Co}^f$ sean muy pocas; el 0.518 % y el 0.682 % respectivamente. En general, se define la fracción de producción de la emisión γ asociada al decaimiento de cierto núcleo (y_γ , yield), como la relación entre el número de rayos γ emitidos y el número de decaimientos de ese núcleo. Es común expresar esta relación en porcentaje (%). La tabla 2.1.1 muestra las fracciones de producción de las tres emisiones asociadas al decaimiento del $^{58}\text{Co}^f$.

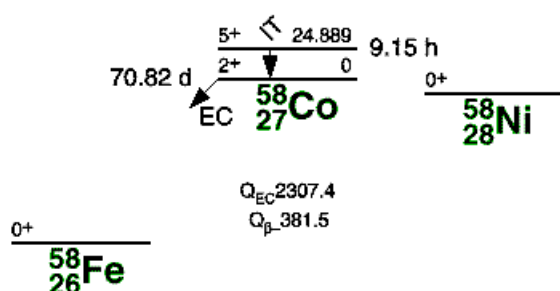


Figura 2.1.2 Estados isoméricos del núcleo ^{58}Co
Esquema de decaimiento del estado fundamental y
del metestable (Firestone, 1996)

Tabla 2.1.1 Parámetros del decaimiento del $^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Co}^m$

Isómero que genera la emisión	Núcleo emisor	Vida media ^{a,b}	Energía (keV) ^c	Producción y_γ (%) ^{a,c}
$^{58}\text{Co}^m$	$^{58}\text{Co}^f$	9.15 (10) h	24.889	0.0369 (11)
$^{58}\text{Co}^f$	^{58}Fe	70.82 (3) d	810.764	99.448 (8)
			863.935	0.683 (11)
			1674.679	0.518 (8)

^a se consigna entre paréntesis el error absoluto de cada valor

^b (Tuli, 1995)

^c (Firestone, 1996)

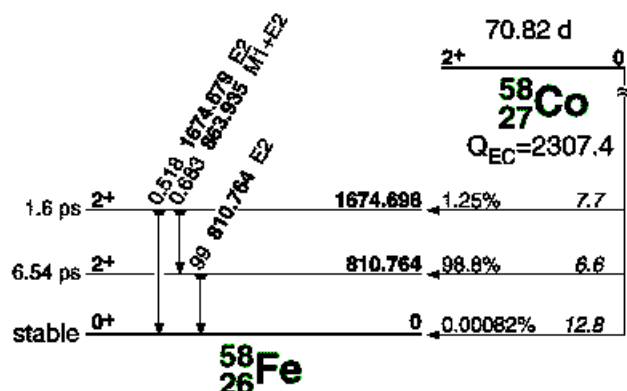


Figura 2.1.3 Esquema de decaimiento de los niveles excitados del ^{58}Fe alimentados por decaimiento del $^{58}\text{Co}^f$ (Firestone, 1996)

Otro par isómerico que se estudiará en este trabajo es el compuesto por el $^{53}\text{Fe}^f$ y el $^{53}\text{Fe}^m$. Al igual que en el caso de los isómeros del ^{58}Co , el estado metaestable decae en el fundamental sólo mediante una transición electromagnética. La figura 2.1.4 muestra el esquema de niveles energéticos del ^{53}Fe , mientras que las figuras 2.1.5 y 2.1.6 muestran los esquemas de decaimiento del ^{53}Mn y $^{53}\text{Fe}^f$, alimentados por el $^{53}\text{Fe}^f$ y el $^{53}\text{Fe}^m$ respectivamente.

El nivel fundamental decae, con una vida media de 8.51 m, por captura electrónica y por β^+ al ^{53}Mn emitiendo varios rayos gamma, de los cuales el único con una producción relevante es el de 377.9 keV (ver figura 2.1.5 y tabla 2.1.2). El estado metaestable, a diferencia del caso del $^{58}\text{Co}^m$ analizado anteriormente, decae emitiendo radiación gamma solamente (ver figura 2.1.6 y tabla 2.1.2).

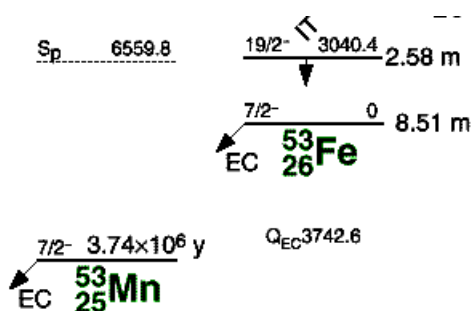


Figura 2.1.4 Estados isómericos del núcleo ^{53}Fe
Esquema de decaimiento del estado fundamental y del metaestable (Firestone, 1996)

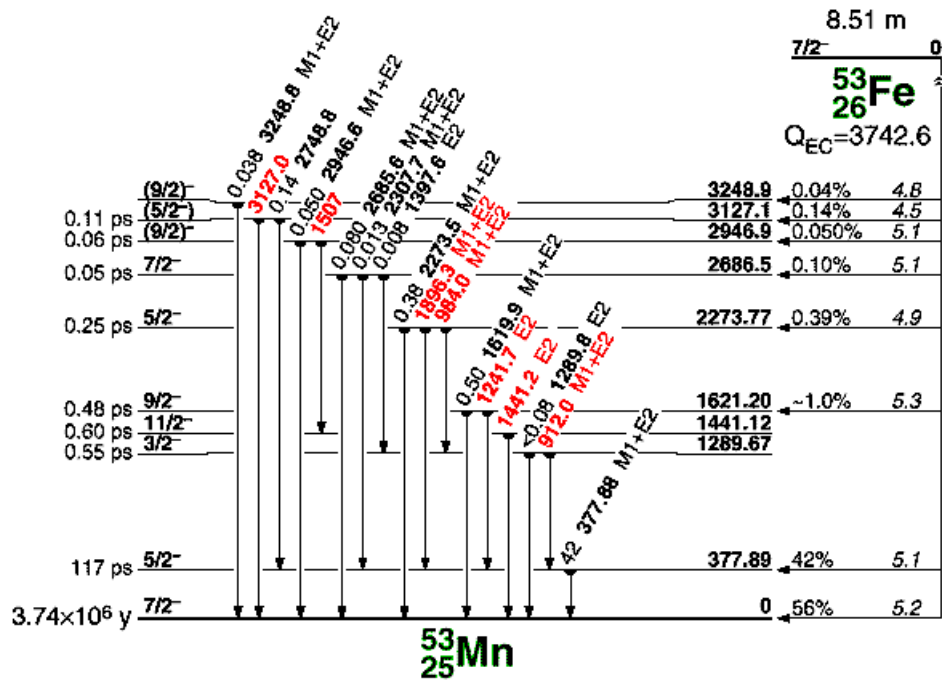


Figura 2.1.5 Esquema de decaimiento de los niveles excitados del ^{53}Mn alimentados por decaimiento del $^{53}\text{Fe}^f$ (Firestone, 1996)

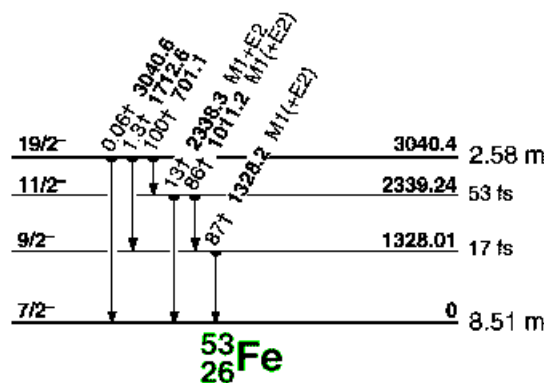


Figura 2.1.6 Esquema de decaimiento de los niveles excitados del $^{53}\text{Fe}^f$ alimentados por decaimiento del $^{53}\text{Fe}^m$ (Firestone, 1996)

Tabla 2.1.2 Parámetros del decaimiento del $^{53}\text{Fe}^f$ y $^{53}\text{Fe}^m$

Isómero que genera la emisión	Núcleo emisor	Vida media ^{a,b}	Energía (keV) ^c	Producción y_γ (%) ^{a,c}
$^{53}\text{Fe}^m$	$^{53}\text{Fe}^f$	2.526 (24) m	701.1	100 (8)
			1011.5	86 (12)
			1328.1	87 (11)
			2339.7	13 (2)
$^{53}\text{Fe}^f$	^{53}Mn	8.51 (2) m	377.9	42 (3)

^a se consigna entre paréntesis el error absoluto de cada valor

^b Tuli, 2000

^c Firestone, 1996

En el caso de los isómeros del ^{44}Sc , se agrega a los ejemplos anteriores el decaimiento del estado metaestable por captura electrónica y β^+ al ^{44}Ca en el 1.20 % de los decaimientos, mientras que en el 98.80 % ocurre un proceso electromagnético (ver figura 2.1.7). El estado fundamental de este núcleo también decae al ^{44}Ca , alimentando estados excitados que también se originan en el decaimiento del nivel metaestable (ver figuras 2.1.8 y 2.1.9). Por lo tanto, algunas emisiones γ serán generadas por el decaimiento de los dos isómeros del núcleo ^{44}Sc , y cuando se las mide no se distingue que isómero están asociadas. Este es el caso del rayo γ de 1157 keV del ejemplo que analizamos. En la tabla 2.1.3, que muestra la energía de las emisiones γ originadas en el decaimiento del par de isómeros $^{44}\text{Sc}^{m+f}$ incluyendo la producción de cada uno, también se puede observar que la emisión de 1157 keV está asociada al decaimiento de ambos isómeros.

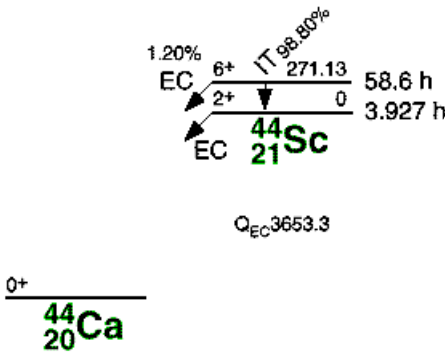


Figura 2.1.7 Estados isoméricos del núcleo ^{44}Sc
Esquema de decaimiento del estado fundamental y del metaestable (Firestone, 1996)

Tabla 2.1.3 Parámetros del decaimiento del $^{44}\text{Sc}^f$ y $^{44}\text{Sc}^m$

Isómero que genera la emisión	Núcleo emisor	Vida media ^{a,b}	Energía (keV) ^c	Producción y_γ (%) ^{a,c}
$^{44}\text{Sc}^m$	$^{44}\text{Sc}^f$ ^{44}Ca	58.6 (1) h	271.13	86.8 (3)
			1001.85	1.20 (7)
			1126.08	1.20 (7)
			1157.031	1.20 (7)
$^{44}\text{Sc}^f$	^{44}Ca	3.927 (8) h	1157.031	99.9 (1)
			1499.43	0.912 (15)
			2144.2	0.0069 (15)
			2656.41	0.115 (6)
			3301.2	0.0031 (15)

^a se consigna entre paréntesis el error absoluto de cada valor

^b (Tuli, 1995)

^c (Firestone, 1996)

El ejemplo que se presenta a continuación agrega un elemento más al anterior, y es que el producto del decaimiento de sus isómeros también presenta dos isómeros. Se trata del $^{89}\text{Zr}^{m+f}$, cuyo esquema de niveles se muestra en la figura 2.1.10. El estado metaestable decae al $^{89}\text{Y}^f$ por captura electrónica en el 6.23 % de las transiciones, y por conversión interna al nivel fundamental $^{89}\text{Zr}^f$ en los casos restantes. El estado fundamental, en cambio, decae por β^+ tanto al $^{89}\text{Y}^f$ como al $^{89}\text{Y}^m$ (ver figuras 2.1.11 y 2.1.12).

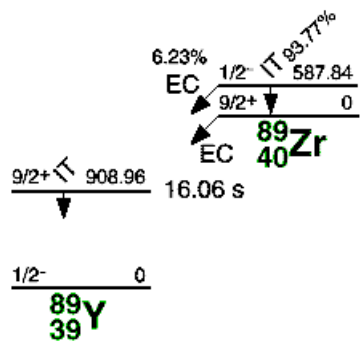


Figura 2.1.10 Estados isoméricos del núcleo ^{89}Zr
Esquema de decaimiento del estado fundamental y
del metaestable (Firestone, 1996)

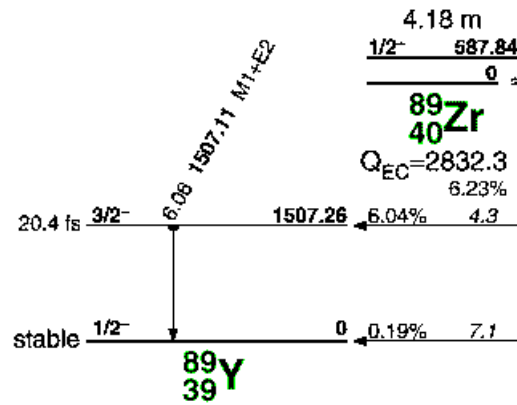


Figura 2.1.11 Esquema de decaimiento de los niveles excitados del $^{89}\text{Y}^{\text{m}+\text{f}}$ alimentados por decaimiento del $^{89}\text{Zr}^{\text{m}}$ (Firestone, 1996)

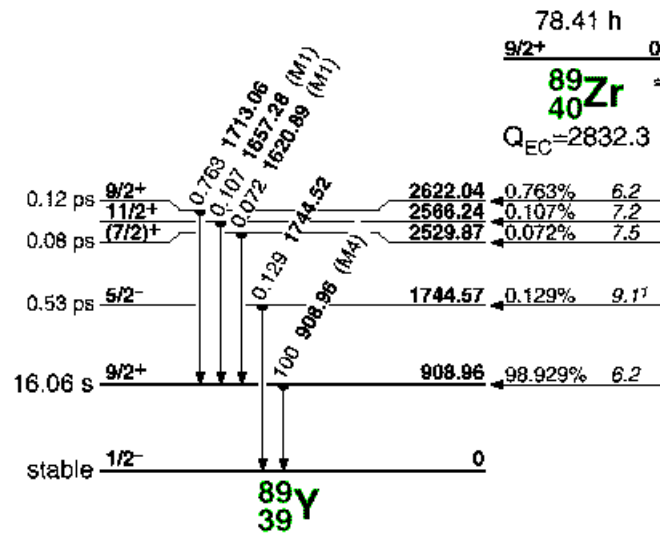


Figura 2.1.12 Esquema de decaimiento de los niveles excitados del $^{89}\text{Y}^{\text{m}+\text{f}}$ alimentados por decaimiento del $^{89}\text{Zr}^{\text{f}}$ (Firestone, 1996)

Tabla 2.1.4 Parámetros del decaimiento del $^{89}\text{Zr}^f$ y $^{89}\text{Zr}^m$

Isómero que genera la emisión	Núcleo emisor	Vida media ^{a,b}	Energía (keV) ^c	Producción y_γ (%) ^{a,c}
$^{89}\text{Zr}^m$ $^{89}\text{Zr}^f$	$^{89}\text{Zr}^f$	4.161 (17) m	587.79	89.51 (17)
	$^{89}\text{Y}^f$		1507.3	6.05 (18)
	$^{89}\text{Y}^f$	78.41 (12) h	1620.76	0.072 (5)
			1657.26	0.107 (4)
			1712.8	0.763 (13)
			1744.47	0.129 (3)
	$^{89}\text{Y}^f$ ($^{89}\text{Y}^m$) ^d		909.14	99.871 (3)

^a se consigna entre paréntesis el error absoluto de cada valor

^b (Tuli, 2000)

^c (Firestone, 1996)

^d esta emisión γ se genera en el decaimiento del $^{89}\text{Y}^m$, que tiene una vida media de 15.28 ± 0.17 s (Tuli, 2000) por lo que no puede considerarse instantáneo. Por lo tanto la vida media de esta emisión, originada en el $^{89}\text{Zr}^f$, es la composición de ambos decaimientos.

La emisión γ que se produce en la transición del $^{89}\text{Y}^m$ tiene una vida media de 15.28 ± 0.17 s (Tuli, 2000), por lo tanto no se la puede considerar instantánea como lo habíamos supuesto hasta ahora con todas las emisiones de productos de decaimientos nucleares. Y, si bien esa emisión γ está originada en el decaimiento del $^{89}\text{Zr}^f$, no se la puede asociar directamente, y la vida media del estado que emite el rayo γ resultará de la composición de ambos decaimientos.

2.2. Reacciones nucleares con neutrones: ecuaciones

2.2.1. Reacciones que generan un solo producto radioactivo

La evolución temporal del número de átomos que se producen en una reacción nuclear se obtiene de la resolución de la ecuación de activación, que expresa el balance entre los átomos que se producen por la reacción que se estudia y los que desaparecen por decaimiento radioactivo. En el caso genérico más sencillo, donde B representa los núcleos que son bombardeados por los neutrones y P el núcleo que se produce, la ecuación toma la forma

$$\frac{dN_P}{dt} = N_B \phi \sigma - \lambda_P N_P \quad (2.2.1)$$

donde σ es la sección eficaz de los núcleos B para la reacción que se estudia en un flujo ϕ de neutrones de una distribución energética dada, y λ_P es la constante de decaimiento del nucleido P. N_B es el número de núcleos B que se bombardean, mientras que N_P es el número de núcleos P que tenemos en el instante t. La solución de la ecuación (2.2.1), considerando que N_B no varía en el tiempo, y que en el instante inicial no hay núcleos P, es

$$N_P = \frac{N_B \phi \sigma}{\lambda_P} (1 - e^{-\lambda_P t}) \quad (2.2.2)$$

Si consideramos que el número de núcleos B varía con el tiempo, disminuyendo en una cantidad igual a N_P , la ecuación (2.2.2) toma la forma

$$N_P = \frac{N_B \phi \sigma}{\lambda_P - \sigma_T \phi} (e^{-\sigma_T \phi t} - e^{-\lambda_P t})$$

donde σ_T es la sección eficaz total de captura neutrónica del nucleido B, y ahora N_B es el número inicial de núcleos B que se bombardean. En general se cumple que $\lambda_P \gg \sigma_T \phi$, y en estos casos podemos considerar que N_B es constante, siendo válida la solución (2.2.2).

La solución de la ecuación (2.2.1), expresadas por la fórmula (2.2.2), es válida durante la irradiación de las muestras. Luego de retirada la muestra del campo de neutrones (o luego de extinguido el reactor) sigue valiendo la ecuación (2.2.1), pero ahora ϕ es 0. La solución de (2.2.1), tomando como condición inicial de N_P el valor obtenido al final de la irradiación ($t=t_i$, tiempo de irradiación) representa la evolución de los productos de la reacción luego de la irradiación; durante su decaimiento y medición. Esta evolución es representada por la fórmula (2.2.3).

$$N_P = \frac{N_B \phi \sigma}{\lambda_P} (1 - e^{-\lambda_P t_i}) e^{-\lambda_P t} \quad (2.2.3)$$

Integrando la actividad del nucleido P, que se obtiene a partir de la fórmula (2.2.3) como $\lambda_P N_P$, en el lapso de medición (t_d , $t_d + t_c$), podemos obtener una relación entre los decaimientos que se producen en ese lapso, y que podemos medir con cierta eficiencia, y los restantes parámetros, lo que se expresa en la fórmula (2.2.4).

$$A_{P,\gamma} = Ef_\gamma y_\gamma \frac{N_B \phi \sigma}{\lambda_P} (1 - e^{-\lambda_P t_i}) (1 - e^{-\lambda_P t_c}) e^{-\lambda_P t_d} \quad (2.2.4)$$

- t_i tiempo de irradiación
- t_d tiempo de decaimiento
- t_c tiempo de medición
- y_γ fracción de los decaimientos del nucleido P que producen la emisión γ
- Ef_γ eficiencia del sistema de medición para la energía de la emisión γ
- $A_{P,\gamma}$ número de emisiones γ detectado

con

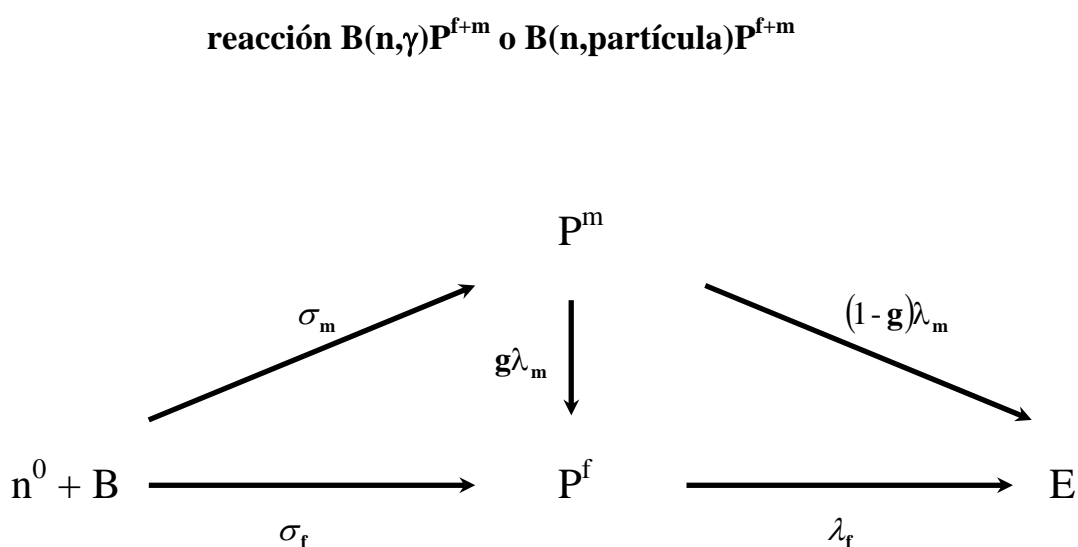
$$N_B = \frac{mA_{iso} N_{Av} p}{PA}$$

- m masa de la muestra irradiada
- A_{iso} abundancia isotópica del nucleido estudiado
- N_{Av} número de Avogadro
- p pureza del material
- PA peso atómico del elemento

La solución de la ecuación básica de activación (fórmula (2.2.4)) se puede utilizar en diversas aplicaciones, como la determinación del flujo neutrónico, la sección eficaz o la actividad de los productos de activación, y resulta del planteo más sencillo del problema.

2.2.2. Reacciones que generan dos isómeros

Planteemos ahora las ecuaciones generales correspondientes a una reacción nuclear con neutrones cuyo producto no sea estable y tenga un estado metaestable. En la figura 2.2.1 se representa el esquema de la reacción, y las ecuaciones (2.2.5) representan la reacción.



- σ_f sección eficaz de la reacción al estado fundamental
- σ_m sección eficaz de la reacción al estado metaestable
- λ_f constante de decaimiento del estado fundamental
- λ_m constante de decaimiento del estado metaestable
- $1-g$ fracción de núcleos del estado metaestable que generan directamente el nucleido E
- g fracción de núcleos del estado metaestable que decaen al estado fundamental

Figura 2.2.1 Esquema de una reacción nuclear con neutrones cuyo producto no es estable y tiene un estado metaestable

$$\begin{cases} \frac{dN_m}{dt} = N_B \phi \sigma_m - \lambda_m N_m \\ \frac{dN_f}{dt} = N_B \phi \sigma_f + \lambda_m N_m - \lambda_f N_f \end{cases} \quad (2.2.5)$$

N_B número de núcleos del isótopo B
 N_f número de núcleos del isótopo P en su estado fundamental
 N_m número de núcleos del isótopo P en su estado metaestable
 ϕ flujo neutrónico, de cierta distribución energética

La solución de las ecuaciones (2.2.5), considerando que N_B no varía y que en el instante inicial no hay núcleos P^f ni P^m , está expresadas por las fórmulas (2.2.6).

$$\begin{cases} N_m = \frac{N_B \phi \sigma_m}{\lambda_m} (1 - e^{-\lambda_m t}) \\ N_f = \frac{N_B \phi}{\lambda_f} (\sigma_f + \sigma_m g) (1 - e^{-\lambda_f t}) + \frac{N_B \phi \sigma_m g}{\lambda_m - \lambda_f} (e^{-\lambda_m t} - e^{-\lambda_f t}) \end{cases} \quad (2.2.6)$$

Al igual que en el caso planteado previamente, la solución de las ecuaciones (2.2.5), expresadas por las fórmulas (2.2.6), es válida durante la irradiación de las muestras. Luego de suprimida la fuente de neutrones, siguen siendo válidas las ecuaciones (2.2.5), pero ahora ϕ es 0. La solución de estas ecuaciones, tomando como condiciones iniciales de N_f y N_m los valores obtenidos al final de la irradiación ($t=t_i$, tiempo de irradiación) representa la evolución de los productos de la reacción luego de la irradiación; durante su decaimiento y medición. Las fórmulas (2.2.7) expresan esta evolución.

$$\begin{cases} N_m = \frac{N_B \phi \sigma_m}{\lambda_m} (1 - e^{-\lambda_m t_i}) e^{-\lambda_m t} \\ N_f = \frac{N_B \phi (1 - e^{-\lambda_f t_i})}{\lambda_f (\lambda_m - \lambda_f)} [(\sigma_f + \sigma_m g) \lambda_m - \sigma_f \lambda_f] e^{-\lambda_f t} - \frac{N_B \phi \sigma_m g}{\lambda_m - \lambda_f} (1 - e^{-\lambda_m t_i}) e^{-\lambda_m t} \end{cases} \quad (2.2.7)$$

Al igual que en el caso anterior, la integral de la actividad de ambos nucleidos, $\lambda_f N_f$ y $\lambda_m N_m$, en el lapso de medición nos permite relacionar las mediciones con el resto de los parámetros. El resultado de la integración se observa en las fórmulas (2.2.8).

$$\left\{ \begin{array}{l} A_{m,\gamma} = E f_{\gamma} y_{m,\gamma} \frac{N_B \phi \sigma_m}{\lambda_m} (1 - e^{-\lambda_m t_i}) (1 - e^{-\lambda_m t_c}) e^{-\lambda_m t_d} \\ A_{f,\gamma'} = E f_{\gamma'} y_{f,\gamma'} \frac{N_B \phi (1 - e^{-\lambda_f t_i})}{\lambda_f (\lambda_m - \lambda_f)} [(\sigma_f + \sigma_m g) \lambda_m - \sigma_f \lambda_f] (1 - e^{-\lambda_f t_c}) e^{-\lambda_f t_d} - \\ - E f_{\gamma'} y_{f,\gamma'} \frac{\lambda_f N_B \phi \sigma_m g}{\lambda_m (\lambda_m - \lambda_f)} (1 - e^{-\lambda_m t_i}) (1 - e^{-\lambda_m t_c}) e^{-\lambda_m t_d} \end{array} \right. \quad (2.2.8)$$

t_i tiempo de irradiación

t_d tiempo de decaimiento

t_c tiempo de medición

$y_{f,\gamma}$ fracción de los decaimientos del nucleido P^f que producen la emisión γ

$y_{m,\gamma'}$ fracción de los decaimientos del nucleido P^m que producen la emisión γ'

$E f_{\gamma}$ eficiencia del sistema de medición para la energía de la emisión γ

$E f_{\gamma'}$ eficiencia del sistema de medición para la energía de la emisión γ'

$A_{m,\gamma}$ número de emisiones γ detectado

$A_{f,\gamma'}$ número de emisiones γ' detectado

Las emisiones γ que medimos asociadas al decaimiento del estado fundamental corresponden al decaimiento instantáneo de los niveles excitados del núcleo E. La fracción (1-g) de los decaimientos del estado metaestable (ver figura 2.2.1) puede generar las mismas emisiones, ya que también alimenta niveles excitados del núcleo E. Si consideramos que en ambos casos observamos la misma emisión, la medición que obtengamos será la suma de las correspondientes al nivel fundamental y al metaestable.

$$A_{T,\gamma} = A_{f,\gamma} + A_{m,\gamma} \therefore$$

$$A_{T,\gamma} = E f_{\gamma} N_B \phi \left\{ \left[\sigma_f + \frac{g \sigma_m \lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f} \right] \frac{F_f}{\lambda_f} y_{f,\gamma} + \left[y_{m,\gamma} - y_{f,\gamma} \frac{g \lambda_f}{\lambda_m - \lambda_f} \right] \frac{F_m \sigma_m}{\lambda_m} \right\} \quad (2.2.9)$$

con

$$F_m = (1 - e^{-\lambda_m t_i}) (1 - e^{-\lambda_m t_c}) e^{-\lambda_m t_d}$$

$$F_f = (1 - e^{-\lambda_f t_i}) (1 - e^{-\lambda_f t_c}) e^{-\lambda_f t_d}$$

N_B tiene la misma expresión que en la ecuación (2.2.4)

La fórmula (2.2.9) vincula la medición de la emisión γ con parámetros nucleares de la reacción que se estudia, en particular las secciones eficaces de producción de los estados

fundamental y metaestable, σ_f y σ_m . La ecuación (2.2.9) se puede reformular de modo de colocar en el primer miembro los parámetros asociados a la medición y los parámetros nucleares conocidos, dejando en el segundo miembro las secciones eficaces, con lo que se obtiene la formulación (2.2.10).

$$\frac{A_{T,\gamma}}{y_{f,\gamma} E f_\gamma N_B \phi F_m} = \left(\sigma_f + \frac{g \sigma_m \lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f} \right) \frac{F_f}{\lambda_f F_m} + \left(\frac{y_{m,\gamma}}{y_{f,\gamma}} - \frac{g \lambda_f}{\lambda_m - \lambda_f} \right) \frac{\sigma_m}{\lambda_m} \quad (2.2.10)$$

Si tomamos mediciones de γ con distintos tiempos de irradiación, decaimiento y medición (t_i , t_d y t_c), en la ecuación (2.2.10) sólo se alterará el primer miembro y el factor F_f/F_m del segundo miembro, siguiendo una relación lineal que se puede expresar como

$$Y = aX + b \quad (2.2.11)$$

con

$$X = \frac{F_f}{\lambda_f F_m} \quad a = y_{f,\gamma} E f_\gamma N_B \phi \left(\sigma_f + \frac{g \sigma_m \lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f} \right) \quad (2.2.11a)$$

$$Y = \frac{A_{T,\gamma}}{F_m} \quad b = y_{f,\gamma} E f_\gamma N_B \phi \left(\frac{y_{m,\gamma}}{y_{f,\gamma}} - \frac{g \lambda_f}{\lambda_m - \lambda_f} \right) \frac{\sigma_m}{\lambda_m} \quad (2.2.11b)$$

Si tomamos varias mediciones de γ en estas condiciones, podemos efectuar un ajuste lineal por cuadrados mínimos de ellas, obteniendo los parámetros a y b , y con ellos, utilizando las ecuaciones (2.2.11a) y (2.2.11b), determinar σ_f y σ_m (ecuaciones (2.2.12a) y (2.2.12b)). Las mediciones de secciones eficaces que se exponen en este trabajo se realizaron utilizando esta metodología de cálculo.

$$\sigma_f = \frac{a}{y_{f,\gamma} E f_\gamma N_B \phi} + \frac{b g \lambda_m^2}{E f_\gamma N_B \phi ((\lambda_f - \lambda_m) y_{m,\gamma} + \lambda_f g y_{f,\gamma})} \quad (2.2.12a)$$

$$\sigma_m = \frac{\lambda_m \mathbf{b}}{\mathbf{y}_{f,\gamma} \mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma} \mathbf{N}_B \phi} \left(\frac{\mathbf{y}_{m,\gamma}}{\mathbf{y}_{f,\gamma}} - \frac{\mathbf{g} \lambda_f}{\lambda_m - \lambda_f} \right)^{-1} \quad (2.2.12b)$$

En la aplicación experimental de este desarrollo resta determinar el valor del flujo neutrónico, cuya distribución de energía, como ya se expuso, esta asociada a los parámetros nucleares que queremos medir. El flujo neutrónico se obtiene utilizando un monitor de flujo que se irradia junto con la muestra que se estudia, y aplicando la ecuación (2.2.4) que en este caso se transforma en la (2.2.13).

$$\phi = \frac{\lambda_M \mathbf{A}_{M,\gamma} \mathbf{P} \mathbf{A}_M}{\mathbf{m}_M \mathbf{N}_{Av} \mathbf{A}_{iso} \mathbf{P}_M \mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma} \mathbf{y}_{\gamma} \sigma_M \mathbf{F}_M} \quad (2.2.13)$$

con

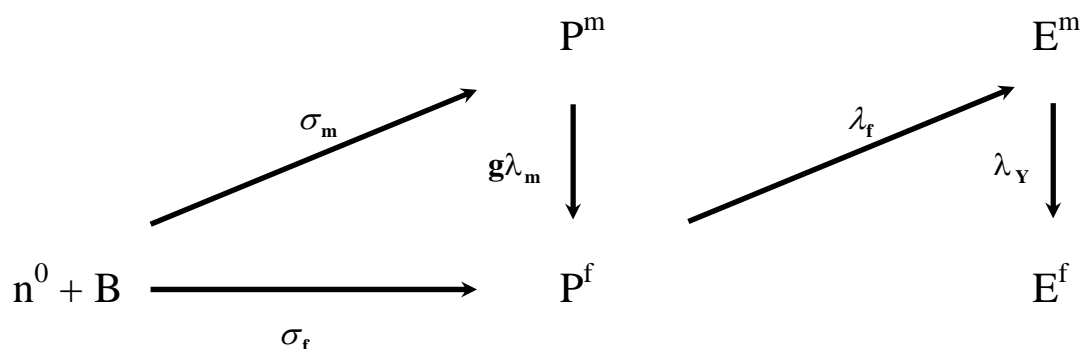
$$\mathbf{F}_M = (1 - e^{-\lambda_M t_i})(1 - e^{-\lambda_M t_c})e^{-\lambda_M t_d}$$

De esta forma las determinaciones de las secciones eficaces de los elementos estudiados quedan referidas al valor de sección eficaz del monitor utilizado, σ_M .

2.2.3. Reacción con neutrones que genera dos isómeros, decayendo con emisiones γ y no instantáneas

Una reacción con neutrones que vamos a estudiar en este trabajo es la $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^{m+f}$, para determinar experimentalmente las secciones eficaces de producción de cada isómero, σ_f y σ_m , promediadas en un espectro de fisión. En la sección 2.1.3 se describió el núcleo ^{89}Zr ; se expusieron sus niveles energéticos (ver figura 2.1.10), el esquema de decaimiento del estado metaestable (ver figura 2.1.11) y del estado fundamental (ver figura 2.1.12). En la tabla 2.1.4 se pueden observar los parámetros de decaimiento de los isómeros $^{89}\text{Zr}^{m+f}$.

**reacción $B(n,\gamma)P^{f+m}$ o $B(n,\text{partícula})P^{f+m}$
con el producto P^f decayendo a un estado metaestable E^f**



- σ_f sección eficaz de la reacción al estado fundamental
- σ_m sección eficaz de la reacción al estado metaestable
- λ_f constante de decaimiento del estado fundamental
- λ_m constante de decaimiento del estado metaestable
- λ_Y constante de decaimiento del estado metaestable al que decae el producto P^f
- g fracción de núcleos del estado metaestable que decaen al estado fundamental

Figura 2.2.2 Esquema de una reacción nuclear con neutrones cuyo producto no es estable y tiene un estado metaestable, y el estado fundamental del producto decae a un estado metaestable

En este caso, todos los decaimientos del $^{89}\text{Zr}^f$ ($T_{1/2}=78.41 \pm 0.12$ h; Tuli, 2000) alimentan el estado metaestable $^{89}\text{Y}^m$ ($T_{1/2}=15.28 \pm 0.17$ s; Tuli, 2000), que decae emitiendo un rayo γ de 909.14 keV (ver figura 2.1.1) con una producción y_γ cercana al 100 % (ver tabla 2.1.3). El decaimiento del $^{89}\text{Zr}^f$ también alimenta otros niveles excitados del $^{89}\text{Y}^m$, pero su producción y_γ es muy baja (ver tabla 2.1.3), siendo difícil su detección. El decaimiento del $^{89}\text{Zr}^m$ ($T_{1/2}=4.161 \pm 0.017$ m; Tuli, 2000) alimenta sólo un nivel excitado del $^{89}\text{Y}^f$, que decae emitiendo un rayo γ de 1507.3 keV (ver figura 2.1.8 y tabla 2.1.3), y al decaer al estado $^{89}\text{Zr}^f$ emite un rayo γ de 587.79 keV. Por lo tanto, el único rayo γ que relaciona ambos isómeros del ^{89}Zr es la emisión que se produce por el decaimiento del $^{89}\text{Y}^m$. Pero esta emisión no puede considerarse instantánea al comparar su vida media con la del $^{89}\text{Zr}^m$, y por lo tanto el desarrollo planteado en la sección 2.2.2 no es válido en este caso. A las ecuaciones (2.2.5) tenemos que añadir el decaimiento del estado metaestable, cuyas emisiones mediremos. Las ecuaciones (2.2.14) representan el caso que estudiamos,

considerando ahora el esquema de la figura 2.2.2 que muestra que el producto del decaimiento de P^f tiene un estado metaestable E^m , sólo alimentado por el decaimiento del estado fundamental P^f , dado que el decaimiento del $^{89}\text{Zr}^m$ no alimenta el $^{89}\text{Y}^m$ (ver figuras 2.1.7, 2.1.8 y 2.1.9).

$$\begin{cases} \frac{\partial N_m}{\partial t} = N_B \phi \sigma_m - \lambda_m N_m \\ \frac{\partial N_f}{\partial t} = N_B \phi \sigma_f + \lambda_m g N_m - \lambda_f N_f \\ \frac{\partial N_Y}{\partial t} = \lambda_f N_f - \lambda_Y N_Y \end{cases} \quad (2.2.14)$$

N_Y núcleos del isótopo $^{89}\text{Y}^m$
 λ_Y constante de decaimiento del $^{89}\text{Y}^m$

El sistema de ecuaciones diferenciales (2.2.14) representa el esquema de la figura 2.2.2. La inclusión de la nueva ecuación no modifica las ecuaciones expuestas en (2.2.5), y por lo tanto su resolución tanto durante la irradiación de las muestras como durante el decaimiento, es la que se detalló en la sección 2.2.2.

En la resolución de la ecuación que representa la evolución del número de núcleos de $^{89}\text{Y}^m$, N_Y , utilizaremos la solución de las ecuaciones (2.2.5).

Durante la irradiación de la muestra la evolución temporal de N_Y es representada por la ecuación (2.2.15).

$$\begin{aligned} N_Y = & \frac{F + M}{\lambda_Y} (1 - e^{-\lambda_Y t}) - \frac{\lambda_m (F + M) - \lambda_f F}{(\lambda_Y - \lambda_f)(\lambda_m - \lambda_f)} (e^{-\lambda_f t} - e^{-\lambda_Y t}) + \\ & + \frac{\lambda_f M}{(\lambda_Y - \lambda_m)(\lambda_m - \lambda_f)} (e^{-\lambda_m t} - e^{-\lambda_Y t}) \end{aligned} \quad (2.2.15)$$

$$F = N_B \phi \sigma_f$$

$$M = g N_B \phi \sigma_m$$

La ecuación (2.2.15) evaluada en $t=t_i$ representa el número de núcleos de $^{89}\text{Y}^m$ contenidos en la muestra al finalizar la irradiación. Tomando este valor como condición inicial, podemos determinar la evolución de N_Y durante el decaimiento y medición de la muestra. Ésta evolución está representada en la ecuación (2.2.16).

$$\begin{aligned} N_Y = & \left[\frac{F + M}{\lambda_Y} - \frac{\lambda_m(F + M) - \lambda_f F}{(\lambda_Y - \lambda_f)(\lambda_m - \lambda_f)} - \frac{\lambda_f M}{(\lambda_Y - \lambda_m)(\lambda_m - \lambda_f)} \right] (1 - e^{-\lambda_Y t_i}) e^{-\lambda_Y t} + \\ & + \frac{\lambda_m(F + M) - \lambda_f F}{(\lambda_Y - \lambda_f)(\lambda_m - \lambda_f)} (1 - e^{-\lambda_f t_i}) e^{-\lambda_f t} - \frac{\lambda_f M}{(\lambda_Y - \lambda_m)(\lambda_m - \lambda_f)} (1 - e^{-\lambda_m t_i}) e^{-\lambda_m t} \end{aligned} \quad (2.2.16)$$

Integrando la actividad de $^{89}\text{Y}^m$, $\lambda_Y N_Y$, en el intervalo de medición, obtenemos una expresión de la medición que efectuamos, al multiplicarla por la eficiencia del sistema de detección y la producción y_γ del rayo γ medido. La ecuación (2.2.17) muestra esta expresión.

$$\begin{aligned} \frac{A_\gamma}{y_\gamma E f_\gamma} = & (F + M) \frac{F_Y}{\lambda_Y} + \frac{\lambda_m(F + M) - \lambda_f F}{\lambda_f(\lambda_Y - \lambda_f)(\lambda_m - \lambda_f)} (\lambda_Y F_f - \lambda_f F_Y) - \\ & - \frac{\lambda_f M}{\lambda_m(\lambda_Y - \lambda_m)(\lambda_m - \lambda_f)} (\lambda_Y F_m - \lambda_m F_Y) \end{aligned} \quad (2.2.17)$$

con

$$F_Y = (1 - e^{-\lambda_Y t_i})(1 - e^{-\lambda_Y t_c}) e^{-\lambda_Y t_d}$$

La expresión obtenida en (2.2.17) no nos permite una parametrización lineal que deje como variables X e Y sólo factores de tiempo y como parámetros factores que contengan σ_f y σ_m , tal como se hizo en (2.2.11).

La expresión (2.2.18) se obtiene reagrupando la ecuación (2.2.17).

$$\begin{aligned} \frac{A_\gamma}{y_\gamma E f_\gamma} = & \mathbf{FL} \left(\frac{F_f}{\lambda_f^2} - \frac{F_Y}{\lambda_Y^2} \right) + \\ & + \mathbf{ML} \frac{\lambda_m}{(\lambda_Y - \lambda_m)(\lambda_m - \lambda_f)} \left[\lambda_f \left(\frac{F_m}{\lambda_m^2} - \frac{F_Y}{\lambda_Y^2} \right) - \lambda_m \left(\frac{F_f}{\lambda_f^2} - \frac{F_Y}{\lambda_Y^2} \right) + \lambda_Y \left(\frac{F_f}{\lambda_f^2} - \frac{F_m}{\lambda_m^2} \right) \right] \end{aligned} \quad (2.2.18)$$

con

$$\mathbf{L} = \frac{\lambda_Y \lambda_f}{\lambda_Y - \lambda_f}$$

En el caso que estudiamos $\lambda_Y \gg \lambda_f$ ($\lambda_Y = 4.54 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ y $\lambda_f = 2.46 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$), por lo tanto $L \approx \lambda_f$, y la ecuación (2.2.18) toma la siguiente forma

$$\frac{A_\gamma}{y_\gamma E f_\gamma} = F \lambda_f \left(\frac{F_f}{\lambda_f^2} - \frac{F_Y}{\lambda_Y^2} \right) + M \frac{\lambda_m \lambda_f}{(\lambda_Y - \lambda_m)(\lambda_m - \lambda_f)} \left[\lambda_f \left(\frac{F_m}{\lambda_m^2} - \frac{F_Y}{\lambda_Y^2} \right) - \lambda_m \left(\frac{F_f}{\lambda_f^2} - \frac{F_Y}{\lambda_Y^2} \right) + \lambda_Y \left(\frac{F_f}{\lambda_f^2} - \frac{F_m}{\lambda_m^2} \right) \right] \quad (2.2.19)$$

Para determinar las secciones eficaces σ_f y σ_m estudiando la evolución temporal de la emisión γ que se produce asociada al decaimiento de los productos, se deben seleccionar tiempos de irradiación, decaimiento y medición adecuados, de modo que en las mediciones se refleje el decaimiento de ambos isómeros. Además se busca que el tiempo de irradiación sea lo más grande posible, compatible con la activación de otros productos. En este caso, la vida media del estado metaestable, 4.161 m, determina que el tiempo de decaimiento sea lo más pequeño posible, de pocos minutos, al igual que el tiempo de medición de los primeros espectros. El tiempo de irradiación no puede ser mucho mayor que dos vidas medias, para no privilegiar la producción del estado fundamental respecto del metaestable, cuya determinación será la más difícil teniendo en cuenta las limitaciones en tiempo de medición. Teniendo en cuenta estas consideraciones, se eligieron diferentes tiempos de irradiación, decaimiento y medición con los que se estudió la variación de los términos de la ecuación (2.2.19) que incluyen los factores de tiempo de los isómeros del ^{89}Zr y el $^{89}\text{Y}^m$. Los resultados se muestran en la tabla 2.2.1. En las dos últimas columnas se puede observar la relación entre el cociente del factor de tiempos del estado metaestable del itrio y el cuadrado de su constante de decaimiento, y el mismo cociente de los isómeros del ^{89}Zr . Para tiempos de decaimiento mayores a 2 m esta relación es mayor que 10^3 para todas las combinaciones de tiempos de irradiación y medición considerados, y por lo tanto en estas condiciones en la ecuación (2.2.19) se pueden despreciar los términos que incluyen los factores de tiempo correspondientes al $^{89}\text{Y}^m$. Con esta aproximación la ecuación (2.2.19) toma la siguiente forma

$$\frac{A_\gamma}{y_\gamma E f_\gamma} = F \frac{F_f}{\lambda_f} + M \frac{\lambda_m \lambda_f}{(\lambda_Y - \lambda_m)(\lambda_m - \lambda_f)} \left[\lambda_f \frac{F_m}{\lambda_m^2} - \lambda_m \frac{F_f}{\lambda_f^2} + \lambda_Y \left(\frac{F_f}{\lambda_f^2} - \frac{F_m}{\lambda_m^2} \right) \right] \quad (2.2.20)$$

Tabla 2.2.1 Evaluación de los parámetros de la ecuación (2.2.19) para diferente tiempos de irradiación, decaimiento y medición

tiempo de irradiación (m)	tiempo de decaimiento o (m)	tiempo de medición (m)	$\frac{F_f}{\lambda_f^2}$	$\frac{F_m}{\lambda_m^2}$	$\frac{F_Y}{\lambda_Y^2}$	$\frac{F_f / \lambda_f^2}{F_Y / \lambda_Y^2}$	$\frac{F_m / \lambda_m^2}{F_Y / \lambda_Y^2}$
6	1	2	11.99	5.46	8.84×10^{-3}	1.36×10^3	6.18×10^2
			11.99	4.62	5.81×10^{-4}	2.06×10^4	7.95×10^3
			11.98	2.81	1.65×10^{-7}	7.26×10^7	1.70×10^7
			11.98	1.22	2.03×10^{-13}	5.90×10^{13}	6.01×10^{12}
			11.94	4.36×10^{-2}	4.64×10^{-37}	2.57×10^{37}	9.40×10^{34}
	2	3	17.99	7.58	8.87×10^{-3}	2.03×10^3	8.55×10^2
			17.98	6.42	5.84×10^{-4}	3.08×10^4	1.10×10^4
			17.97	3.89	1.66×10^{-7}	1.08×10^8	2.34×10^7
			17.96	1.69	2.04×10^{-13}	8.80×10^{13}	8.28×10^{12}
			17.91	6.05×10^{-2}	4.66×10^{-37}	3.84×10^{37}	1.30×10^{35}
	3	4	23.98	9.38	8.88×10^{-3}	2.70×10^3	1.06×10^3
			23.98	7.94	5.84×10^{-4}	4.11×10^4	1.36×10^4
			23.96	4.82	1.66×10^{-7}	1.44×10^8	2.90×10^7
			23.95	2.09	2.04×10^{-13}	1.17×10^{14}	1.02×10^{13}
			23.88	7.48×10^{-2}	4.66×10^{-37}	5.12×10^{37}	1.61×10^{35}
8	1	2	15.99	6.36	8.84×10^{-3}	1.81×10^3	7.19×10^2
			15.98	5.39	5.81×10^{-4}	2.75×10^4	9.28×10^3
			15.98	3.27	1.65×10^{-7}	9.68×10^7	1.98×10^7
			15.96	1.42	2.03×10^{-13}	7.84×10^{13}	6.98×10^{12}
			15.92	5.08×10^{-2}	4.64×10^{-37}	3.44×10^{37}	1.11×10^{35}
	2	3	23.98	8.83	8.87×10^{-3}	2.70×10^3	9.95×10^2
			23.97	7.48	5.84×10^{-4}	4.10×10^4	1.28×10^4
			23.96	4.54	1.66×10^{-7}	1.44×10^8	2.73×10^7
			23.95	1.97	2.04×10^{-13}	1.17×10^{14}	9.66×10^{12}
			23.87	7.05×10^{-2}	4.66×10^{-37}	5.12×10^{37}	1.51×10^{35}
	3	4	31.97	10.92	8.88×10^{-3}	3.60×10^3	1.23×10^3
			31.96	9.25	5.84×10^{-4}	5.47×10^4	1.58×10^4
			31.95	5.61	1.66×10^{-7}	1.92×10^8	3.38×10^7
			31.92	2.44	2.04×10^{-13}	1.56×10^{14}	1.20×10^{13}
			31.83	8.72×10^{-2}	6.83×10^{-37}	5.12×10^{37}	1.87×10^{35}

La ecuación (2.2.20) contiene sólo los términos de tiempo de los isómeros del ^{89}Zr , F_f y F_m , por lo que se puede parametrizar de tal modo que el término derecho dependa en forma lineal del cociente de estos factores, como en la ecuación (2.2.10). Sustituyendo F y M por sus expresiones y teniendo en cuenta nuevamente que $\lambda_Y \gg \lambda_f$, obtenemos la ecuación (2.2.21). Se observa que si pudiésemos despreciar λ_m frente a λ_Y , la ecuación (2.2.21) se transforma en la (2.2.10) con $y_{m,\gamma}=0$.

$$\frac{\mathbf{A}_{T,\gamma}}{\mathbf{y}_{f,\gamma} \mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma} \mathbf{N}_B \phi \mathbf{F}_m} = \left(\sigma_f + \frac{\mathbf{g} \sigma_m \lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f} \right) \frac{\mathbf{F}_f}{\lambda_f \mathbf{F}_m} + \frac{\mathbf{g} \sigma_m \lambda_f \lambda_Y}{(\lambda_Y - \lambda_m)(\lambda_f - \lambda_m) \lambda_m} \quad (2.2.21)$$

Las ecuaciones (2.2.22) muestran la parametrización lineal que se obtiene reagrupando de modo que tenga la misma forma que la parametrización de las ecuaciones (2.2.11), y que nos permite aplicar el método de las rectas también en este caso, si las mediciones que realizamos tienen un tiempo de decaimiento mayor a 2 minutos.

$$\mathbf{Y} = \mathbf{aX} + \mathbf{b} \quad (2.2.22)$$

con

$$\mathbf{X} = \frac{\mathbf{F}_f}{\lambda_f \mathbf{F}_m} \quad \mathbf{a} = \mathbf{y}_{f,\gamma} \mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma} \mathbf{N}_B \phi \left(\sigma_f + \frac{\mathbf{g} \sigma_m \lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f} \right) \quad (2.2.22a)$$

$$\mathbf{Y} = \frac{\mathbf{A}_{T,\gamma}}{\mathbf{F}_m} \quad \mathbf{b} = \mathbf{y}_{f,\gamma} \mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma} \mathbf{N}_B \phi \frac{\sigma_m \mathbf{g} \lambda_f \lambda_Y}{\lambda_m (\lambda_f - \lambda_m)(\lambda_Y - \lambda_m)} \quad (2.2.22b)$$

Las ecuaciones (2.2.23) muestran la expresión de las secciones eficaces σ_f y σ_m , obtenidas a partir de las ecuaciones (2.2.22).

$$\sigma_f = \frac{1}{\mathbf{y}_{f,\gamma} \mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma} \mathbf{N}_B \phi} \left[\mathbf{a} + \frac{\mathbf{b} \lambda_m^2 (\lambda_Y - \lambda_m)}{\lambda_f \lambda_Y} \right] \quad (2.2.23a)$$

$$\sigma_m = \frac{\lambda_m \mathbf{b}}{\mathbf{y}_{f,\gamma} \mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma} \mathbf{N}_B \phi} \left(\frac{\mathbf{g} \lambda_f \lambda_Y}{(\lambda_f - \lambda_m)(\lambda_Y - \lambda_m)} \right)^{-1} \quad (2.2.23b)$$

\mathbf{N}_B y ϕ tienen la misma expresión que en las ecuaciones (2.2.4) y (2.2.13), respectivamente.

2.2.4. Incertezas de las mediciones

En esta sección vamos a efectuar el análisis de las incertezas asociadas a las mediciones de las secciones eficaces de los estados metaestable y fundamental. La metodología empleada para la determinación de esas secciones eficaces está descrita en la sección 2.2.2. Este método se basa en el ajuste por cuadrados mínimos de las variables X e Y definidas en la fórmula (2.2.11), de donde se obtienen los valores de a y b con sus incertezas determinadas en el ajuste, y a partir de ellos los valores de las secciones eficaces σ_f y σ_m (ecuaciones (2.2.12a) y (2.2.12b)). El programa empleado para realizar el ajuste de las variables X e Y por cuadrados mínimos utiliza el método de Deming (Rinard y Goldman, 1988), incluyendo en los cálculos las incertezas de las variables ajustadas. Por lo tanto en primer lugar hay que determinar las incertezas asociadas a las variables X e Y.

Las constantes de decaimiento de los isótopos estudiados han sido determinadas con incertezas inferiores al 0.1 % en la mayoría de los casos, y los tiempos de irradiación y medición, t_i y t_c , son siempre cercanos o mayores que la vida media, por lo tanto podemos considerar que la incidencia de incerteza asociada a los factores de tiempo, F_f y F_m en las ecuaciones (2.2.11), y F_M en la ecuación (2.2.13), no es significativa. Lo mismo podemos decir de las incertezas asociadas a las constantes de decaimiento, λ_f , λ_m y λ_M . De estas consideraciones resulta que las incertezas asociadas a la variable X son despreciables, y la incerteza asociada a Y es la del área del pico considerado (A_γ). Las constantes de decaimiento de los estados metaestables tienen incertezas asociadas mayores que las de sus estados fundamentales, en general superiores al 0.1 % mencionado, llegando al 1.1 % en el caso del $^{58}\text{Co}^m$ (ver tabla 2.1.1). Estos casos serán considerados en forma particular.

Cuando se definieron las variables X e Y (ecuaciones 2.2.11) se agruparon los parámetros que no variasen con el tiempo o que su incerteza fuese despreciable, como la constante de decaimiento del estado fundamental, en los parámetros de ajuste a y b. De este modo las incertezas de los parámetros que no varían con el tiempo no quedan enmascaradas en el ajuste de la recta, sino que representan errores sistemáticos que se propagan en el cálculo de errores a partir de la determinación de a y b. Se considera que las incertezas asociadas al peso atómico de la muestra y al monitor son despreciables. También se consideran despreciables las incertezas asociadas a la determinación de la masa y a la abundancia isotópica del monitor, dado que se utilizan materiales metálicos de alta pureza e isótopos de alta abundancia. La apreciación en la pesada de los monitores fue inferior al 0.05 % en todos los casos estudiados, y la manipulación de este tipo de material no involucra pérdidas significativas de masa. Estos aportes no pueden despreciarse en algunos de los isótopos estudiados. La abundancia isotópica en algunos casos en que estudiamos elementos con su composición natural, es muy baja, informada con incertezas en su determinación del orden del 1 %. En otros casos estudiamos elementos enriquecidos en el isótopo de interés, cuya composición isotópica tiene incertezas, informada por el proveedor, que no son despreciables. En los casos en que analizamos polvos, se pueden presentar situaciones en que no podamos asegurar que no haya pérdidas de material inferiores al 0.1 % durante su manipulación al determinar la masa de la muestra, y en esos casos tendremos que considerar un cierto error asociado a este parámetro. En varias situaciones el error de la medición, o sea el error en la determinación del área de la emisión γ que estudiamos, es inferior al 0.1 %, y por lo tanto no lo consideramos.

Si sustituimos la fórmula (2.2.13) en el miembro izquierdo de la fórmula (2.2.10), obtenemos la siguiente expresión

$$\frac{\mathbf{A}_{T,\gamma} \mathbf{m}_M \mathbf{N}_{Av} \mathbf{A}_{iso} \mathbf{P}_M \mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma'} \mathbf{y}_{\gamma'} \sigma_M \mathbf{F}_M}{\mathbf{y}_{f,\gamma} \mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma} \mathbf{N}_B \lambda_M \mathbf{A}_{M,\gamma'} \mathbf{P} \mathbf{A}_M \mathbf{F}_m} = \left(\sigma_f + \frac{\mathbf{g} \sigma_m \lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f} \right) \frac{\mathbf{F}_f}{\lambda_f \mathbf{F}_m} + \left(\frac{\mathbf{y}_{m,\gamma}}{\mathbf{y}_{f,\gamma}} - \frac{\mathbf{g} \lambda_f}{\lambda_m - \lambda_f} \right) \frac{\sigma_m}{\lambda_m}$$

en la que podemos separar como factor común al cociente de la eficiencia del sistema de medición correspondiente a las energías de las emisiones del monitor y de la muestra ($\mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma'} / \mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma}$). Como vimos en la sección 1.3.1, en la eficiencia del sistema de medición inciden la variación de la geometría de medición y la eficiencia relativa del detector al variar la energía. Si medimos el monitor y la muestra en la misma geometría, la incidencia del factor geométrico es muy pequeña, y al considerar el cociente también disminuye la incidencia de las incertezas asociadas a la actividad de las fuentes patrón (ver sección 1.3.1). Por lo tanto, en estas condiciones la incerteza asociada al cociente de eficiencias es menor que la propagación de la incerteza de la eficiencia del sistema para ambas energías. En las mediciones que realicemos mantendremos el criterio de medir la muestra y el monitor en la misma geometría, y en los cálculos asociados al igual que en la determinación de las incertezas expresada en la fórmula (2.2.14), consideraremos como variable independiente al cociente de eficiencias de las emisiones del monitor y la muestra.

La fórmula (2.2.24) expresa la incerteza de la variable Y, que actúa como factor de peso en el ajuste lineal por cuadrados mínimos que, como ya mencionamos, se efectúa utilizando el método de Deming.

$$\Delta \mathbf{Y} = \frac{\Delta \mathbf{A}_{T,\gamma}}{\mathbf{F}_m} \quad (2.2.24)$$

Las ecuaciones (2.2.12a) y (2.2.12b) expresan los valores de σ_f y σ_m buscados, y la propagación de las incertezas de los parámetros nucleares involucrados y de la determinación de a y b, nos proporciona las incertezas de las mediciones finales (ecuaciones 2.2.25). Al igual que en los casos anteriores, se considera que las incertezas asociadas a las constantes de decaimiento son despreciables.

Para efectuar el cálculo de incertezas escribimos σ_f y σ_m como producto de 2 factores:

$$\sigma_f = \sigma^0 \sigma^f \quad \text{y} \quad \sigma_m = \sigma^0 \sigma^m$$

con

$$\sigma^0 = \frac{\mathbf{1}}{\mathbf{y}_{f,\gamma} \mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma} \mathbf{N}_B \phi}$$

$$\sigma^f = \mathbf{a} + \frac{\mathbf{b} \mathbf{g} \lambda_m^2 \mathbf{y}_{f,\gamma}}{(\lambda_f - \lambda_m) \mathbf{y}_{m,\gamma} + \lambda_f \mathbf{g} \mathbf{y}_{f,\gamma}}$$

$$\sigma^m = \lambda_m \mathbf{b} \left(\frac{\mathbf{y}_{m,\gamma}}{\mathbf{y}_{f,\gamma}} - \frac{\mathbf{g} \lambda_f}{\lambda_m - \lambda_f} \right)^{-1}$$

La incerteza asociada a cada parámetro es:

$$\varepsilon(\sigma^0) = \sqrt{\varepsilon^2 \mathbf{R} \mathbf{E}_{\gamma',\gamma} + \varepsilon^2 \mathbf{m} + \varepsilon^2 \mathbf{p} + \varepsilon^2 \mathbf{y}_{f,\gamma} + \varepsilon^2 \mathbf{A}_{iso} + \varepsilon^2 \mathbf{p}_M + \varepsilon^2 \sigma_M + \varepsilon^2 \mathbf{A}_{\gamma'} + \varepsilon^2 \mathbf{y}_{\gamma'}}$$

$$\text{con } \mathbf{R} \mathbf{E}_{\gamma',\gamma} = \frac{\mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma'}}{\mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma}}$$

$$\Delta \sigma^f = \sqrt{\Sigma^2 \mathbf{a} + \mathbf{A}^2 \Sigma^2 \mathbf{b} + \mathbf{B}^2 \Sigma^2 \mathbf{g} + \mathbf{C}^2 \Sigma^2 \mathbf{y}_{f,\gamma} + \mathbf{D}^2 \Sigma^2 \mathbf{y}_{m,\gamma}}$$

con

$$\mathbf{A} = \frac{\mathbf{g} \lambda_m^2 \mathbf{y}_{f,\gamma}}{(\lambda_f - \lambda_m) \mathbf{y}_{m,\gamma} + \lambda_f \mathbf{g} \mathbf{y}_{f,\gamma}}$$

$$\mathbf{B} = \frac{\mathbf{b} \lambda_m^2 \mathbf{y}_{f,\gamma} \mathbf{y}_{m,\gamma} (\lambda_f - \lambda_m)}{[(\lambda_f - \lambda_m) \mathbf{y}_{m,\gamma} + \lambda_f \mathbf{g} \mathbf{y}_{f,\gamma}]^2}$$

$$\mathbf{C} = \frac{\mathbf{g} \mathbf{b} \lambda_m^2 \mathbf{y}_{m,\gamma} (\lambda_f - \lambda_m)}{[(\lambda_f - \lambda_m) \mathbf{y}_{m,\gamma} + \lambda_f \mathbf{g} \mathbf{y}_{f,\gamma}]^2}$$

$$\mathbf{D} = \frac{\mathbf{g} \mathbf{b} \lambda_m^2 \mathbf{y}_{f,\gamma} (\lambda_f - \lambda_m)}{[(\lambda_f - \lambda_m) \mathbf{y}_{m,\gamma} + \lambda_f \mathbf{g} \mathbf{y}_{f,\gamma}]^2}$$

$$\Delta \sigma^m = \sqrt{\mathbf{A}'^2 \Sigma^2 \mathbf{b} + \mathbf{B}'^2 \Sigma^2 \mathbf{g} + \mathbf{C}'^2 \Sigma^2 \mathbf{y}_{f,\gamma} + \mathbf{D}'^2 \Sigma^2 \mathbf{y}_{m,\gamma}}$$

con

$$\mathbf{A}' = \lambda_m \left(\frac{\mathbf{y}_{m,\gamma}}{\mathbf{y}_{f,\gamma}} - \frac{\mathbf{g} \lambda_f}{\lambda_m - \lambda_f} \right)^{-1}$$

$$\mathbf{B}' = \frac{\lambda_m \lambda_f \mathbf{b}}{\lambda_m - \lambda_f} \left(\frac{\mathbf{y}_{m,\gamma}}{\mathbf{y}_{f,\gamma}} - \frac{\mathbf{g} \lambda_f}{\lambda_m - \lambda_f} \right)^{-2}$$

$$\mathbf{C}' = \frac{\lambda_m \mathbf{b}}{\mathbf{y}_{f,\gamma}} \left(\frac{\mathbf{y}_{m,\gamma}}{\mathbf{y}_{f,\gamma}} - \frac{\mathbf{g} \lambda_f}{\lambda_m - \lambda_f} \right)^{-2} \quad \mathbf{D}' = \frac{\lambda_m \mathbf{b} \mathbf{y}_{m,\gamma}}{\mathbf{y}_{f,\gamma}^2} \left(\frac{\mathbf{y}_{m,\gamma}}{\mathbf{y}_{f,\gamma}} - \frac{\mathbf{g} \lambda_f}{\lambda_m - \lambda_f} \right)^{-2}$$

donde Δ es la incerteza absoluta de la variable asociada, y ε es la incerteza relativa.

La expresión final del error relativo de la sección eficaz de producción de ambos estados isoméricos es:

$$\varepsilon(\sigma_f) = \sqrt{\varepsilon^2(\sigma^0) + \varepsilon^2(\sigma^f)} \quad \text{y} \quad \varepsilon(\sigma_m) = \sqrt{\varepsilon^2(\sigma^0) + \varepsilon^2(\sigma^m)} \quad (2.2.25)$$

En algunas situaciones será necesario incluir factores de corrección de las mediciones que se efectúen, por ejemplo corrección por absorción de la emisión en la propia muestra o por pequeñas diferencias en la geometría de medición. Estos factores de corrección afectan la variable $A_{T,\gamma}$ de la ecuación (2.2.9). Estas correcciones son pequeñas, y su incidencia en la incerteza total de las secciones eficaces puede considerarse, en general, despreciable. Las situaciones donde deba considerarse su aporte serán estudiadas en forma particular, modificándose las ecuaciones (2.2.25).

Un caso particular del desarrollo expuesto, y de interés en las determinaciones que vamos a exponer, ocurre cuando el flujo neutrónico se determina utilizando otra reacción del isótopo que estudiamos, denominada monitor interno. En estos casos la masa de muestra y monitor es la misma, al igual que la pureza p y p_M , y la abundancia isotópica, por lo que desaparecen sus aportes a la incerteza total. Este es el caso de dos reacciones que se estudian en este trabajo; $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$, en la que se utiliza como monitor de flujo la reacción $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{m+f}$, y $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^m$ y $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^f$, utilizándose el monitor interno $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$ además de la reacción $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{m+f}$.

2.2.5. Determinación de la suma de secciones eficaces de producción de estados isoméricos

En los casos en que la vida media del estado fundamental es significativamente mayor que la del metaestable, se puede determinar directamente la suma de secciones eficaces de producción de ambos estados. Para ello se miden las emisiones asociadas al decaimiento del estado fundamental con tiempos de decaimiento suficientemente largos que permitan considerar que los núcleos producidos por la reacción en el nivel metaestable han decaído completamente al fundamental. La producción de ambos estados se rige por las ecuaciones (2.2.5), cuya solución tiene la expresión de las ecuaciones (2.2.6). Las ecuaciones (2.2.7) y (2.2.8) consideran las condiciones de medición de una emisión asociada al decaimiento de los isómeros, relacionando los diferentes parámetros involucrados en el problema con el área medida. En este caso sólo nos interesan los núcleos producidos en el estado fundamental:

$$\begin{aligned} \mathbf{A}_{f,\gamma'} = \mathbf{E}\mathbf{f}_{\gamma'}\mathbf{y}_{f,\gamma'} \frac{\lambda_m \mathbf{N}_B \phi \mathbf{F}_f}{\lambda_f (\lambda_m - \lambda_f)} \left[(\sigma_f + \sigma_m \mathbf{g}) - \sigma_f \frac{\lambda_f}{\lambda_m} \right] - \\ - \mathbf{E}\mathbf{f}_{\gamma'}\mathbf{y}_{f,\gamma'} \frac{\lambda_f \mathbf{N}_B \phi \sigma_m \mathbf{g}}{\lambda_m (\lambda_m - \lambda_f)} \mathbf{F}_m \end{aligned} \quad (2.2.26)$$

En el primer sumando del término derecho de la ecuación (2.2.26) encontramos el parámetro que nos interesa determinar: $\sigma_f + \sigma_m \mathbf{g}$. Reagrupando las variables de la ecuación (2.2.26) de modo de poder comparar este parámetro con los restantes, obtenemos la ecuación (2.2.27).

$$\mathbf{A}_{f,\gamma'} = \mathbf{E}\mathbf{f}_{\gamma'}\mathbf{y}_{f,\gamma'} \frac{\lambda_m \mathbf{N}_B \phi \mathbf{F}_f}{\lambda_f (\lambda_m - \lambda_f)} \left[(\sigma_f + \sigma_m \mathbf{g}) - \frac{\lambda_f}{\lambda_m} \left(\sigma_f - \frac{\lambda_f \sigma_m \mathbf{g}}{\lambda_m} \frac{\mathbf{F}_m}{\mathbf{F}_f} \right) \right] \quad (2.2.27)$$

De la ecuación (2.2.27) surge que para que podamos determinar el parámetro $\sigma_f + \sigma_m \mathbf{g}$ en forma independiente de sus valores individuales, se debe cumplir la siguiente condición:

$$(\sigma_f + \sigma_m \mathbf{g}) \gg \frac{\lambda_f}{\lambda_m} \left(\sigma_f - \frac{\lambda_f \sigma_m \mathbf{g}}{\lambda_m} \frac{\mathbf{F}_m}{\mathbf{F}_f} \right) \quad (2.2.28)$$

Esta condición no sólo depende de los tiempos de irradiación, decaimiento y contaje, que están incluidos en las variables \mathbf{F}_f y \mathbf{F}_m , sino que depende de la relación de constantes de decaimiento de los isómeros y de la sección eficaz de producción del estado fundamental, parámetros sin dependencia temporal. Si calculamos el límite de esta expresión cuando el tiempo de decaimiento tiende a ∞ , el segundo sumando del término derecho de (2.2.28) tiende a 0 si la vida media del fundamental es mayor que la del metaestable. Pero, obviamente, el sumando $\sigma_f \lambda_f / \lambda_m$ permanece constante. Por lo tanto, en forma estricta, la medición de las emisiones asociadas al decaimiento del estado fundamental (ecuación (2.2.26)) no permite evaluar el parámetro $\sigma_f + \sigma_m \mathbf{g}$, ya que siempre tendrá cierto apartamiento dado por el término $\sigma_f \lambda_f / \lambda_m$. Para tiempo de decaimiento muy grandes este corrimiento es constante. Cuando se mide la sección eficaz suma, o se la informa, en realidad se está incluyendo este corrimiento y en forma estricta este parámetro no representa la suma de las secciones eficaces de producción de ambos estados isoméricos. En los casos en que la diferencia de vidas medias es muy grande, este corrimiento queda enmascarado en las incertezas de las mediciones. Para isómeros cuyas

vidas medias sean similares, aún cuando se cumpla que la del metaestable es menor que la del fundamental, este corrimiento será superior a las incertezas de las mediciones, con lo que estaremos determinando el parámetro $\sigma_f + \sigma_m g - \sigma_f \lambda_f / \lambda_m$, en mediciones con tiempos de medición suficientemente grandes. Y si queremos conocer el valor real de la suma de secciones eficaces deberemos descontar el término $-\sigma_f \lambda_f / \lambda_m$. En esta situación es posible medir una de las secciones eficaces si se conoce la restante. Por ejemplo, si es posible determinar la sección eficaz de producción del estado metaestable midiendo las emisiones asociadas a su decaimiento en el fundamental, es luego posible medir la sección eficaz de producción del estado fundamental.

Para evaluar la condición expresada en la inecuación (2.2.28), es más sencillo estudiar el cociente de ambos términos.

$$C_1 = \frac{\frac{\lambda_f}{\lambda_m} \left(\sigma_f - \frac{\lambda_f \sigma_m g}{\lambda_m} \frac{F_m}{F_f} \right)}{(\sigma_f + \sigma_m g)} \quad (2.2.29)$$

Y la condición de (2.2.28) se transforma en: $C_1 \ll 1$

En situaciones en que las vidas medias de ambos estados isoméricos son similares, la evaluación de los tiempos de decaimiento necesarios para considerar que estamos midiendo el parámetro $\sigma_f + \sigma_m g - \sigma_f \lambda_f / \lambda_m$ se puede efectuar estudiando el cociente C_2 .

$$C_2 = \frac{\left(\frac{\lambda_f \sigma_m g}{\lambda_m} \frac{F_m}{F_f} \right)}{\sigma_f} \quad (2.2.30)$$

Tanto el cociente C_1 como el C_2 incluyen en su cálculo las secciones eficaces que queremos determinar. En su cálculo se pueden usar otras determinaciones o estimaciones hechas por cálculos basados en modelos teóricos. En estos estudios evaluamos aproximaciones de cálculo, por lo tanto pequeñas diferencias de las secciones eficaces respecto de su valor real no serán relevantes. En el caso de que luego de efectuada la determinación se observen diferencias muy importantes, se pueden recalcular los cocientes C_1 y C_2 con el nuevo valor, evaluando el impacto de la modificación.

La tabla 2.2.2 muestra algunos ejemplos de reacciones que se analizan en este trabajo. En cada caso se estudia el comportamiento de la condición (2.2.28), expresada en los cocientes C_1 y C_2 , para diferentes tiempos de decaimiento, con tiempos de irradiación y conteo característicos de las mediciones que efectuamos.

Tabla 2.2.2 Determinación de $\sigma_f + \sigma_m$ en reacciones que se estudian en este trabajo. Análisis de las condiciones de cálculo en función de los tiempos de irradiación, decaimiento y medición.

reacción	λ_f/λ_m^a	tiempo de irradiación	tiempo de contaje	tiempo de decaimiento	C_1^b	C_2^c
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m d}$	0.005316	5 m	10 h	1 h	-0.2088	59.50
				1 d	-3.318×10^{-2}	10.30
				2 d	-2.323×10^{-3}	1.651
				4 d	3.418×10^{-3}	4.245×10^{-2}
				6 d	3.565×10^{-3}	1.091×10^{-3}
				10 d	3.569×10^{-3}	7.214×10^{-7}
				100 d	3.569×10^{-3}	2.056×10^{-78}
$^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^{f+m e}$	0.297	2 m	140 s	30 s	1.740×10^{-2}	9.154×10^{-1}
				1 m	3.473×10^{-2}	8.312×10^{-1}
				2 m	6.474×10^{-2}	6.854×10^{-1}
				3 m	8.949×10^{-2}	5.651×10^{-1}
				4 m	1.099×10^{-1}	4.659×10^{-1}
				6 m	1.406×10^{-1}	3.168×10^{-1}
				8 m	1.615×10^{-1}	2.153×10^{-1}
				10 m	1.757×10^{-1}	1.464×10^{-1}
				20 m	2.014×10^{-1}	2.126×10^{-2}
				50 m	2.058×10^{-1}	4.204×10^{-9}
$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^{f+m f}$	0.00088	6 m	4 m	4 m	-2.738×10^{-2}	36.13
				8 m	-1.369×10^{-2}	18.56
				10 m	-9.595×10^{-3}	13.31
				20 m	-1.184×10^{-3}	2.519
				1 h	7.770×10^{-4}	3.236×10^{-3}
				2 h	7.795×10^{-4}	1.490×10^{-7}
				10 h	7.795×10^{-4}	3.006×10^{-42}

^a (Tuli, 2000)

^b Ver ecuación (2.2.26)

^c Ver ecuación (2.2.27)

^d En el cálculo de los factores C_1 y C_2 se utilizan las secciones eficaces determinadas en la sección 3.1 de este trabajo (ver tabla 3.1.4)

^e En el cálculo de los factores C_1 y C_2 se utilizan las secciones eficaces determinadas en la sección 3.2 de este trabajo (ver tabla 3.2.4)

^f En el cálculo de los factores C_1 y C_2 se utilizan las secciones eficaces determinadas en la sección 3.4 de este trabajo (ver tabla 3.4.6)

Uno de los casos analizados es la reacción $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{m+f}$, utilizada como monitor de flujo en las mediciones que se exponen en este trabajo. Se observa que el cociente C_1 es inferior al 0.5 % para tiempos de decaimiento superiores a 4 d, manteniéndose constante en 0.3569 % para tiempos de decaimiento mucho mayores (ver tabla 2.2.2). La diferencia de las vidas medias de ambos isómeros es muy grande, y por lo tanto el término $\sigma_f \lambda_f / \lambda_m$ tiene poca incidencia, determinando que la diferencia entre la sección eficaz de la reacción suma y la suma de las secciones eficaces de producción de cada isómero sea 0.37 %. Esta diferencia es sustancialmente menor que los errores asociados a las mediciones que

efectuamos de las secciones eficaces de producción de cada isómero, y que el error de la sección eficaz de la reacción suma utilizada como referencia en todas las mediciones realizadas ($\sigma = 111 \pm 3$ mb; Baard et al., 1989). Por lo tanto en este caso no se observa el corrimiento asociado al término $\sigma_f \lambda_f / \lambda_m$. Para los tiempos de irradiación y medición establecidos en la tabla 2.2.2, la diferencia entre el valor límite y el valor medido es menor a 0.02 % para tiempos de decaimiento superiores a 4 d, diferencia despreciable en las mediciones que efectuamos. Si bien con tiempos de decaimiento menores también se puede considerar que se cumple la condición (2.2.28), 4 d es un decaimiento compatible con las mediciones que efectuamos, que además asegura que modificaciones de los tiempos de medición e irradiación de los considerados en el cálculo no conlleva el hecho de que el corrimiento sea significativo. Por lo tanto adoptamos este valor como tiempo de decaimiento mínimo de la medición de los monitores de flujo.

La reacción $^{54}\text{Fe}(n,p)^{53}\text{Fe}^{f+m}$ plantea un ejemplo diferente al ya estudiado. En este caso las vidas medias de ambos isómeros no son muy distintas, y por lo tanto la incidencia del término $\sigma_f \lambda_f / \lambda_m$ es relevante. Para tiempos de decaimiento muy grandes, la diferencia entre la sección eficaz suma y la suma de las secciones eficaces de producción de cada estado isomérico, es 20 %, aproximadamente. En la tabla 2.2.2 se pueden ver los valores de los cocientes C_1 y C_2 al variar el tiempo de decaimiento, para tiempos de irradiación y medición típicos de las mediciones que se exponen en la sección 3.2. En el rango de tiempos de decaimiento de las mediciones efectuadas, y que se obtienen áreas significativas (hasta 10 m) no se puede considerar que C_2 sea mucho menor que 1 (la diferencia es superior al 10 % en el mejor de los casos), y por lo tanto no tenemos tiempos de decaimiento suficientemente grandes para despreciar el término con dependencia temporal de la inecuación (2.2.28). Paradójicamente, el caso en que C_1 es pequeño, menor que el 2 %, es el de menor decaimiento. Esto se debe a que en este caso el término con dependencia temporal de la inecuación (2.2.28) es similar a σ_f , haciendo que la diferencia sea pequeña. Por lo tanto ninguna de las condiciones de medición permite hacer las aproximaciones necesarias para determinar la suma de secciones eficaces en forma independiente de alguna de ella.

En el caso de la reacción $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^{f+m}$, que se estudia en la sección 3.4, la diferencia de vidas medias determina que el término $\sigma_f \lambda_f / \lambda_m$ sea despreciable para tiempos de decaimiento suficientemente grandes, considerando las incertezas asociadas a la determinación de las secciones eficaces que estudiamos (ver tabla 2.2.2). Por lo tanto en este caso se puede considerar que la sección eficaz de la reacción suma es igual a la suma de las secciones eficaces de producción de ambos isómeros. Para tiempos de decaimiento superiores a 1 hora se puede considerar que, en las condiciones analíticas establecidas, el estado metaestable decayó completamente en el fundamental.

3. Secciones eficaces de reacciones con neutrones promediadas en flujo de fisión que generan dos estados isoméricos; determinaciones efectuadas

En esta sección exponemos las mediciones de secciones eficaces de reacciones umbral promediadas en un espectro neutrónico de fisión de ^{235}U inducida con neutrones térmicos, efectuadas utilizando la metodología de cálculo desarrollada en la sección 2.2. Esta metodología permite determinar simultáneamente las secciones eficaces de generación de dos estados isoméricos del núcleo producto. El método consiste en la medición de varios espectros γ de los productos de la reacción que se estudia, tomados de la misma muestra con diferentes tiempos de decaimiento. En los espectros relevados se mide el área de los picos correspondientes a las energías de las emisiones γ de los isótopos estudiados, y con estos valores se hace un ajuste lineal por cuadrados mínimos de la ecuación (2.2.10). Del ajuste lineal se obtienen dos parámetros de los cuales se deducen las secciones eficaces que queremos determinar (ver ecuaciones 2.2.11a y 2.2.11b).

Las mediciones de sección eficaz se efectúan utilizando un monitor cuya sección eficaz es conocida (ver ecuación (2.2.10)), con el cual se contrastan las determinaciones. El monitor de flujo rápido más utilizado en reactores nucleares es el níquel a través de la reacción umbral $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m}$, por lo que se lo emplea en este trabajo, y el valor de sección eficaz utilizado para referir nuestras mediciones es $\sigma_M = 111 \pm 3$ mb (Baard et al., 1989). En la tabla 3.1 se muestran los parámetros de Ni utilizados en los cálculos. En todos los casos la medición de los monitores de Ni se efectúa luego de un tiempo de decaimiento suficientemente largo para asegurar que el estado metaestable decayó completamente en el fundamental (ver sección 2.2.5.) Se corrigieron las mediciones por autoatenuación en la muestra, cuando esto fue necesario. El factor de corrección se obtuvo midiendo la transmisión, como se expuso en la sección 1.4.2, y utilizando la fórmula 1.4.20. La única reacción relevante con neutrones que puede producir los isótopos $^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Co}^m$, interfiriendo con la reacción monitor, es $^{59}\text{Co}(n,2n)^{58}\text{Co}^{f+m}$. La sección eficaz de esta reacción en flujo de fisión de ^{235}U es muy pequeña, $\sigma = 0.202 \pm 0.006$ mb (Baard et al., 1989), unas 550 veces menor que la sección eficaz de la reacción de interés, y que estudiamos en materiales de alta pureza (ver tabla 3.1), por lo tanto la interferencia de impurezas del material es despreciable.

En el caso de la reacción del ^{54}Fe que se expone en la sección 3.2., también se utiliza como monitor de flujo la reacción $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$ para corroborar los resultados obtenidos con el monitor de Ni. Esto se debe a que esta reacción constituye un monitor interno, eliminándose algunos parámetros asociados a la medición y, por lo tanto, se disminuyen las incertezas asociadas a la determinación, como se expusiera en la sección 2.2.4.

Las irradiaciones se efectúan en la posición F5 del núcleo de reactor RA-6, que como se viera en la sección 1.3 tiene una distribución energética de neutrones rápidos que se puede considerar aproximada a la de fisión del ^{235}U con neutrones térmicos.

Tabla 3.1 Parámetros característicos del monitor utilizado en las determinaciones: $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m}$

forma:	lámina metálica
proveedor:	Reactor Experiments Inc., USA
pureza:	mayor que 99.98 %
vida media del $^{58}\text{Co}^f$:	$70.86 \pm 0.07 \text{ d}^a$
sección eficaz promediada en flujo de fisión de ^{235}U :	$111 \pm 3 \text{ mb}^b$
energía de la emisión γ :	$810.775 \pm 0.009 \text{ keV}^c$
probabilidad de emisión por decaimiento:	$99.448 \pm 0.008 \%^c$

^a Tuli, 2000
^b Baard et al., 1989
^c Firestone, 1996

3.1 Reacciones $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$

La reacción umbral $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m}$ tiene varias ventajas al ser usada como monitor. Fundamentalmente, no es interferida por otras reacciones con neutrones térmicos, epitérmicos o rápidos producidas con otros isótopos del níquel o con las impurezas habituales en el material metálico disponible comercialmente con fines de dosimetría de neutrones. La mayoría de los isótopos radioactivos generados por estas reacciones tienen vidas medias mucho menores a la del $^{58}\text{Co}^f$ (70.82 d), y el rayo γ que emite ($E_\gamma=811 \text{ keV}$) puede ser medido fácilmente una vez que el ^{65}Ni (2.52 h), producido en la reacción $^{64}\text{Ni}(n,\gamma)^{65}\text{Ni}$, decayó. Para eliminar las complicaciones de cálculo que implicaría considerar el estado metaestable, al usar el níquel como monitor de flujo rápido se considera la generación de ambos estados conjuntamente, dado que, como se puede ver en la figura 2.1.2, el estado metaestable decae sólo al nivel fundamental del ^{58}Co , sin alimentar directamente al ^{58}Fe o al ^{58}Ni . Por lo tanto, la condición que debe observarse para utilizar la reacción $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m}$ como monitor de flujo rápido es que el tiempo transcurrido desde su irradiación hasta la medición sea suficientemente largo (varios días) de modo de poder considerar que el $^{58}\text{Co}^m$ (9.15 h) decayó completamente en el $^{58}\text{Co}^f$.

En los isótopos del níquel se producen otras reacciones con neutrones rápidos que pueden observarse utilizando espectrometría γ de alta resolución (ver tabla 3.1.1). La energía umbral efectiva de estas reacciones va de 2.7 MeV a 13 MeV (Baard et al., 1989; Suárez, 1994; Horibe, 1983), por lo tanto irradiando sólo este material y utilizando el método descrito en la sección 1.3.2, se puede conocer si existe un apartamiento del espectro neutrónico respecto del de fisión en la posición de irradiación.

Las secciones eficaces de captura térmica de los productos de la reacción que estudiamos son significativamente grandes; 140000 b en el caso de la reacción $^{58}\text{Co}^m(n,\gamma)^{59}\text{Co}$, y 1900 b en el caso de $^{58}\text{Co}^f(n,\gamma)^{59}\text{Co}$ (Mughabghab, 1981). Por lo tanto,

en aplicaciones del níquel como monitor de flujo rápido en un campo con componente térmica y epitérmica, y cuando su irradiación sea prolongada, es necesario corregir los resultados por el “quemado” de ambos productos (Martin y Clare, 1964). Para efectuar esta corrección en ambos productos es necesario conocer la sección eficaz de producción de los dos isómeros. No se han encontrado referencias de mediciones directas de la sección eficaz de la reacción $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$, y sólo unas pocas de la reacción $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$, con incertezas grandes (Mellish et al., 1957; Passell y Heath, 1961; Boldeman, 1964)

La reacción que estudiamos en esta sección si bien es exoérgica, como se vio en la sección 1.2, tiene una energía umbral efectivo de 2.60 MeV (Baard et al., 1989).

Tabla 3.1.1 Isótopos del níquel: reacciones con neutrones rápidos

Reacción	Abundancia isotópica ^a (%)	Producto		
		Vida media ^a	Emisión γ característica ^b (keV)	Probabilidad de emisión ^b (%)
$^{60}\text{Ni}(n,p)^{60}\text{Co}^m$	26.223 ± 0.008	10.467 ± 0.006 m	58.603	2.036 ± 0.04
$^{61}\text{Ni}(n,p)^{61}\text{Co}$	1.140 ± 0.001	1.650 ± 0.005 h	67.415	84.67 ± 0.38
$^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$	68.077 ± 0.009	35.60 ± 0.06 h	1377	81.7 ± 2.4
$^{58}\text{Ni}(n,d+np+pn)^{57}\text{Co}$	68.077 ± 0.009	271.79 ± 0.09 d	122.06	85.6 ± 0.17
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$	68.077 ± 0.009	70.82 ± 0.03 d	810.775	99.448 ± 0.008
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$	68.077 ± 0.009	9.15 ± 0.10 h	-	-

^a Tuli, 1995

^b Firestone, 1996

3.1.1 Ecuaciones

En la sección 2.1 se describió el decaimiento de los dos isómeros del ^{58}Co . El estado metaestable del ^{58}Co decae solamente al nivel fundamental, como ya se mencionara en la página anterior. Por lo tanto, en el esquema general de decaimiento que sirvió de base para el desarrollo de las ecuaciones en la sección 2.2 (ver figura 2.2.1), g es 1. En estas condiciones, la fracción de decaimientos del estado metaestable, $y_{m,\gamma}$, que generan la emisión γ es 0 (ver ecuación (2.2.9)).

Otro aspecto a considerar en la aplicación de las ecuaciones deducidas en la sección 2.2 al caso que estudiamos, es que el monitor de flujo es la reacción combinada de los dos isómeros que se estudian, $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m}$. En forma práctica, medimos la evolución de la emisión γ de 811.79 keV con tiempos de decaimiento cortos, pocos días. Posteriormente, con tiempos de decaimiento que aseguren que el estado metaestable decayó “completamente” en el fundamental, se toman mediciones de la misma emisión que se utilizan como monitor de flujo. Esto conduce a que se eliminen varios parámetros de la ecuación final, al combinar las ecuaciones (2.2.10) y (2.2.13), teniendo en cuenta que la masa de monitor y muestra es la misma, al igual que la abundancia isotópica, el peso atómico y la pureza del material. La eficiencia del sistema de detección y la fracción de

decaimientos que generan la emisión también es la misma en ambos casos, ya que como se dijo medimos la misma emisión tanto cuando determinamos el flujo neutrónico como cuando estudiamos las secciones eficaces. La autoatenuación de la radiación γ que medimos es pequeña dado que utilizamos muestras metálicas de poco espesor y la energía de la emisión γ , 811.79 keV, es relativamente alta. Pero, dado que medimos la misma emisión, el factor de corrección que afecta la medición de las secciones eficaces y el monitor de flujo, es el mismo, y por consiguiente se anulan en el miembro derecho de la ecuación (3.1.1).

Las consideraciones de los dos párrafos precedentes hacen que el caso que estudiamos sea el más sencillo que se puede plantear, e involucra la menor cantidad de parámetros posible. Esto conlleva que se minimicen los errores asociados a las determinaciones que efectuamos respecto de otros casos. La combinación de las ecuaciones (2.2.10) y (2.2.13) para este caso conducen a la ecuación (3.1.1).

$$\frac{A_{T,\gamma} \sigma_M F_M}{\lambda_f A_{M,\gamma} F_m} = \left(\sigma_f + \frac{\sigma_m \lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f} \right) \frac{F_f}{\lambda_f F_m} - \frac{\sigma_m \lambda_f}{\lambda_m (\lambda_m - \lambda_f)} \quad (3.1.1)$$

con

$$F_m = (1 - e^{-\lambda_m t_i})(1 - e^{-\lambda_m t_c})e^{-\lambda_m t_d}$$

$$F_f = (1 - e^{-\lambda_f t_i})(1 - e^{-\lambda_f t_c})e^{-\lambda_f t_d}$$

factores de tiempo de la medición de la evolución temporal de la actividad de la muestra, para determinar la sección eficaz de producción de ambos isómeros

$$F_M = (1 - e^{-\lambda_f t_i})(1 - e^{-\lambda_f t_c})e^{-\lambda_f t_d}$$

factor de tiempo de la medición de la muestra para determinar el flujo neutrónico. Mediciones con tiempos de decaimiento que aseguren que el estado metaestable decayó completamente en el fundamental.*

$$\sigma_M = (111 \pm 3) \text{ mb (Baard et al., 1989)}$$

Las constantes de decaimiento, λ_f y λ_m , se obtienen de la tabla 3.1.1.

A partir de la ecuación (3.1.1) se obtiene la parametrización que permite determinar la sección eficaz de producción de los isómeros que se estudian (ecuaciones 3.1.2). Esta parametrización es un caso particular del general expresado en las ecuaciones (2.2.11), en las condiciones ya expuestas.

* Cabe destacar que si bien los tiempos de irradiación, decaimiento y medición son los mismos para ambos isómeros, no coinciden con los del monitor.

$$\mathbf{Y} = \mathbf{aX} + \mathbf{b} \quad (3.1.2)$$

con

$$\mathbf{X} = \frac{\mathbf{F}_f}{\lambda_f \mathbf{F}_m} \quad \mathbf{a} = \frac{\lambda_f \mathbf{A}_{M,\gamma}}{\sigma_M \mathbf{F}_M} \left(\sigma_f + \frac{\sigma_m \lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f} \right) \quad (3.1.2a)$$

$$\mathbf{Y} = \frac{\mathbf{A}_{T,\gamma}}{\mathbf{F}_m} \quad \mathbf{b} = - \frac{\lambda_f \mathbf{A}_{M,\gamma}}{\sigma_M \mathbf{F}_M} \frac{\sigma_m \lambda_f}{\lambda_m (\lambda_m - \lambda_f)} \quad (3.1.2b)$$

En la sección 2.2.4 se desarrolló el cálculo de incertezas de las mediciones para el caso general. Una de las hipótesis incluidas en el desarrollo era que las constantes de decaimiento tienen errores asociados que se pueden considerar despreciables. Este no es el caso de la constante de decaimiento del $^{58}\text{Co}^m$, como se puede observar en la tabla 3.1.1. Por lo tanto, en este caso el error de este parámetro será incluido en los cálculos de las incertezas tanto de las variables X e Y como de las secciones eficaces.

3.1.2 Mediciones

Se estudiaron tres muestras de níquel metálico en forma de chapa, cuyas masas se muestran en la tabla 3.1.2. De acuerdo a los resultados de pruebas previas a la irradiación efectuadas para determinar los parámetros de análisis, se optó por analizar muestras de níquel relativamente grandes, de 100 mg aproximadamente, para obtener actividades compatibles con la medición de la evolución de actividad en una misma geometría con un tiempo de irradiación corto de forma que el quemado de los productos que estudiamos sea despreciable.

Las muestras se irradiaron dentro de pequeños recipientes de cadmio de 1 mm de espesor. El tiempo de irradiación de cada una de las tres muestras fue de 20 minutos, y la posición de irradiación del núcleo del reactor RA-6 fue la descrita en la sección 1.3.2. Luego de 1 hora de decaimiento se comenzó una serie de 12 mediciones de 20 minutos cada una, durante un lapso de 24 horas. Luego se tomó otra serie de 8 mediciones de 1 hora de tiempo de medición, con tiempos de decaimiento de 50 a 100 horas. Por último, se tomaron dos espectros con 8 días de decaimiento, tiempo suficiente para considerar que el $^{58}\text{Co}^m$ decayó completamente en el fundamental, que se emplearon como monitores de flujo. En todos los casos se midió sólo el área del pico de 811.76 keV, descartándose las otras emisiones asociadas al decaimiento del $^{58}\text{Co}^m$ por ser muy débiles (ver tabla 2.1.1).

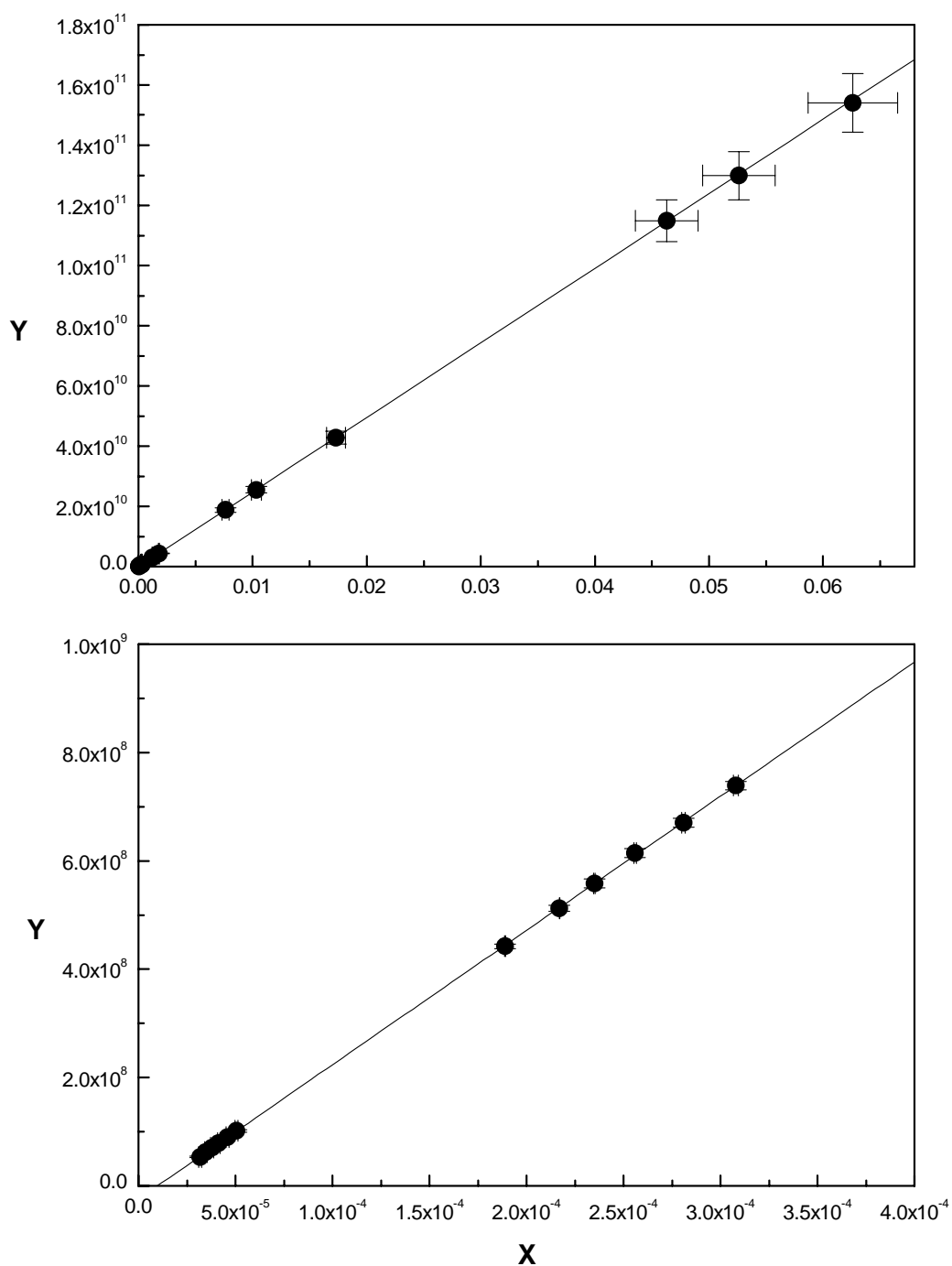


Figura 3.1.1 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$. Mediciones de la muestra A.

X e Y corresponden a la definición de las ecuaciones 3.1.2.

El gráfico inferior es una ampliación del superior.

Con los resultados de las mediciones se calcularon los parámetros X e Y, utilizando las ecuaciones (3.1.2). Los valores calculados en el caso de la muestra A se muestran en la figura 3.1.1. (los gráficos correspondientes a las otras muestras estudiadas son similares). En la tabla 3.1.2 se muestran los resultados del ajuste lineal de los parámetros X e Y, efectuado utilizando el método de Deming (Rinard y Goldman, 1988). Tanto los coeficientes de correlación lineal obtenidos como los errores de los parámetros a y b indican que la evolución de los parámetros es lineal y que el ajuste es muy bueno.

Tabla 3.1.2 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$ Ajuste lineal, utilizando el método de Deming^a, de la evolución temporal de los parámetros X e Y (ver ecuaciones 3.1.2)

Muestra	Masa (mg)	Resultados del ajuste lineal		
		a^b ($\times 10^{12}$)	b^b ($\times 10^7$)	Coeficiente de correlación
A	93.948 ± 0.008	2.4760 ± 0.0034	-2.386 ± 0.030	0.99995
B	94.859 ± 0.008	2.5065 ± 0.0050	-2.395 ± 0.045	0.99992
C	82.127 ± 0.008	2.1494 ± 0.0017	-2.040 ± 0.016	0.99998

^a Rinard y Goldman, 1988

^b ver ecuaciones 3.1.2

3.1.3 Resultados

A partir de los valores de a y b se determinaron las secciones eficaces de ambas reacciones, cuyos resultados se muestran en la tabla 3.1.3. Se determinaron las secciones eficaces para las dos mediciones utilizadas como monitor de flujo. Los resultados muestran excelente concordancia para cada muestra comparando las determinaciones con cada medición del monitor (ver tabla 3.1.3). Se tomó el promedio de los valores obtenidos con cada muestra, manteniendo el valor de error. Los valores obtenidos con las tres muestras tienen excelente concordancia. Con estos tres valores se efectuó un promedio pesado con los errores aleatorios (incertezas asociadas a la determinación del área), propagando los errores sistemáticos (asociados a la sección eficaz de monitor, a la eficiencia del sistema de medición y las constantes de decaimiento). Los valores promedio final son $\sigma_f = (36.6 \pm 1.2) \text{ mb}$ y $\sigma_m = (74.8 \pm 2.3) \text{ mb}$ (ver tabla 3.1.3).

La determinación de la sección eficaz promedio en flujo neutrónico de fisión de ^{235}U con neutrones térmicos, de la reacción $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$, $\sigma_m = (74.8 \pm 2.3) \text{ mb}$, es, de acuerdo a la investigación bibliográfica realizada, la primer medición directa que se efectúa. La medición directa de la sección eficaz de la reacción $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$, $\sigma_f = (36.6 \pm 1.2) \text{ mb}$, tiene tres antecedentes (ver tabla 3.1.4). La medición que se expone en este trabajo es consistente con el trabajo más reciente, Boldeman, 1964, pero tiene un error asociado significativamente menor, constituyéndose en una mejora importante en su conocimiento.

Tabla 3.1.3 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$
Secciones eficaces determinadas en cada muestra utilizando los resultados del ajuste lineal

Muestra ^a	σ_f^b (mb)	σ_m^b (mb)
A	37.1 ± 1.4	75.0 ± 2.4
	36.8 ± 1.4	74.5 ± 2.4
B	36.6 ± 1.5	74.9 ± 2.4
	36.5 ± 1.5	74.7 ± 2.4
C	36.1 ± 1.4	74.6 ± 2.4
	36.2 ± 1.4	74.8 ± 2.4
promedio^c	36.6 ± 1.2	74.8 ± 2.3

^a se efectúan dos determinaciones de las secciones eficaces para cada muestra, correspondientes a dos mediciones del monitor de flujo

^a valores determinados a partir de las ecuaciones (3.1.2)

^c promedio pesado con el factor inverso del cuadrado del error estadístico, manteniendo los errores sistemáticos

Tabla 3.1.4 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$
Resultados

Reacción	Autor	Sección eficaz (mb)
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$	este trabajo	74.8 ± 2.3
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$	Mellish et al., 1957	13
	Passell y Heath, 1961	28
	Boldeman, 1964	30 ± 7
	este trabajo	36.6 ± 1.2

3.2 Reacciones $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{54}\text{Fe}^f$ y $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{54}\text{Fe}^m$

El hierro es un elemento utilizado, al igual que el níquel pero en menor medida, como monitor de flujo rápido, estudiando su reacción $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$ (Baard et al., 1989). Los parámetros relevantes de esta reacción, que tiene un umbral efectivo de 2.80 MeV (Baard et al., 1989), se pueden ver en la tabla 3.2.1. El mismo isótopo produce la reacción $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^{f+m}$, objeto de estudio en esta sección, cuyos umbrales teóricos son mucho mayores; 13.63 MeV para la reacción que genera el estado fundamental y 16.73 MeV para la generación del estado metaestable (ver sección 1.1).

El alto valor de la energía umbral de producción del metaestable determina que la fracción de neutrones de fisión que pueda generar esta reacción sea muy pequeña, lo que se refleja en que la sección eficaz de producción promediada en el espectro de fisión también sea pequeña. Se mostró en la sección 1.3.2 que el espectro energético de neutrones rápidos en la posición de irradiación se aproxima al de fisión térmica de ^{235}U , observando que el flujo medido con reacciones de distinto umbral no varía (ver tabla 1.3.1 y figura 1.3.2). Sin embargo, el mayor umbral empleado en esta comprobación, 11.6 MeV, correspondiente a la reacción $^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$, es significativamente menor que el umbral de producción de la reacción $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$. Esta diferencia plantea la posibilidad de que la comprobación expuesta no sea válida en ese rango de energías, si bien no hay ningún elemento que determine que el comportamiento del espectro se aparte del de fisión para energías altas, sin que esto se refleje a energías menores. En las mismas condiciones de irradiación se estudió la reacción $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ (Arribére et al., 2001), cuya energía umbral efectiva es 13.1 MeV (Baard et al., 1989). La medición obtenida de la sección eficaz de producción de esta reacción, promediada en el espectro de fisión de ^{235}U , muestra un excelente acuerdo con los valores que se encuentran en la literatura (Arribére et al., 2001), lo cual es una comprobación de que a energías mayores que 13.1 MeV el espectro también se aproxima al de fisión térmica del ^{235}U , mostrando que a energías muy cercanas al umbral de producción de la $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^{\text{f}}$ el espectro se aproxima al de fisión, y disminuyendo la incertidumbre sobre el comportamiento del espectro a energías mayores a 16.7 MeV.

Tabla 3.2.1 Isótopos del hierro: reacciones con neutrones rápidos

Reacción	Abundancia isotópica ^a (%)	Producto		
		Vida media ^a	Emisión γ característica ^b (keV)	Probabilidad de emisión ^b (%)
$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	5.845 ± 0.035	312.11 ± 0.05 d	834.848	99.976 ± 0.001
$^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^{\text{f}}$	5.845 ± 0.035	8.51 ± 0.02 m	377.9	42 ± 3
$^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$	5.845 ± 0.035	2.526 ± 0.024 m	701.1	100 ± 8
$^{54}\text{Fe}(n,\alpha)^{51}\text{Cr}$	5.845 ± 0.035	27.7025 ± 0.0024 d	320.0842	9.86 ± 0.05
$^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$	91.754 ± 0.036	2.5789 ± 0.0001 h	846.754	98.87 ± 0.03

^a Tuli, 2000

^b Firestone, 1996

Al igual que en el caso del Ni, podemos medir las secciones eficaces de las reacciones $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^{\text{f}}$ y $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$ utilizando como monitor interno la reacción $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$, lo que conlleva las simplificaciones ya mencionadas en la sección 3.1. De acuerdo a cálculos previos, en este caso se plantea la dificultad adicional de que la actividad que estimamos sería producida por la reacción que se estudia, y que tenemos que medir, es muy pequeña, dado que la abundancia isotópica (ver tabla 3.2.1) y las secciones eficaces a determinar son muy pequeñas; la única medición encontrada informa, para la reacción $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}$, $\sigma = (5.0 \pm 2.5) \mu\text{b}$ (Calamand, 1974). Los parámetros que podemos optimizar para obtener mediciones significativas de la emisión γ que emite el producto de la reacción, son los tiempos de irradiación, decaimiento y medición, y maximizar el

número de núcleos de ^{54}Fe que irradiamos y el flujo neutrónico. No es posible emplear tiempos de irradiación y medición grandes dado que la vida media del estado metaestable es 2.5 m; el flujo neutrónico está limitado por las condiciones de operación del reactor, y la masa de muestra a irradiar y medir debe mantener una geometría que pueda considerarse puntual. El único parámetro que puede mejorarse para que sea factible la medición planteada es la abundancia isotópica. De modo que empleamos hierro metálico enriquecido en el isótopo ^{54}Fe al 55.8 % (ver tabla 3.2.2) lo que mejora en casi un factor 10 la producción de la reacción que se estudia.

Tabla 3.2.2 Material a estudiar: hierro enriquecido en el isótopo ^{54}Fe

Material: polvo de hierro metálico

Proveedor: Trace Sciences, Canadá

Composición isotópica del Fe (%)				
	^{54}Fe	^{56}Fe	^{57}Fe	^{58}Fe
natural ^a	5.845 ± 0.035	91.754 ± 0.036	2.119 ± 0.010	0.282 ± 0.004
material enriquecido	55.8 ± 0.3	44.0 ± 0.3	0.2 ± 0.05	< 0.05

^a Tuli, 2000

Contenido de impurezas relevantes informado por el proveedor: Al, 0.1 %; Ni, 0.05 %; Si, 0.1 %; Ti, 0.02 %.

Debido a que la diferencia de los niveles energéticos de ambos isómeros es muy grande, mayor que 3 Mev (ver tabla 1.1.1), el decaimiento del estado metaestable al fundamental genera rayos γ de alta energía (ver tabla 2.1.2). Midiendo estas emisiones podemos obtener una determinación directa de la sección eficaz de producción del estado metaestable. Por otra parte, la vida media del estado fundamental es significativamente mayor que la del metaestable. Con tiempos de decaimiento suficientemente grandes sería posible suponer que el metaestable decayó completamente en el fundamental, pudiéndose utilizar entonces la medición de la emisión γ generada por el fundamental para la determinación directa de la sección eficaz de la reacción $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^{f+m}$, si bien, como se estableció en la sección 2.2.5, la sección eficaz que se obtiene difiere significativamente de la suma de las secciones eficaces de producción de ambos isómeros. En ambos casos obtendríamos determinaciones de las secciones eficaces de producción de ambos isómeros independientes del método que estudiamos en este trabajo, y que, por lo tanto, constituyen determinaciones con las cuales corroborar los resultados que obtengamos.

3.2.1 Ecuaciones

Al igual que en el caso de los isómeros del ^{58}Co , el estado metaestable del ^{53}Fe decae en el fundamental sólo mediante transiciones electromagnéticas (ver 2.1.3), y por lo tanto en el esquema general de decaimiento (ver figura 2.2.1), g es 1, y la fracción de

decaimientos del estado metaestable, $y_{m,\gamma}$, que generan la emisión γ es 0 (ver ecuación (2.2.9)).

Como ya se mencionara, sobre el mismo isótopo que estudiamos se produce la reacción $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$, que se utiliza como monitor interno de flujo. La utilización de un monitor interno al igual que en el caso estudiado en 3.1, lleva a que se eliminen en el cálculo varios parámetros, con lo que disminuye la incerteza asociada a la medición. La utilización de un monitor interno y las consideraciones del párrafo anterior determinan que estemos en las mismas condiciones que en la reacción estudiada en la sección 3.1, y por lo tanto se puede aplicar la ecuación 3.1.1. En este caso $\sigma_M = (81.7 \pm 2.2)$ mb (Baard et al., 1989), y las constantes de decaimiento, λ_f y λ_m , se obtienen con las vidas medias de la tabla 3.2.1. Además de efectuar las determinaciones de las secciones eficaces que generan los estados fundamental y metaestable utilizando el monitor interno, las determinaciones se harán empleando monitores de Ni. De esta forma se unifica la reacción de referencia, y por lo tanto la sección eficaz de referencia ($\sigma_M = 111 \pm 3$ mb; Baard et al., 1989), en todas las determinaciones que realicemos en este trabajo, como se expusiera al comienzo del capítulo. En este caso es posible utilizar la ecuación general (2.2.10), sustituyendo la expresión del flujo de la ecuación (2.2.12), con las modificaciones que se exponen a continuación.

Como veremos en la sección 3.2.2, el ajuste lineal de los parámetros X e Y se hará con puntos medidos en varias irradiaciones, y por lo tanto los puntos de cada irradiación tendrán un monitor de flujo diferente. Esto determina que la parametrización de las ecuaciones (2.2.11) no sea aplicable, y tengamos que reagrupar las variables de la ecuación (2.2.10) de modo de incluir las asociadas al monitor en los parámetros X e Y. De esta forma se obtiene la parametrización expresada en las ecuaciones (3.2.1), deducida de las ecuaciones (2.2.10) y (2.2.13).

$$\mathbf{Y} = \mathbf{aX} + \mathbf{b} \quad (3.2.1)$$

con

$$\mathbf{X} = \frac{\mathbf{F}_f}{\lambda_f \mathbf{F}_m} \quad \mathbf{Y} = \frac{\mathbf{A}_{T,\gamma} \mathbf{m}_M \mathbf{F}_M}{\mathbf{A}_{M,\gamma} \mathbf{F}_m}$$

Siendo los valores de las secciones eficaces de producción de ambos isómeros para el caso general:

$$\sigma_f = \frac{\mathbf{PA}_{Fe} \mathbf{A}_{isoM} \mathbf{p}_M \mathbf{Ef}_{\gamma'} \mathbf{y}_{\gamma'} \sigma_M}{\mathbf{Ef}_{\gamma} \mathbf{y}_{f,\gamma} \mathbf{p}_{Fe} \mathbf{m}_{Fe} \mathbf{A}_{isoFe} \lambda_M \mathbf{PA}_M} \left[\mathbf{a} + \frac{\mathbf{b} \lambda_m^2}{\lambda_f} \right] \quad (3.2.2a)$$

$$\sigma_m = \frac{\lambda_m (\lambda_m - \lambda_f) \mathbf{PA}_{Fe} \mathbf{p}_M \mathbf{Ef}_{\gamma'} \mathbf{y}_{\gamma'} \sigma_M \mathbf{bA}_{isoM}}{\mathbf{y}_{f,\gamma} \mathbf{Ef}_{\gamma} \mathbf{p}_{Fe} \mathbf{m}_{Fe} \lambda_M \mathbf{PA}_M \mathbf{A}_{isoFe} \lambda_f} \quad (3.2.2b)$$

donde el subíndice M corresponde a parámetros del monitor, y el subíndice Fe a parámetros de la muestra

Al igual que en el caso estudiado en la sección 3.1, la incerteza de la constante de decaimiento del $^{53}\text{Fe}^m$ no puede ser despreciada (ver tabla 3.2.1). Por lo tanto, también en este caso el error de este parámetro será incluido en el cálculo de las incertezas, cuando sea relevante. En el caso de la variable Y la principal componente del error está asociada a la determinación del área de la emisión de 377.9 keV (ver tabla 2.1.2), siendo despreciable el aporte de los restantes parámetros tanto en el caso del monitor interno como en el del Ni. El error de la variable X está determinado por la incerteza de la constante de decaimiento del $^{53}\text{Fe}^m$, variando entre 0.3 y 2 % para los tiempos de decaimiento, irradiación y medición empleados.

3.2.2 Mediciones

La emisión γ asociada al decaimiento del estado fundamental, cuya evolución temporal nos permitirá determinar la sección eficaz de producción de ambos isómeros aplicando el método de las rectas descrita en la sección 2.2, es la de 377.9 keV (ver tabla 2.1.2). Como ya se mencionara, se espera que la actividad de esa emisión γ sea muy pequeña, y por lo tanto las áreas que midamos van a tener errores asociados muy grandes. De hecho las áreas medidas oscilaron entre 100 y 200 cuentas, con errores mayores al 30 % en todos los casos. Por otra parte, se dispone de poca cantidad del material enriquecido en ^{54}Fe , por lo que se opta por irradiar todo el material disponible en una sola muestra, y repetir varias veces la irradiación, luego de que hubiesen decaído los isótopos de interés. De esta forma se espera obtener una cantidad de puntos tal que, al efectuar el ajuste lineal, los errores de los parámetros del ajuste sean significativamente menores a los que se obtendrían con sólo una irradiación, y permitan disminuir la incerteza de la determinación final de las secciones eficaces.

El análisis del contenido de impurezas del material a irradiar informado por el proveedor muestra que la concentración de Al es relevante. El producto de la reacción térmica $^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$ tiene una emisión γ de 1779 keV cuya interacción Compton en el cristal del detector aumenta el fondo de las mediciones de la emisión γ de 377.9 keV que estudiamos. La vida media de esta emisión ($T_{1/2}=2.2414 \pm 0.0012$ m; Tuli 2000) es similar a la del $^{53}\text{Fe}^m$, por lo que no puede discriminarse por decaimiento. La única forma de minimizar su producción es irradiar el conjunto de muestra y monitor de Ni bajo blindaje de Cd, de forma de disminuir la activación térmica ($\sigma_{th}=0.231 \pm 0.003$ b; Mughabghab,

1981) aunque la producción epitérmica ($\sigma_{\text{epi}}=0.17 \pm 0.07$ b; Mughabghab, 1981) no se altera.

La ubicación del ^{53}Fe respecto de los isótopos estables de peso atómico cercano determina que no se produzca por reacciones (n, γ), (n,p) o (n, α). Por lo tanto la única reacción con neutrones que lo puede producir es la que estudiamos, y no es necesario evaluar el aporte de impurezas que pudiese contener el material que irradiamos y que pudieran interferir en las determinaciones que efectuamos. En el caso del monitor interno la única interferencia puede provenir de la reacción $^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$. La sección eficaz de esta reacción en flujo de fisión de ^{235}U es muy pequeña, $\sigma=0.258 \pm 0.013$ mb (Baard et al., 1989), unas 300 veces menor que la sección eficaz de la reacción de interés, y dado que el informe del proveedor del material indica que el contenido de Mn es menor que 0.02 %, la interferencia de impurezas del material es despreciable.

La muestra, junto a un monitor de níquel metálico en forma de chapa, se irradió 2 m en la posición del núcleo del reactor RA-6 descrita en la sección 1.3.2. Se comenzó su medición con el menor tiempo de decaimiento posible; entre 30 y 50 s. El tiempo de medición se definió en cada caso, de acuerdo al tamaño y forma del pico que se observó en el espectro, y osciló entre 2 y 4 m. Se tomaron entre 4 y 6 espectros por irradiación, efectuándose 8 irradiaciones. Se obtuvieron 41 puntos en total. Luego de estas mediciones se tomó un espectro de la muestra de varias horas de duración para medir la actividad de la emisión de 834.8 keV asociada al decaimiento del monitor interno. Los monitores de Ni de cada irradiación se midieron con tiempos de decaimiento superiores a 4 días, de tal forma que el $^{58}\text{Co}^{\text{m}}$ hubiese decaído completamente en el $^{58}\text{Co}^{\text{f}}$ (ver sección 2.2.5). El tiempo de medición de los monitores fue de 10 h aproximadamente. La muestra decayó al menos 24 h entre cada irradiación. Para obtener la actividad del pico de 834.8 keV del monitor interno correspondiente a cada irradiación se efectúa el descuento de la actividad generada en las irradiaciones anteriores. Para ello se considera la medición previa a la irradiación considerada, corregida por decaimiento.

Se graficaron cada uno de los 8 conjuntos de puntos obtenidos de la medición de la evolución temporal de la muestra luego de cada irradiación. Los gráficos se hicieron considerando ambos monitores de flujo; el monitor interno y el Ni. En todos los casos se observó una buena correlación lineal de los puntos. En dos series de mediciones se observaron puntos claramente apartados del comportamiento lineal. Estos puntos, considerados “outliers”, fueron eliminados de los cálculos siguientes, atribuyéndose su apartamiento del comportamiento de los restantes a deficiencias en el ajuste del pico debidas a un escaso contaje sobre un fondo alto. La figura 3.2.1 muestra los 39 puntos obtenidos con las mediciones efectuadas, calculados con el monitor de Ni luego de eliminar los dos outliers mencionados. En la tabla 3.2.3 se muestran los resultados del ajuste lineal de los parámetros X e Y, efectuado utilizando el método de Deming (Rinard y Goldman, 1988).

Se calculó el factor de corrección por autoatenuación en la muestra utilizando las ecuaciones (1.4.16) y (1.4.18), obteniendo el valor de $\mu(E)$ de tablas. El factor de corrección se determinó para la energía de la emisión del monitor interno, 834.8 keV, y para la emisión de 377.9 keV del $^{53}\text{Fe}^{\text{f}}$. Los factores de corrección obtenidos son 1.0048 y 1.0071, respectivamente.

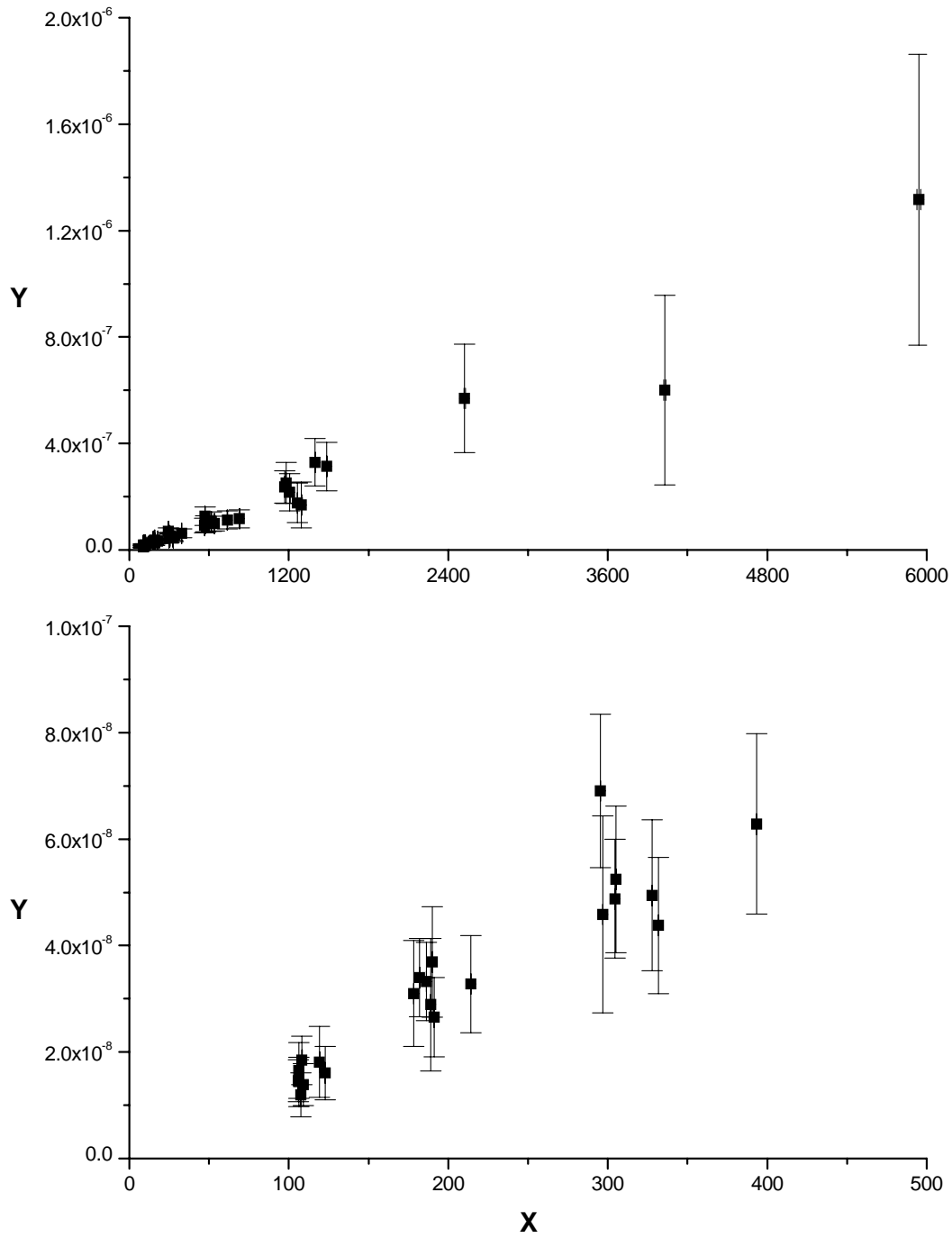


Figura 3.2.1 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^f$ y $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^m$. Mediciones obtenidas en 8 irradiaciones. X e Y corresponden a la definición de las ecuaciones (3.2.1), determinados con el monitor de níquel. El gráfico inferior es una ampliación del superior.

Tabla 3.2.3 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{54}\text{Fe}(\text{n},2\text{n})^{53}\text{Fe}^{\text{f}}$ y $^{54}\text{Fe}(\text{n},2\text{n})^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$
Ajuste lineal, utilizando el método de Deming^a, de la evolución temporal de los parámetros X e Y (ver ecuaciones (3.2.1))

monitor	Resultados del ajuste lineal		
	a^b	b^b	Coefficiente de correlación
$^{58}\text{Ni}(\text{n},\text{p})_{\text{m}}^{58}\text{Co}^{\text{f+}}$	$(1.817 \pm 0.077) \times 10^{-10}$	$(-4.50 \pm 1.37) \times 10^{-9}$	0.94
$^{54}\text{Fe}(\text{n},\text{p})^{54}\text{Mn}$	$(5.86 \pm 0.24) \times 10^{-13}$	$(-1.47 \pm 0.43) \times 10^{-11}$	0.94

^a Rinard y Goldman, 1988

^b ver ecuaciones 3.2.1

3.2.3 Resultados

El ajuste lineal de los parámetros X e Y muestra características similares al efectuarse el cálculo con el monitor interno o con el níquel. El coeficiente de correlación es el mismo en ambos casos, y los errores asociados a los parámetros de ajuste también son similares (ver tabla 3.2.3). En el análisis de los parámetros de ajuste determinados, el primer aspecto que surge es que la incerteza de la ordenada en el origen, **b**, es muy cercana al valor de **b** en el cálculo con ambos monitores, lo que implica que el valor del parámetro **b** es muy cercano a 0. En este caso, para asegurar que el parámetro **b** tiene un valor significativo, lo mas apropiado es evaluarlo con un intervalo de confianza del 99.85 %. O sea que el valor de **b** determinado tiene que ser mayor que tres veces la incerteza de su determinación. En ambos cálculos se observa que **b** supera tres veces su error y entonces podemos considerar que no es nulo, si bien su incerteza es alta. Esto se traduce en que para el método de cálculo que empleamos la sección eficaz de producción del estado metaestable tiene un valor significativo, y por lo tanto podremos determinarlo.

Los resultados del cálculo de la sección eficaz de producción de cada isómero, utilizando los resultados del ajuste de la tabla 3.2.3 para el cálculo con ambos monitores de flujo, se muestran en la tabla 3.2.4. Se observa un excelente acuerdo entre las determinaciones efectuadas con los dos monitores, adoptándose el correspondiente al monitor de níquel.

En el cálculo de las incertezas de las mediciones se observa que la producción de la emisión y asociada al decaimiento del estado fundamental está informada con un error singularmente alto para este tipo de parámetros; 7.1 % (ver tabla 2.1.2). Este aporte resulta ser el más importante en la determinación de la incerteza de σ_{f} , mayor aún que el del coeficiente **a** del ajuste lineal. En cambio el mayor aporte al error de σ_{m} es el asociado a la ordenada en el origen del ajuste lineal. Dada la composición de las incertezas de las secciones eficaces determinadas, la utilización del monitor interno no resulta en una disminución del error final de la medición.

Tabla 3.2.4 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{54}\text{Fe}(\text{n},2\text{n})^{53}\text{Fe}^{\text{f}}$ y $^{54}\text{Fe}(\text{n},2\text{n})^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$
Resultados

Reacción	Monitor	Sección eficaz (μb)
$^{54}\text{Fe}(\text{n},2\text{n})^{53}\text{Fe}^{\text{f}}$	$^{58}\text{Ni}(\text{n},\text{p})^{58}\text{Co}^{\text{f+m}}$ $\sigma = 111 \pm 3 \text{ mb}^{\text{a}}$	1.14 ± 0.13
	$^{54}\text{Fe}(\text{n},\text{p})^{54}\text{Mn}$ $\sigma = 81.7 \pm 2.2 \text{ mb}^{\text{a}}$	1.15 ± 0.13
$^{54}\text{Fe}(\text{n},2\text{n})^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$	$^{58}\text{Ni}(\text{n},\text{p})^{58}\text{Co}^{\text{f+m}}$ $\sigma = 111 \pm 3 \text{ mb}^{\text{a}}$	0.52 ± 0.16
	$^{54}\text{Fe}(\text{n},\text{p})^{54}\text{Mn}$ $\sigma = 81.7 \pm 2.2 \text{ mb}^{\text{a}}$	0.51 ± 0.15

^a Baard et al., 1989

En ninguno de los espectros se observaron picos en las energías 701.1 keV, 1011.5 keV o 1328.1 keV, emisiones asociadas al decaimiento del $^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$ (ver tabla 2.1.2). Esto indica que no se produjo una cantidad suficiente de estados metaestables del ^{53}Fe en la reacción que estudiamos para ser detectados por el sistema de medición empleado. En este caso, el estudio de los espectros medidos nos permite determinar un límite máximo del valor de sección eficaz de producción del estado metaestable. Para ello se determinó el área mínima detectable de cada una de las energías asociadas al decaimiento del $^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$, en cada espectro medido, utilizando la fórmula (3.2.1) (EG-G).

$$A_m = \frac{9}{2} + \sqrt{\frac{81}{4} + 18B} \quad (3.2.1)$$

B fondo en la zona del espectro de la emisión γ que se estudia

A_m área mínima detectable, calculada con una confianza de 99.73 %

Con el valor del área mínima detectable se efectuó la determinación del límite de detección de la sección eficaz utilizando la ecuación (2.2.4). En estos cálculos se empleó como monitor de flujo el Ni.

Las determinaciones que tienen menor límite de detección son las que se obtienen con el primer espectro de cada irradiación, por tener el menor tiempo de decaimiento, y con la emisión de 701.1 keV, que tiene la mayor eficiencia de detección y la mayor producción de las tres emisiones. No se observan variaciones significativas entre cada irradiación, por lo que se elige el valor límite menor. El valor final del límite de detección de la reacción $^{54}\text{Fe}(\text{n},2\text{n})^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$ en espectro de fisión térmica de ^{235}U es:

$$\sigma \{^{54}\text{Fe}(\text{n},2\text{n})^{53}\text{Fe}^{\text{m}}\} < 1 \mu\text{b}$$

El valor límite encontrado es consistente con el valor determinado por el método de las rectas.

La vida media del estado metaestable es menor que la del fundamental, por lo tanto en principio se puede plantear la posibilidad de determinar en los espectros medidos la sección eficaz suma de ambos estados; $\sigma_f + \sigma_m$. En la sección 2.2.5 se estudió este caso, concluyéndose que en las condiciones de medición no hay una combinación de tiempos de medición, irradiación y decaimiento que permitan las aproximaciones necesarias para determinar este parámetro en forma independiente de alguna de las secciones eficaces. Sin embargo, las determinaciones que se efectúen con el espectro con menor decaimiento de cada irradiación tiene un corrimiento menor al 2 % del valor real (ver tabla 2.2.2). Esta aproximación fue calculada utilizando los valores de sección eficaz determinados por el método de las rectas, y por lo tanto no pueden utilizarse para efectuar una corrección del valor medido en los espectros mencionados, y obtener determinaciones independientes. Pero teniendo en cuenta que los errores de las áreas son mucho mayores que esta diferencia, es posible utilizar estas mediciones como corroboración de los resultados obtenidos por el método de las rectas, suponiendo que esta determinación tiene un corrimiento sistemático del orden del 2 %. El promedio pesado por el error del cálculo directo de la sección eficaz sobre el primer espectro de cada irradiación nos da, entonces, una estimación de la suma de secciones eficaces de producción de ambos isómeros: $\sigma_f + \sigma_m$. El valor obtenido es:

$$\sigma_f + \sigma_m \approx (1.38 \pm 0.14) \mu\text{b, monitor: Ni}$$

$$\sigma_f + \sigma_m \approx (1.42 \pm 0.15) \mu\text{b, monitor interno}$$

Estos valores son consistentes con la suma de las secciones eficaces obtenida por el método que estudiamos: $\sigma_f + \sigma_m = (1.66 \pm 0.21) \mu\text{b}$, constituyendo una corroboración de esta determinación al ser determinado con una metodología de cálculo diferente.

En la literatura sólo se encuentra una determinación de la sección eficaz de las reacciones que estudiamos. Este valor (Calamand, 1974) es una renormalización de una medición hecha por D. J. Hughes en 1953. El valor originalmente informado por Hughes es 3.2 μb , y fue renormalizado por Calamand por considerar que el flujo neutrónico en que Hughes hizo sus mediciones se aparta del de fisión, estableciendo que al aplicar un factor de corrección igual a 1.6 sus mediciones son consistentes con otras determinadas en ese momento (Calamand, 1974). Calamand también incorpora el error que se informa en su trabajo (ver tabla 3.2.5). En las mediciones hechas por Hughes no se discriminan los estados isoméricos, por lo tanto los valores obtenidos con el método de las rectas pueden ser considerados como las primeras determinaciones que se efectúan. Curiosamente, la suma de los valores obtenidos con el método de las rectas son más cercanos al valor original de la medición de Hughes que a la renormalización de Calamand, aunque no son comparables por ser parámetros diferentes.

Tabla 3.2.5 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^f$ y $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^m$
Resultados finales

Reacción	Autor	Sección eficaz (μb)
$^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^f$	este trabajo	1.14 ± 0.13
$^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^m$	este trabajo	0.52 ± 0.16
$^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}$	Calamand, 1974	5.0 ± 2.5

3.3 Reacciones $^{46}\text{Sc}(n,2n)^{45}\text{Sc}^f$ y $^{46}\text{Sc}(n,2n)^{45}\text{Sc}^m$

El escandio es usado frecuentemente como monitor de flujo térmico. Sin embargo, si el espectro neutrónico que se releva tiene una componente rápida también se producirán las tres reacciones $^{45}\text{Sc}(n,\alpha)^{42}\text{K}$, $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^f$ y $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$ (ver tabla 3.3.1). Estas reacciones podrían usarse para determinar la componente rápida del flujo, en irradiaciones cortas, particularmente para reacciones de alto umbral en las que se usan monitores de vida media larga (por ejemplo las reacciones $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$ y $^{92}\text{Mo}(n,p)^{92}\text{Nb}^m$). El umbral teórico y el efectivo de las reacciones $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^f$ y $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$ se muestra en la tabla 1.1.1. Una búsqueda bibliográfica muestra que las determinaciones experimentales de las secciones eficaces de estas reacciones son, en su mayoría, diferenciales (Suárez et. al, 1997). Otra búsqueda bibliográfica revela que sólo se dispone de valores calculados de las secciones eficaces de las reacciones $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^f$ y $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$ (Bychkov et. al., 1982).

Tabla 3.3.1 Isótopos del escandio: reacciones con neutrones rápidos

Reacción	Producto		
	Vida media ^a	Emisión γ característica ^b (keV)	Probabilidad de emisión ^b (%)
$^{45}\text{Sc}(n,p)^{45}\text{Ca}$	162.61 ± 0.09 d	-	-
$^{45}\text{Sc}(n,\alpha)^{42}\text{K}$	12.360 ± 0.003 h	1524.70^b	18.08 ± 0.09^b
$^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^f$	3.927 ± 0.008 h	1157.031^c	99.90 ± 0.05^c
$^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$	58.6 ± 0.1 h	271.13^c	86.7 ± 0.3^c

^a Tuli, 1995

^b Firestone, 1996

^c ENSDF, 1997

3.3.1 Ecuaciones

En la sección 2.1 se describió el decaimiento de los dos isómeros del ^{44}Sc . El estado metaestable del ^{44}Sc decae mayoritariamente al nivel fundamental, pero una pequeña fracción decae directamente al ^{44}Ca , como se puede observar en el esquema de decaimiento de la figura 2.1.4. Por lo tanto, en el esquema general de decaimiento que sirvió de base para el desarrollo de las ecuaciones en la sección 2.2 (ver figura 2.2.1), g no es 1 como en los casos estudiados previamente. El valor utilizado en las determinaciones es $g=0.9880\pm0.0007$ (ENSDF, 1997). La fracción de decaimientos del estado metaestable, $y_{m,\gamma}$, y del fundamental $y_{f,\gamma}$, se puede ver en la tabla 2.1.3. En estas condiciones aplicamos el método descrito en la sección 2.2.2 y expresado en la ecuación (2.2.10); con la parametrización de las ecuaciones (2.2.11) podemos determinar la sección eficaz de las reacciones $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^f$ y $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$ midiendo la evolución temporal de la emisión γ de 1157 keV y utilizando las ecuaciones (2.2.12). El flujo neutrónico se evalúa con la reacción $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m}$, incorporando la expresión de la ecuación (2.2.13) en la (2.2.10). De esta forma las determinaciones que efectuamos están referidas a la sección eficaz de la reacción del níquel; $\sigma_f=111 \pm 3$ mb (Baard et al., 1989).

El decaimiento del estado metaestable del ^{44}Sc produce una emisión γ asociada a niveles energéticos del estado fundamental ($E_\gamma=271.13$ keV), como se puede ver en la figura 2.1.4. El estudio de esta emisión permite la determinación independiente de la sección eficaz de la reacción $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$, utilizando la ecuación (2.2.4). En esta ecuación el flujo se determina con la ecuación (2.2.13), utilizando el monitor de níquel que acompañó a las muestras en las irradiaciones. Para corroborar el resultado que se obtenga aplicando el método de las rectas, también se efectuará la determinación de la sección eficaz de producción del estado metaestable midiendo la emisión de 271.13 keV.

3.3.2 Mediciones

Tres muestras de escandio metálico en forma de chapa de 0.127 mm de espesor y pureza de 99.85 % fueron irradiadas utilizando el sistema neumático de transporte de muestras. Las masas de las muestras fueron de 4 a 18 mg, y el tiempo de irradiación de 6 a 12 minutos. Junto a cada muestra se irradiaron monitores de níquel, con forma de alambre y chapa. Las muestras se irradiaron recubiertas de cadmio de 1 mm de espesor, para minimizar la producción de la reacción $^{45}\text{Sc}(n,\gamma)^{46}\text{Sc}^{f+m}$.

Se tomaron espectros γ de las muestras después de tiempos de decaimiento de entre 1 y 3 horas. En este caso los espectros se tomaron con la muestra ubicada en diferentes geometrías, para optimizar cada medición. La geometría de medición se eligió de modo que el tiempo muerto no superase el 2 % en ningún caso. Esta modificación en las condiciones de medición establecidas en el desarrollo de las ecuaciones del método de las rectas, conlleva la modificación de la parametrización de las ecuaciones (2.2.11).

Para estudiar la evolución temporal del pico de 1157 keV se analizaron espectros tomados en forma consecutiva, cuyo tiempo de medición fue de 4 horas. Para determinar en forma directa la sección eficaz de la reacción $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$, midiendo la emisión de 271.13 keV, se analizaron dos espectros, también consecutivos, con tiempos de medición de 12 y 14 horas. Para poder realizar ambas mediciones al mismo tiempo se tomaron espectros parciales de 4 horas sin detener la medición.

El espectro medido es dominado, en todos los casos, por las emisiones de 889 y 1121 keV, generadas por la reacción $^{45}\text{Sc}(n,\gamma)^{46}\text{Sc}^{f+m}$. El fondo Compton generado por estas emisiones afecta la medición del pico de 271.13 keV, aumentando la incerteza asociada a la determinación de su área. Sin embargo, también se identifican emisiones correspondientes a las impurezas del material, como Au, Mn, Na, Sm, Ta, Tb y W. El decaimiento del ^{182}Ta , producido por la reacción $^{181}\text{Ta}(n,\gamma)^{182}\text{Ta}$, genera dos emisiones de 1157.3 y 1158.1 keV, con una producción de 0.99 ± 0.12 % (se considera la suma de ambas emisiones). Estas emisiones interfieren la determinación de la emisión de 1157.0 keV, y fue corregida utilizando la medición de las emisiones más importantes del ^{182}Ta . Esta corrección en ningún caso superó el 5 %.

Se efectuaron correcciones por autoatenuación en las muestras durante la medición. En el caso de las muestras en forma de chapa se determinó el factor de autoatenuación para una geometría slab (ver ecuación (1.4.20)), y en el caso de los monitores de níquel se empleó la aproximación para una geometría cilíndrica (ver ecuación (1.4.21)).

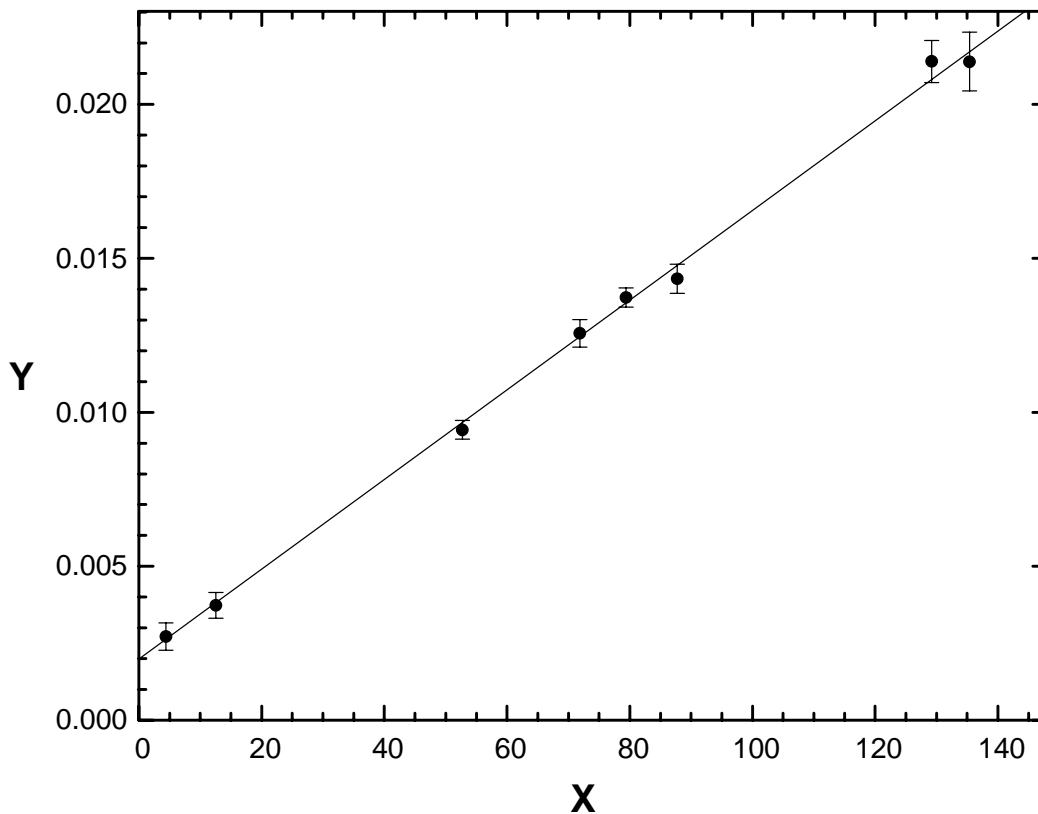


Figura 3.3.1 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^f$ y $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$.

Se tomaron al menos dos mediciones de cada una de las tres muestras estudiadas.

X e Y corresponden a la definición de las ecuaciones (2.2.11). La variable Y fue renormalizada en los cálculos y en el gráfico.

La figura 3.3.1 muestra los valores de X e Y (según las definiciones de las ecuaciones (2.2.11); la variable Y fue renormalizada en los cálculos y en gráfico) para las mediciones efectuadas de la emisión de 1157.0 keV, junto con el ajuste lineal realizado utilizando el método de Deming (Rinard y Goldman, 1988). Dadas las condiciones experimentales no fue posible efectuar una cantidad suficiente de mediciones de cada muestra de modo de obtener determinaciones individuales de las secciones eficaces que se estudian. Por lo tanto se efectuó el ajuste conjunto de los resultados de las tres muestras, tomando al menos dos espectros de cada una. Los resultados del ajuste son:

$$a = (1.456 \pm 0.033) \times 10^{-4} \quad b = (1.99 \pm 0.23) \times 10^{-3} \quad \rho = 0.997$$

3.3.3 Resultados

Los resultados de las determinaciones efectuadas se muestran en la tabla 3.3.2. De acuerdo a la búsqueda bibliográfica efectuada, las mediciones que se exponen de las secciones eficaces promediadas en flujo de fisión de ^{235}U de las reacciones $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$ y $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^f$ son las primeras determinaciones experimentales que se efectúan.

Tabla 3.3.2 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^f$ y $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$
Resultados

Reacción	Determinaciones individuales ^a (mb)	Valor final ^b (mb)
$^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^f$	27.26 ± 0.61	27.3 ± 1.3
$^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$ ^c	22.0 ± 2.5	22.0 ± 2.7
$^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$ ^d	21.1 ± 3.1	19.9 ± 3.0
	19.9 ± 4.0	
	18.7 ± 3.0	

^a Las incertezas de las mediciones solo incluyen los aportes aleatorios.

^b Las incertezas de las mediciones incluyen los aportes aleatorios y los sistemáticos.

^c Determinación efectuada utilizando el análisis de la evolución temporal de la emisión de 1157.0 keV.

^d Determinación efectuada utilizando la medición de la emisión de 271.13 keV.

La determinación directa de la sección eficaz de la reacción $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$, midiendo la emisión de 271.13 keV, es consistente con la efectuada midiendo la evolución temporal de la emisión de 1157.0 keV (ver tabla 3.3.2). Por otra parte, P. Suárez realizó una evaluación de las secciones eficaces que estudiamos a partir de sus valores diferenciales, usando diferentes expresiones analíticas de la distribución energética del flujo de fisión del ^{235}U (Suárez, 1997). Los resultados concuerdan con las determinaciones experimentales que se exponen en este trabajo, si bien esta concordancia es pobre cuando se utilizan algunas representaciones del flujo dado que son reacciones de alto umbral (Suárez, 1997). Por lo tanto ambas evaluaciones son corroboraciones independientes de los resultados obtenidos; $\sigma_f=22.0 \pm 2.7 \text{ mb}$ para la reacción $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$, y $\sigma_f=27.3 \pm 1.3 \text{ mb}$ para la reacción $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^f$.

3.4 Reacciones $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$ y $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$

En los núcleos de ^{90}Zr es posible inducir la producción de los isómeros $^{89}\text{Zr}^f$ y $^{89}\text{Zr}^m$, irradiándolos con neutrones rápidos. Estudiando la evolución temporal de las emisiones asociadas al decaimiento del estado fundamental es posible, en principio, aplicar el método de las rectas para determinar la sección eficaz de producción de ambos isómeros. Estas emisiones corresponden a niveles excitados de ^{89}Y (ver figura 2.1.9), y las más importantes son 5 (ver tabla 2.1.4), aunque la única que tiene una producción cercana al 100 % es la de 909.14 keV, mientras que la producción de las restantes no supera el 1 %. La emisión de 909.14 keV corresponde a un decaimiento que tiene una vida media que puede ser medida, por lo tanto a un estado metaestable, y que es comparable a la vida media del $^{89}\text{Zr}^m$. Se trata del $^{89}\text{Y}^m$ $T_{1/2}=15.28 \pm 0.17 \text{ s}$ (Tuli, 2000), mientras que para el $^{89}\text{Zr}^m$, $T_{1/2}=4.161 \pm 0.017 \text{ m}$ (Tuli, 2000). Por lo tanto no podemos considerar esta emisión como instantánea, y ya no son válidas las ecuaciones deducidas en la sección 2.2.2. En la sección 2.2.3 se exponen las ecuaciones que son aplicables si queremos estudiar la evolución temporal de la emisión de 909.14 keV, y se encuentra que para tiempos de decaimiento mayores a 2 m es posible aplicar el método de las rectas, empleando las ecuaciones deducidas para este caso. Este aspecto constituye la característica principal del ejemplo del método de las rectas que estudiamos en esta sección. La tabla 3.4.1 muestra las reacciones que se producen sobre los núcleos de Zr con neutrones rápidos.

Tabla 3.4.1 Isótopos del circonio: reacciones con neutrones rápidos

Reacción	Abundancia isotópica ^a (%)	Producto		
		Vida media ^a	Emisión γ característica ^b (keV)	Probabilidad de emisión ^b (%)
$^{90}\text{Zr}(n,p)^{90}\text{Y}^f$	51.40 ± 0.40	$64.00 \pm 0.21 \text{ h}$	2318.968	0.171 ± 0.016
$^{90}\text{Zr}(n,p)^{90}\text{Y}^m$	51.40 ± 0.40	$3.19 \pm 0.06 \text{ h}$	479.51	90.741 ± 0.049
$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$	51.40 ± 0.40	$78.41 \pm 0.12 \text{ h}$	909.14	99.871 ± 0.003
$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$	51.40 ± 0.40	$4.161 \pm 0.017 \text{ m}$	587.79	89.51 ± 0.17
$^{92}\text{Zr}(n,\alpha)^{89}\text{Sr}$	17.15 ± 0.008	$50.53 \pm 0.07 \text{ d}$	-	-

^a Tuli, 2000

^b Firestone, 1996

Se efectuaron irradiaciones preliminares de circonio metálico para analizar la factibilidad de aplicar el método de las rectas en esta reacción. Las irradiaciones se hicieron bajo blindaje de cadmio para minimizar la activación térmica. La medición de las muestras irradiadas mostró que el pico de 743.36 keV, asociado a la reacción $^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97}\text{Zr}$ ($T_{1/2}=16.744 \pm 0.011$ h, Tuli 2000; $\sigma_{\text{th}}=0.0229 \pm 0.0010$ b, $\sigma_{\text{epi}}=5.3 \pm 0.3$ b; Mughabghab, 1981), domina el espectro. En estas irradiaciones también se pudo medir el pico de 909.14 keV, asociado a la reacción que estudiamos, pero se obtuvieron áreas muy pequeñas, aproximadamente 1000 veces menores a las generadas por la emisión de 743.36 keV. La reacción $^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97}\text{Zr}$, a diferencia de la otra reacción (n,γ) del circonio que puede interferir en las mediciones, la reacción $^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr}$ ($T_{1/2}=64.02 \pm 0.05$ d, Tuli 2000; $\sigma_{\text{th}}=0.0499 \pm 0.0024$ b, $\sigma_{\text{epi}}=0.230 \pm 0.010$ b; Mughabghab, 1981), tiene una componente epitérmica muy importante. Este aspecto, al que se le agrega que la vida media del producto ^{97}Zr es mucho menor que la del ^{95}Zr , determina que la actividad de la reacción sobre el isótopo ^{96}Zr sea mucho más importante al irradiar bajo blindaje de cadmio, a pesar de que su abundancia es mucho menor (ver tabla 3.4.2). A la luz de estos resultados se consideró que en estas condiciones de medición se obtendrían secciones eficaces con incertezas muy altas, aún si se midiesen varias muestras, y por lo tanto era necesario mejorar estas condiciones modificando alguno de los parámetros de irradiación. No es posible disminuir la activación epitérmica en las condiciones de irradiación planteadas, por lo tanto la única alternativa es modificar la composición isotópica, estudiando un material enriquecido en ^{90}Zr en relación al ^{96}Zr . Las características del material que se va a estudiar se presentan en la tabla 3.4.2. La relación de abundancias isotópicas entre el ^{90}Zr y el ^{96}Zr es 35 veces mayor en el material que vamos a estudiar respecto de la composición natural, lo que significa una mejora significativa de las condiciones de medición.

Tabla 3.4.2 Material a estudiar: circonio enriquecido en el isótopo ^{90}Zr

Material: ZrO_2

Proveedor: Trace Sciences, Canadá

Composición isotópica del Zr (%)					
	^{90}Zr	^{91}Zr	^{92}Zr	^{94}Zr	^{96}Zr
natural ^a	51.45 ± 0.40	11.22 ± 0.05	17.15 ± 0.08	17.38 ± 0.28	2.80 ± 0.09
elemento enriquecido	97.72 ± 0.10	1.07 ± 0.05	0.51 ± 0.05	0.56 ± 0.05	0.15 ± 0.03

^a Tuli, 2000

Contenido de impurezas relevantes informado por el proveedor: Fe, 0.05 %; Mg, 0.01 %; Si, 0.02 %.

El decaimiento del estado metaestable al fundamental genera emisiones γ (ver tabla 2.1.4), con las que podemos obtener una determinación directa de la sección eficaz de producción de ese estado. Por otra parte, la vida media del estado fundamental es mucho mayor que la del metaestable ($^{89}\text{Zr}^f$, $T_{1/2}=78.41 \pm 0.12$ h; $^{89}\text{Zr}^m$, $T_{1/2}=4.161 \pm 0.017$ m). Con tiempos de decaimiento suficientemente grandes es posible suponer que el metaestable decayó completamente en el fundamental, pudiéndose utilizar entonces la medición de la emisión γ generada por el fundamental para la determinación directa de la sección eficaz de la reacción $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^{f+m}$. Como se estableció en la sección 2.2.5, la sección eficaz que se obtiene en este caso se puede considerar que es igual a la suma de las secciones eficaces de producción de ambos isómeros. En ambos casos obtenemos determinaciones de las secciones eficaces de producción de ambos isómeros independientes del método de las rectas, y que, por lo tanto, constituyen determinaciones con las cuales corroborar los resultados que obtengamos.

3.4.1 Ecuaciones

Las ecuaciones que se aplican en este caso se desarrollaron en la sección 2.2.3; la ecuación general, la parametrización de las variables y la expresión de los parámetros de ajuste, **a** y **b**, se encuentran en las ecuaciones 2.2.19, mientras que la expresión de las secciones eficaces se muestra en las ecuaciones 2.2.20. El 6.23 % de los núcleos del estado metaestable del ^{89}Zr decaen al $^{89}\text{Y}^f$ por captura electrónica (ver figura 2.1.7), por lo tanto en este caso g es menor que 1 (ver figura 2.2.1); $g = 0.9377$. La emisión que estudiamos está asociada al decaimiento del $^{89}\text{Y}^m$, por lo tanto la producción asociada al decaimiento del $^{89}\text{Zr}^m$, $y_{m,\gamma}$, es 0.

3.4.2 Mediciones

La emisión γ asociada al decaimiento del estado fundamental que nos permite aplicar el método de las rectas es la de 909.14 keV (ver tabla 2.1.4). Como ya se mencionara, se espera que la actividad de este pico sea pequeña, aún analizando un material enriquecido en ^{90}Zr . Por otra parte, se dispone de poca cantidad del material enriquecido en ^{90}Zr , por lo que se opta por irradiar todo el material disponible en una sola muestra, repitiendo su irradiación, y posterior medición, luego de que hubiesen decaído los isótopos de interés. El material a estudiar fue puesto en desecador durante 6 días antes de ser pesado. La masa de la muestra irradiada es de (216.1 ± 0.2) mg de ZrO_2 .

Se efectuaron 3 irradiaciones de la muestra junto a monitores de níquel, de 6 m de duración cada una. El tiempo de decaimiento de la muestra entre cada irradiación fue mayor que 33 días, tiempo equivalente a 10 vidas medias del $^{90}\text{Zr}^f$. El tiempo de manipulación de la muestra luego de ser irradiada es de 1 m aproximadamente. Se tomó el primer espectro de cada evolución temporal esperando 1 m más, completando así los 2 m de decaimiento que permiten la aplicación del método de las rectas en este caso, como se mostró en la sección 2.2.3. El tiempo de medición se determinó en cada caso observando el área y la forma del pico. Se obtuvieron picos de 200 a 400 cuentas, con tiempos de medición de 4 a 6 m. En la figura 3.4.1 se puede observar la evolución temporal de los

parámetros X e Y luego de una de las irradiaciones efectuadas. Se obtuvieron entre 12 y 14 puntos en cada una las irradiaciones.

En estos espectros se investigó la presencia de las emisiones que permiten cálculo directo de la sección eficaz de producción del $^{90}\text{Zr}^{\text{m}}$: 587.79 y 1507.3 keV. Se obtuvieron áreas superiores a 10^4 cuentas en el primer espectro para la emisión de menor energía. Estas áreas tienen errores asociados suficientemente pequeños para que no sea necesario hacer irradiaciones adicionales, con tiempos de medición mayores. Los cálculos se hicieron tomando los promedios pesados de los tres primeros espectros de cada irradiación, para ambas emisiones.

Luego de estudiada la evolución temporal de cada irradiación se tomaron espectros con tiempos de decaimiento mayores a 3 h y tiempos de medición de aproximadamente 40 h. Estos espectros se utilizaron para determinar la sección eficaz de la reacción suma del metaestable y fundamental. En estos espectros se pudieron observar las emisiones correspondientes a los niveles excitados del $^{90}\text{Y}^{\text{f}}$, aunque con áreas muy pequeñas.

La ubicación del ^{89}Zr respecto de los isótopos estables de peso atómico similar determina que no se produzca por reacciones (n, γ), (n,p) o (n, α). Por lo tanto la única reacción con neutrones que lo puede producir es la que estudiamos, y no es necesario evaluar el aporte de impurezas que pudiese contener el material que irradiamos y que pudieran interferir en las determinaciones que efectuamos. Las impurezas informadas por el proveedor no plantean problemas analíticos (ver tabla 3.4.2).

Se calculó el factor de corrección por autoatenuación en la muestra utilizando las ecuaciones (1.4.16) y (1.4.18), obteniendo el valor de $\mu(E)$ de tablas. El factor de corrección para cada una de las energías de las emisiones medidas se muestra en la tabla 3.4.3.

Tabla 3.4.3 Autoatenuación de radiación γ en la muestra medida
Factores de corrección

Energía (keV)	Factor de corrección
587.79	1.0109
909.14	1.0086
1507.3	1.0066
1657.26	1.0063
1712.8	1.0062
1744.47	1.0062

Con los valores de X e Y obtenidos de la medición de la evolución temporal de la emisión que estudiamos luego de cada irradiación, se determinaron los parámetros de

ajuste **a** y **b** utilizando el método de Deming (Rinard y Goldman, 1988). En la tabla 3.4.4 se muestran los parámetros de ajuste obtenidos en cada irradiación.

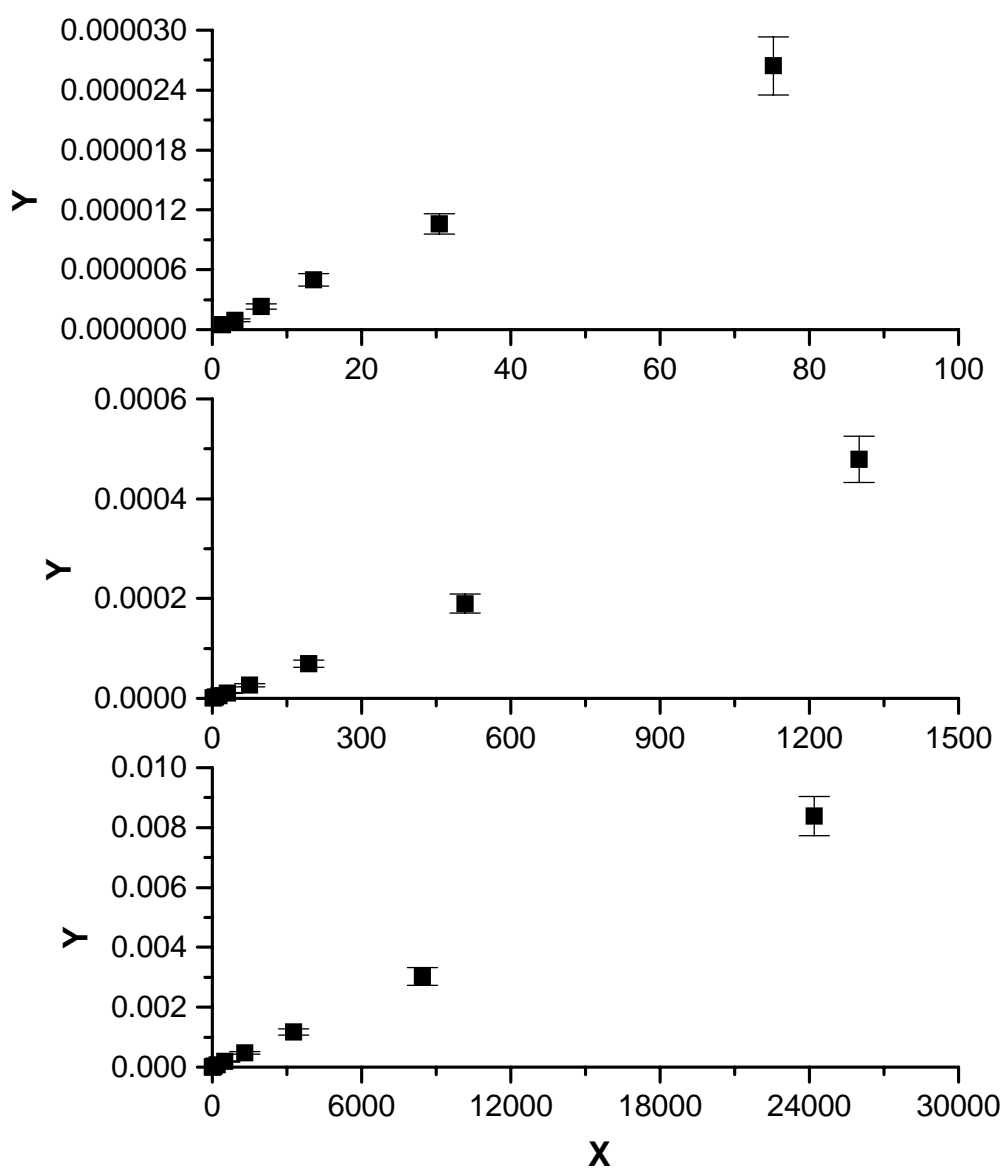


Figura 3.4.1 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$ y $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$.
X e Y corresponden a la definición de las ecuaciones 2.2.19.
Valores medidos en la irradiación A.
Los gráficos superiores son ampliaciones sucesivas del inferior.

Tabla 3.4.4 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$ y $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$
Ajuste lineal, utilizando el método de Deming^a, de la evolución temporal de los parámetros X e Y (ver ecuaciones (2.2.22))

irradiación	Resultados del ajuste lineal		
	a^b ($\times 10^{-7}$)	b^b ($\times 10^{-8}$)	Coefficiente de correlación
A	3.580 ± 0.018	-4.07 ± 2.11	0.9997
B	3.525 ± 0.050	-5.00 ± 4.32	0.997
C	3.491 ± 0.053	-8.03 ± 5.62	0.997

^a Rinard y Goldman, 1988

^b ver ecuaciones 2.2.19

3.4.3 Resultados

La medición de la emisión de 587.79 keV, asociada al decaimiento del $^{90}\text{Zr}^m$, en los espectros con menor decaimiento permitió obtener una determinación directa de la sección eficaz de producción de éste isómero. La emisión de 1507.3 keV también fue medida, pero debido a que el área es pequeña tiene asociada un error muy alto. En ambos casos se obtuvo un valor de sección eficaz para cada irradiación haciendo el promedio pesado por los errores aleatorios de las determinaciones obtenidos en los 3 o 4 espectros con menor tiempo de decaimiento de cada serie de mediciones. Las determinaciones efectuadas con las emisiones mencionadas son consistentes en las tres irradiaciones efectuadas (ver tabla 3.4.5). El valor final se calcula como el promedio pesado con los errores aleatorios de las determinaciones hechas en cada irradiación para cada emisión. Este valor se encuentra en la tabla 3.4.5.

Los espectros tomados luego de la medición de cada evolución temporal, con tiempos de decaimiento mayores a 3 h y tiempos de medición de aproximadamente 40 h, permitieron la determinación de la sección eficaz suma de producción de ambos isómeros. Se obtuvieron determinaciones con errores pequeños midiendo la emisión de 909 keV, pero también se pudieron medir las emisiones de 1657, 1714 y 1744 keV. Se determinó la sección eficaz con la medición de cada emisión, y se calculó el promedio pesado por los errores aleatorios de los resultados de cada espectro. En las tres irradiaciones se obtuvieron resultados consistentes con las cuatro emisiones medidas, si bien las de mayor energía tienen errores asociados mucho mayores que la de 909 keV (ver tabla 3.4.5). El valor final que se muestra en la tabla 3.4.5 se obtuvo haciendo el promedio pesado con los errores aleatorios de las tres determinaciones para cada una de las emisiones.

Como se mostró en la sección 2.2.5, en este caso se puede considerar que la sección eficaz de la reacción suma de producción de ambos isómeros es igual a la suma de la sección eficaz de producción de cada uno. Por lo tanto, restando en forma directa el valor obtenido para la sección eficaz de producción del estado metaestable al valor obtenido para

la sección eficaz de producción de la reacción suma, se puede determinar la sección eficaz de producción del estado fundamental. El resultado se muestra en la tabla 3.4.5.

Tabla 3.4.5 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$ y $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$
Resultados

reacción	método	Emisión γ (keV)	Sección eficaz (μb)			
			irradiación A	irradiación B	irradiación C	valor final
$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$	rectas	909.14	80 ± 23	69 ± 48	38 ± 69	
$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$	directo ^a		104.7 ± 3.5	107.0 ± 3.6	105.0 ± 3.7	105.8 ± 3.4
$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$	rectas	909.14	43 ± 23	53 ± 46	85 ± 60	
$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$	directo	587.79	14.05 ± 0.44	13.98 ± 0.44	13.46 ± 0.43	
		1507.3	15.2 ± 1.5	14.2 ± 1.5	14.1 ± 1.4	
		promedio pesado	14.08 ± 0.44	13.99 ± 0.43	13.48 ± 0.43	13.86 ± 0.40
$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^{f+m}$	directo	909.14	118.8 ± 3.5	121.0 ± 3.6	118.3 ± 3.7	
		1657.26	166 ± 62	-	-	
		1712.8	113 ± 12	124 ± 14	125 ± 13	
		1744.47	137 ± 66	-	-	
		promedio pesado	118.8 ± 3.5	121.0 ± 3.5	118.5 ± 3.7	119.6 ± 3.4

^a Se determina como diferencia de las secciones eficaces de producción de las reacciones $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^{f+m}$ y $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$, medidas en forma directa

La tabla 3.4.4 muestra los resultados de ajuste lineal de los puntos obtenidos a partir de la medición de la evolución temporal de la emisión de 909 keV luego de cada irradiación. Los puntos obtenidos tienen muy buen comportamiento lineal (ver figura 3.4.1), lo que se refleja en coeficientes de correlación lineal cercanos a 1 (ver tabla 3.4.4). Sin embargo, el valor del parámetro **b** es similar a su error, y no cumple con la condición que establecíamos para considerarlo significativo estadísticamente, o sea que superase tres veces su error. De hecho no supera siquiera dos veces su error. A pesar de no poder considerar significativo el valor de **b**, efectuamos las determinaciones de las secciones eficaces de producción de cada isómero para comparar los resultados con las mediciones directas (ver tabla 3.4.5). Los valores obtenidos tienen incertezas muy altas, pero aún así en el caso de la sección eficaz de producción del metaestable, irradiación A, no es consistente con la determinación directa (ver tabla 3.4.5). Podemos concluir entonces que en este caso el método de las rectas no solo no aporta resultados valiosos, sino que no es aplicable al no poder determinarse el parámetro de ajuste **b**.

Los valores finales de las secciones eficaces de producción de ambos isómeros se obtienen sólo a partir de las determinaciones directas. La tabla 3.4.6 muestra estos valores, junto con los informados por otros autores.

Tabla 3.4.6 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de las reacciones umbral $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$ y $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$
Resultados finales

reacción	autor	sección eficaz (μb)
$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$	Qaim, 1976	68.7 ± 10.0
	Brodskaia, 1985	83.0 ± 7.0
	Mannhart, 1985	103.0 ± 4.0
	Kobayashi, 1990	85.99 ± 6.50
	Maidana, 1996	105.0 ± 4.8
	Grigor'ev, 1999	94.5 ± 4.5
	este trabajo	105.8 ± 3.4
$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$	este trabajo	13.86 ± 0.40
$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^{f+m}$	este trabajo	119.6 ± 3.4

4. Evaluación del método de las rectas

4.1 Análisis de las ecuaciones

Para que el método de las rectas sea aplicable es esencial que podamos efectuar varias mediciones de una emisión γ asociada al decaimiento del estado fundamental, con diferentes tiempos de decaimiento. Esta condición de aplicación del método está asociada a las condiciones analíticas de la experiencia. Es decir, que la combinación de los diferentes factores asociados a la irradiación y a las mediciones permita la realización de las mediciones planteadas. Estos factores son, por ejemplo, la eficiencia del sistema de detección, la producción de la emisión γ a estudiar, el valor de flujo neutrónico en que se irradia, las reacciones que pueden interferir o dificultar la medición, ya sea sobre otros isótopos del mismo elemento o sobre impurezas del material, la masa de material que se irradia y la abundancia isotópica del núcleo que se estudia, etc. Estos factores están asociados al sistema de medición que empleamos y al caso que analizamos. Pero el análisis directo de las ecuaciones en que se sustenta el método permite, en una primer aproximación, establecer que la potencia del método no es la misma en todas las circunstancias en que se lo aplica. También depende de la combinación de parámetros asociados sólo con el método en sí, o sea con las secciones eficaces de producción que queremos determinar y las constantes de decaimiento de los isómeros, y no sólo con las características de los casos particulares que se estudian o con las condiciones de irradiación y medición.

Para efectuar una primer evaluación de las posibilidades de aplicación del método en sí mismo, analicemos la expresión del parámetro de ajuste **a** de la ecuación (2.2.11a). Determinemos el error relativo de este parámetro en función de las secciones eficaces, considerando despreciable el de las constantes de decaimiento. Cuando aplicamos el método de las rectas este error surge del tratamiento estadístico de las variables X e Y, que se obtienen a partir de las mediciones (ver sección 2.2 y ecuaciones (2.2.11)), por lo que el único sentido de esta función es analizar en forma paramétrica la variación del error en el parámetro de ajuste **a**. Dado que el método de las rectas se basa en la determinación de los parámetros de ajuste **a** y **b**, de esta forma podemos evaluar a priori en qué situaciones el método se aplica mejores condiciones, que serán cuando el error de **a** sea menor. La elección del parámetro **a** para este estudio se debe a que **b** depende sólo de la sección eficaz de producción del metaestable, y en forma lineal (ver ecuación (2.2.11b)), imposibilitando el análisis paramétrico planteado. La única singularidad que aparece en el parámetro **b** corresponde a la condición $\lambda_m = \lambda_f$, que también aparece en el parámetro **a**., caso que se tratará en forma particular desarrollando las ecuaciones de aplicación del método incluyendo esta condición. La expresión del error relativo del parámetro **a**, obtenida a partir de la ecuación (2.2.11a,) se muestra en la ecuación siguiente

$$\frac{\Delta \mathbf{a}}{\mathbf{a}} = \frac{\sqrt{\Delta^2 \sigma_f + \left(\frac{\mathbf{g} \lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f} \right)^2 \Delta^2 \sigma_m}}{\sigma_f + \frac{\mathbf{g} \sigma_m \lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f}} \quad (4.1)$$

Si imponemos el mismo error relativo $\varepsilon \sigma$ para ambas secciones eficaces, obtenemos la ecuación

$$\varepsilon(\mathbf{a}) = \varepsilon(\sigma) \frac{\sqrt{1 + \left(\frac{\lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f} \right)^2 \left(\frac{\mathbf{g} \sigma_m}{\sigma_f} \right)^2}}{1 + \frac{\lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f} \frac{\mathbf{g} \sigma_m}{\sigma_f}} \quad (4.2)$$

De esta forma, la relación entre el error relativo del parámetro de ajuste y el error relativo de las secciones eficaces tiene la siguiente forma:

$$\frac{\varepsilon(\mathbf{a})}{\varepsilon(\sigma)} = \frac{\sqrt{1 + \mathbf{L}^2 \mathbf{s}^2}}{1 + \mathbf{L} \mathbf{s}} \quad (4.3)$$

con

$$\mathbf{L} = \frac{\lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f} \quad \mathbf{s} = \frac{\mathbf{g} \sigma_m}{\sigma_f}$$

Veamos cómo es el comportamiento de esta función al variar \mathbf{s} , para distintos valores del parámetro \mathbf{L} . En este sentido podemos distinguir los siguientes casos:

1. La vida media del estado metaestable es mucho menor que la del fundamental: $\lambda_m \gg \lambda_f$, $\Rightarrow \mathbf{L} \approx 1$.
2. La vida media del estado metaestable es mucho mayor que la del fundamental: $\lambda_f \gg \lambda_m$, $\Rightarrow \mathbf{L} < 0$ y $\mathbf{L} \approx 0$.
3. La vida media del estado metaestable es igual a la del fundamental: $\lambda_f = \lambda_m$, $\Rightarrow \mathbf{L} = \infty$.
Esta caso será tratado en forma particular, desarrollando las ecuaciones de aplicación del método incluyendo esta condición.
4. La vida media del estado metaestable es menor que la del fundamental, pero del mismo orden: $\lambda_m > \lambda_f$, $\Rightarrow 1 < \mathbf{L} < \infty$ y $\mathbf{L} > 1$.
5. La vida media del estado metaestable es mayor que la del fundamental, pero del mismo orden: $\lambda_f > \lambda_m$, $\Rightarrow -\infty < \mathbf{L} < 0$ y $|\mathbf{L}| > 1$.

4.1.1 Ecuaciones de aplicación del método de las rectas cuando la vida media de ambos isómeros es igual

Un primer análisis de las ecuaciones (2.2.11), o la (4.3), sugiere que cuando las vidas medias de ambos isómeros son iguales tenemos una singularidad, que ocurre al anularse términos que se encuentran en los denominadores tanto del parámetro de ajuste **a** como del **b** (caso 3). Sin embargo el límite de la ecuación (4.3) cuando $L \rightarrow \infty$ es 1 (ver ecuación (4.4)), que es un valor finito. Por lo tanto si bien cuando $\lambda_m = \lambda_f$ el método no es aplicable al anularse los denominadores mencionados, para valores de λ_m muy cercanos a λ_f es posible aplicar el método de las rectas, y, si bien los valores de los parámetros de ajuste **a** y **b** serán muy grandes, su relación se mantendrá acotada y nos permitirá obtener las secciones eficaces que queremos determinar. Veamos que pasa con la deducción de las ecuaciones de aplicación del método de las rectas para este caso particular.

$$\lim_{L \rightarrow \infty} \frac{\sqrt{1 + L^2 s^2}}{1 + Ls} = 1 \quad (4.4)$$

Las ecuaciones del sistema (2.2.5) siguen siendo válidas, pero en sus soluciones, ecuaciones (2.2.6), aparece la diferencia de constantes de decaimiento de los isómeros en un denominador, y por lo tanto no son válidas. Imponiendo que las constantes de decaimiento son iguales, obtenemos las siguientes soluciones

$$\begin{cases} N_m = \frac{N_B \phi \sigma_m}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \\ N_f = \frac{N_B \phi}{\lambda} (\sigma_f + \sigma_m g)(1 - e^{-\lambda t}) - N_B \phi \sigma_m g t e^{-\lambda t} \end{cases} \quad (4.5)$$

siendo λ la constante de decaimiento de ambos isómeros

Si continuamos con el mismo desarrollo descrito en la sección 2.2.2., obtenemos la siguiente expresión

$$\frac{A_{T,\gamma} \lambda}{y_{f,\gamma} E_f N_B \phi F} = -g \sigma_m H + (\sigma_f + 2g \sigma_m) \quad (4.6)$$

$$\text{con} \quad \mathbf{H} = \lambda \left(\frac{\mathbf{t}_i}{e^{-\lambda t_i} - 1} - \mathbf{t}_d + \frac{\mathbf{t}_c}{e^{-\lambda t_c} - 1} \right)$$

$$\text{y} \quad \mathbf{F} = (1 - e^{-\lambda t_i})(1 - e^{-\lambda t_c})e^{-\lambda t_d}$$

El primer término de la ecuación (4.6) y \mathbf{H} dependen de los tiempos de irradiación, decaimiento y medición, y la relación de constantes de decaimiento. Por lo tanto cuando las vidas medias de los isómeros son iguales también es posible aplicar el método de las rectas utilizando la expresión (4.6).

4.1.2 Análisis paramétrico

La relación entre las constantes de decaimiento, y por lo tanto el signo del parámetro L definido en (4.3), plantea dos situaciones diferentes en el análisis de esa ecuación. Para valores de L positivos (casos 1 y 4 en la clasificación efectuada en la página 88), las curvas que representa la ecuación (4.3) tienen formas similares; parten de 1, tienen un mínimo, y luego tienden asintóticamente a 1. Las figuras 4.1 representan este comportamiento para distintos valores de la relación de constantes de decaimiento L . Si bien al primer término de la ecuación (4.3) no le podemos asignar un sentido físico concreto, se puede afirmar que el mínimo de estas curvas corresponde al punto en que podemos medir el parámetro en mejores condiciones, al ser mínimo el error relativo del parámetro de ajuste para un cierto valor dado del error relativo de las secciones eficaces. Esto ocurre cuando se cumple la relación (4.7), que representa las condiciones óptimas de aplicación del método cuando $\lambda_m > \lambda_f$. La posición del mínimo depende exclusivamente de la relación de constantes de decaimiento, siendo el valor funcional en el mínimo independiente de cualquier parámetro ($2^{-1/2}$, ~ 0.707). Por lo tanto, esta situación de medición óptima es independiente de las secciones eficaces que se quiere determinar.

$$\frac{g\sigma_m}{\sigma_f} = \frac{\lambda_m - \lambda_f}{\lambda_m} \quad (4.7)$$

Para valores de L negativos (casos 2 y 5), las curvas que representa la ecuación (4.3) tienen una singularidad, puntos en que la relación de errores tiende a ∞ (ver figura 4.2). Esta singularidad se produce cuando los parámetros tienen la relación (4.8). En estas situaciones el método de las rectas no es aplicable, pero tampoco lo es en puntos cercanos a la singularidad dado que el valor del error es muy grande.

$$\frac{g\sigma_m}{\sigma_f} = \frac{\lambda_f - \lambda_m}{\lambda_m} \quad (4.8)$$

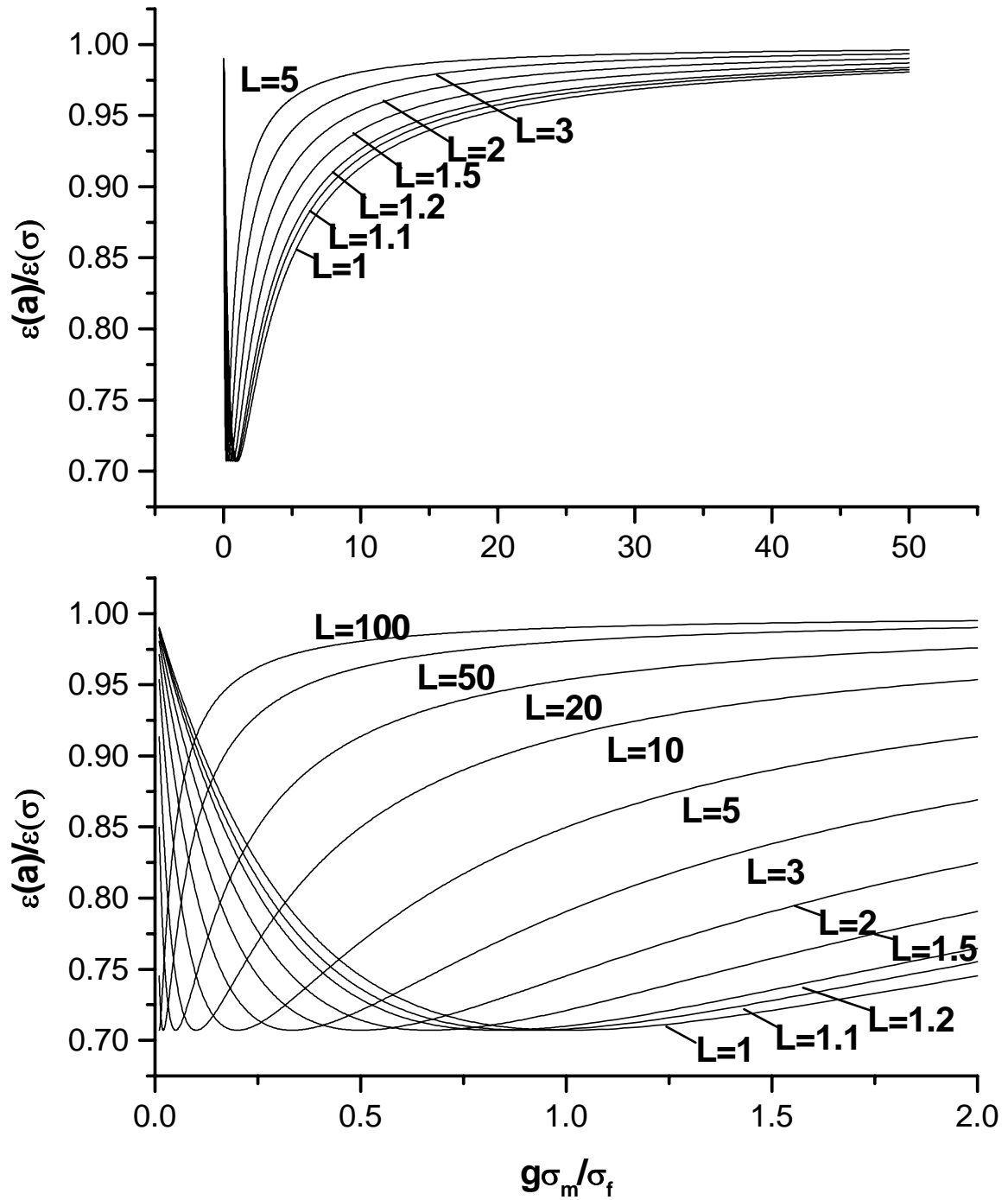


Figura 4.1 Análisis paramétrico del método de las rectas.
Variación del error del parámetro de ajuste **a** en función de la relación
de secciones eficaces.
 $L > 0, \lambda_m > \lambda_f$

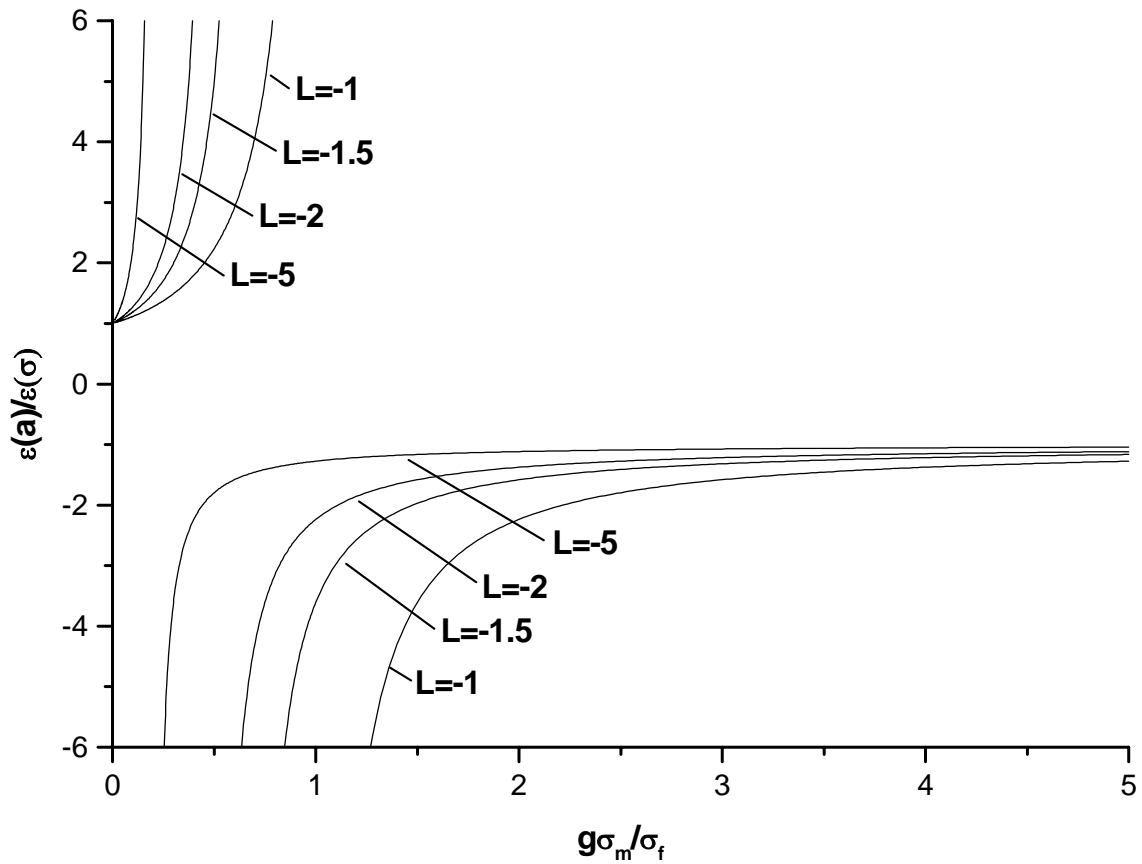


Figura 4.2 Análisis paramétrico del método de las rectas.
Variación del error del parámetro de ajuste **a** en función de la relación
de secciones eficaces.
 $L < 0, \lambda_m < \lambda_f$

Si observamos la ecuación (2.2.11^a), vemos que las situaciones de no aplicabilidad del método de las rectas que establece la relación (4.8) cuando ($\lambda_m < \lambda_f$), y también para puntos de su entorno, se producen cuando el parámetro **a** es 0, o tiene valores muy cercanos a 0. Por lo tanto, al hacer el ajuste de los puntos obtenidos en la medición de la evolución temporal de la emisión γ que estudiamos, obtendremos un valor de **a** cercano a 0, que no será estadísticamente significativo. Este valor será menor que el error en su determinación (recordemos que en la sección 3.2.3 y 3.4.3 se estableció que para que los parámetros de ajuste tengan un valor que se pueda considerar estadísticamente significativo tienen que ser mayores que tres veces el error de su determinación, obteniéndose así estos valores con una confianza de 99.85 %), o tendrá asociada una incerteza tan grande que los valores de sección eficaz que obtengamos serán poco precisos.

Las consideraciones precedentes sólo se refieren al parámetro de ajuste **a**. En principio, aún en los casos en que el análisis del error relativo del parámetro **a** determina que el método no es aplicable, como para los casos en que se cumple la relación (4.8) o en su entorno, podría obtenerse un valor significativo del parámetro de ajuste **b**. Y con él determinar la sección eficaz de producción del estado metaestable (ver ecuación (2.2.12b)). Por lo tanto para completar la evaluación del método es necesario hacer algunas consideraciones sobre el parámetro de ajuste **b**. Como ya se mencionara, **b** depende sólo de la sección eficaz de producción del estado metaestable, y su dependencia es lineal (ver ecuación (2.2.11b)). Esto imposibilita un análisis paramétrico como el que se efectuó en el caso del parámetro **a**, ya que el error relativo del parámetro de ajuste es proporcional al error relativo de la sección eficaz de producción del estado metaestable. Sólo podemos afirmar que en las situaciones en que los parámetros que afectan el valor de **b** determinen que sea pequeño, su determinación a partir del ajuste de los puntos obtenidos en la medición de la evolución temporal de la emisión γ que estudiamos será más pobre, pudiéndose obtener valores de **b** que no son estadísticamente significativos. Esto ocurre cuando el factor T_b , que surge de la ecuación (2.2.11b), (ver ecuación (4.9)) es pequeño.

$$T_b = \frac{y_{m,\gamma}}{y_{f,\gamma}} - \frac{g\lambda_f}{\lambda_m - \lambda_f} \quad (4.9)$$

En muchos casos de pares isoméricos que se encuentran en la naturaleza, $y_{m,\gamma}$ vale 0 y g vale 1, o tiene valores muy cercanos. En estos casos el valor de T_b depende sólo de la relación de constantes de decaimiento de ambos estados isoméricos, y será tanto más pequeño cuanto mayor sea la vida media del estado fundamental respecto del metaestable.

La determinación de la sección eficaz de producción del estado metaestable sólo depende del parámetro de ajuste **b**, lo que implica que su determinación no se ve afectada por el error asociado a la determinación del parámetro **a**, pero la sección eficaz de producción del fundamental depende de ambos parámetros. Por lo tanto si al determinar **b** no obtenemos un valor estadísticamente significativo, o su incerteza es grande, esto se verá reflejado en la determinación de ambas secciones eficaces. En la sección 2.2.4 se dedujo la expresión general de las incertezas de las secciones eficaces determinadas utilizando el método de las rectas (ecuación (2.2.25)). Consideremos ahora la expresión del error de la sección eficaz de producción del estado fundamental sólo en función de los errores de los parámetros de ajuste **a** y **b**.

$$\Delta\sigma_f^* = \sqrt{\Delta^2\mathbf{a} + \left(\frac{g\lambda_m^2 y_{f,\gamma}}{(\lambda_f - \lambda_m)y_{m,\gamma} + \lambda_f g y_{f,\gamma}} \right)^2 \Delta^2\mathbf{b}} \quad (4.10)$$

De acuerdo a la ecuación (4.10), el factor de peso del error del parámetro de ajuste **b** será mayor cuanto más grande sea la vida media del estado fundamental respecto del metaestable en los casos en que $y_{m,\gamma}$ vale 0, lo cual, como ya se mencionó, ocurre en

muchos pares isómericos. Si $y_{m,\gamma}$ no es 0, la misma afirmación es válida si este parámetro es muy pequeño, y se acentúa si el valor absoluto de $(\lambda_f - \lambda_m)y_{m,\gamma}$, que es negativo en las condiciones que planteamos, se aproxima a $\lambda_f g y_{f,\gamma}$, ya que el denominador tiende a 0. Cuando el valor absoluto de $(\lambda_f - \lambda_m)y_{m,\gamma}$ sea mucho mayor que $\lambda_f g y_{f,\gamma}$, el denominador estará dominado por el primer término, y el factor de peso será proporcional a λ_m . O sea, que en términos generales se puede afirmar que la incidencia del error asociado a **b** en la determinación de la incerteza de σ_f , será mayor en las mismas situaciones en que su determinación puede ser pobre, de acuerdo al análisis del factor de la expresión (4.9). Podemos concluir entonces que, a diferencia de lo que observamos cuando la determinación del parámetro **a** tiene errores asociados grandes, cuando la relación de vidas medias y secciones eficaces determine que el parámetro **b** no puede ser determinado, o el error asociado a su determinación es alto, se verá afectada la determinación de la sección eficaz de producción de ambos estados isoméricos.

Tabla 4.1 Evaluación de las condiciones de aplicación del método de las rectas
Resumen

relación de las constantes de decaimiento	¿es posible aplicar el método?	condiciones óptimas
$\lambda_f = \lambda_m$	SI	-
$\lambda_f > \lambda_m$	SI, exceptuando los casos que cumplen $\frac{g\sigma_m}{\sigma_f} = \frac{\lambda_f - \lambda_m}{\lambda_m}$ o que se aproximan a esta relación	$\frac{g\sigma_m}{\sigma_f} \ll \frac{\lambda_f - \lambda_m}{\lambda_m}$ o $\frac{g\sigma_m}{\sigma_f} \gg \frac{\lambda_f - \lambda_m}{\lambda_m}$
$\lambda_f < \lambda_m$	SI	$\frac{g\sigma_m}{\sigma_f} = \frac{\lambda_m - \lambda_f}{\lambda_m} \&$ $\frac{y_{m,\gamma}}{y_{f,\gamma}} - \frac{g\lambda_f}{\lambda_m - \lambda_f} \text{ grande}$

La tabla 4.1 muestra un resumen de las condiciones de aplicabilidad del método de las rectas que surgen del análisis de la expresión funcional de los parámetros de ajuste **a** y **b**. Cabe remarcar que este análisis no considera las condiciones analíticas propias de los casos que se estudian, y sólo plantea las situaciones en que el método es aplicable, o en las que es más potente, en función de la relación entre las secciones eficaces de producción de ambos isómeros y sus vidas medias. Sólo la combinación de las condiciones de aplicabilidad del método y las condiciones analíticas permite un análisis completo de cada situación particular. En la próxima sección se efectuará este análisis para los casos estudiados en este trabajo.

4.2 Evaluación de la aplicación del método de las rectas en los casos estudiados

Los cuatro casos estudiados plantean diferentes situaciones en la aplicación del método. Las reacciones $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$ tienen secciones eficaces de producción relativamente grandes, la vida media del fundamental es mucho mayor que la del metaestable y es posible medirlas utilizando como monitor interno la reacción $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m}$ ($\sigma=111 \pm 3$ mb; Baard et al., 1989), que es la reacción de referencia de todas las determinaciones efectuadas. Las reacciones $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^f$ y $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^m$ tienen secciones eficaces de producción muy pequeñas, la vida media del estado fundamental es mayor que la del metaestable pero la diferencia es chica, y es posible utilizar como monitor interno la reacción $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$ como control pero los resultados finales se refieren al monitor de níquel. Las reacciones $^{46}\text{Sc}(n,2n)^{45}\text{Sc}^f$ y $^{46}\text{Sc}(n,2n)^{45}\text{Sc}^m$ se producen con secciones eficaces relativamente grandes, y la vida media del estado fundamental es mucho menor que la del metaestable. Por último, para estudiar las reacciones $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$ y $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$, cuyas secciones eficaces son relativamente pequeñas y la relación de vidas medias de los isómeros es similar a la del caso del ^{58}Ni , es necesario estudiar una emisión asociada al decaimiento del $^{89}\text{Y}^m$, que no es una emisión instantánea, y por lo tanto es necesario modificar las ecuaciones deducidas para el caso general. Apliquemos las consideraciones de la sección anterior a los casos estudiados.

1. Las reacciones $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$ se analizaron en las mejores condiciones analíticas de los cuatro casos estudiados. Se miden con un monitor interno, $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m}$, con la misma emisión de las reacciones que estudiamos; 811 keV. Las áreas medidas tienen errores asociados muy pequeños debido a que las secciones eficaces de producción de ambos isómeros son grandes, al igual que la fracción de producción de la emisión de 811 keV. Como se puede ver en la figura 3.1.1, las condiciones analíticas permiten que las variables X e Y tengan un excelente comportamiento lineal en un rango de variación muy amplio, $[3 \times 10^{-5}, 7 \times 10^{-2}]$ en el caso de la variable X, lo que permite que el factor de correlación del ajuste lineal sea el mejor de los casos estudiados; $\rho=0.99995$ (ver tabla 3.1.2). En el estudio del error relativo del parámetro de ajuste **a**, este caso corresponde al grupo 1, siendo $L \approx 1$ (ver tabla 4.2). La relación de vidas medias y secciones eficaces determina que este ejemplo se ubique muy cerca de la situación óptima, cerca del mínimo de las curvas que se muestran en la figura 4.1. Este mínimo corresponde al punto 0.707, mientras que la relación de secciones eficaces en este caso es 0.75 (ver tabla 4.2). Los aspectos considerados determinan que el parámetro de ajuste **a** que surge de las mediciones tenga una incerteza muy pequeña, del 0.15 % (ver tabla 4.2), la menor de los cuatro casos estudiados. Sin embargo las condiciones de determinación del parámetro de ajuste **b** están lejos de ser óptimas, por ser el valor del factor T_b muy chico (ver tabla 4.2). Las excelentes condiciones analíticas y de determinación del parámetro **a** hacen que, aún en estas condiciones desfavorables, el parámetro **b** se obtenga con una incerteza pequeña. Pero su error relativo es 10 veces superior al de **a**., siendo, junto a la incerteza de la sección eficaz del monitor, el principal aporte a la incerteza en la determinación de ambas secciones eficaces.

Conclusión: en el caso de las reacciones $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$ el método de las rectas plantea a priori muy buenas condiciones para la determinación del parámetro

de ajuste **a**, malas para la determinación del parámetro **b**, y excelentes condiciones analíticas, lo que posibilita la determinación de las secciones eficaces de producción de ambos isómeros con bajas incertezas, asociadas en su mayor parte al error en la sección eficaz del monitor.

Tabla 4.2 Evaluación de las condiciones de aplicación del método de las rectas
Parámetros de las reacciones estudiadas

reacción	$\lambda_m/(\lambda_m-\lambda_f)$	$g\sigma_m/\sigma_f$	$\varepsilon(a)/\varepsilon(\sigma)^a$	$\varepsilon(a)^b$	T_b^c	$\varepsilon(b)^b$
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^{f+m}$	1.00155	2.04 ^d	0.75	0.0015	0.00541	0.013
$^{54}\text{Fe}(n,2n)^{54}\text{Fe}^{f+m}$	1.422	0.456 ^d	0.72	0.04	0.422	0.29
$^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^{f+m}$	-0.01783	0.804 ^d	1.015	0.02	-0.0590	0.12
$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^{f+m}$	1.00089	0.127 ^e	0.89	0.005	0.00207	0.5

^a Ver ecuación 4.3

^b Valores típicos de las determinaciones de cada caso

^c Ver ecuación 4.7

^d Determinaciones efectuadas con el método de las rectas (ver capítulo 3)

^e Determinaciones directas (ver capítulo 3)

- Las reacciones $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$ y $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$ tienen características similares a las reacciones del ^{58}Ni comentadas en el párrafo precedente. En el estudio del error relativo del parámetro de ajuste **a**, este caso corresponde al grupo 1, siendo $L \approx 1$ (ver tabla 4.2), pero a diferencia del caso anterior, la relación de secciones eficaces lo ubica mas alejado del mínimo de las curvas de la figura 4.1. Por otra parte, las condiciones analíticas no son muy favorables (ver sección 3.4). Si bien las condiciones de determinación del parámetro de ajuste **a** no son las óptimas, no están muy alejadas de ese punto, y se obtuvo el parámetro **a** con una incerteza de 0.5 % y una muy buena correlación lineal; $\rho=0.9997$. Pero la diferencia más notable con el caso anterior se encuentra en la determinación del parámetro **b**. El factor T_b es menor aún que en el caso de los isómeros del ^{58}Co , siendo el más pequeño de los cuatro casos estudiados (ver tabla 4.2). Esto, sumado a que las condiciones analíticas no son favorables, y a que las condiciones de determinación de **a** no sean óptimas, determina que en el ajuste de las mediciones no obtengamos un valor de **b** estadísticamente significativo. Los valores obtenidos son menores que dos veces su error (ver tabla 3.4.4), y por lo tanto no cumplen con la condición establecida de que superen tres veces su error para que puedan ser considerados estadísticamente significativos. Si aún así calculamos la sección eficaz de producción del estado metaestable con los valores de **b** determinados, obtenemos valores con errores muy altos e inconsistentes con las determinaciones directas efectuadas (ver tabla 3.4.5). Si continuamos con la aplicación de la metodología que estudiamos, vemos que también en la determinación de σ_f obtenemos valores con errores altos e inconsistentes con las determinaciones directas (ver tabla 3.4.5) y con las efectuadas por otros autores (ver tabla 3.4.6). Esto se explica porque, como se mencionara en párrafos anteriores, aún cuando la determinación del parámetro **a** se obtiene con un error pequeño y una muy buena correlación lineal, la relación de vidas medias de los isómeros determina que la incidencia del error asociado a **b** también sea determinante en el cálculo de σ_f .

Conclusión: en el caso de las reacciones $^{90}\text{Zr}(\text{n},2\text{n})^{89}\text{Zr}^{\text{f}}$ y $^{90}\text{Zr}(\text{n},2\text{n})^{89}\text{Zr}^{\text{m}}$ el método de las rectas plantea a priori buenas condiciones para la determinación del parámetro de ajuste **a**, que se reflejan en una determinación con bajos errores y buena correlación lineal, pero muy malas para la determinación del parámetro **b**, lo que determina que aún cuando las condiciones analíticas son buenas no sea posible obtener un valor estadísticamente significativo, imposibilitando así la determinación de las secciones eficaces. Por lo tanto, en este caso el método no es aplicable.

3. Las reacciones $^{54}\text{Fe}(\text{n},2\text{n})^{53}\text{Fe}^{\text{f}}$ y $^{54}\text{Fe}(\text{n},2\text{n})^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$ tienen características diferentes a los dos casos ya analizados. Las principales dificultades para su estudio se encuentran en las condiciones analíticas. Como se expuso en la sección 3.2, es necesario analizar un material enriquecido en el isótopo de interés, obteniéndose aún así áreas muy pequeñas, que hicieron necesario combinar los resultados de ocho irradiaciones, con un total de 39 puntos, para obtener condiciones razonables para el ajuste lineal. Estas dificultades analíticas se reflejan en los grandes errores de los puntos obtenidos y en su alta dispersión (ver figura 3.2.1), por lo cual se obtuvo el menor coeficiente de correlación lineal de los cuatro casos estudiados; 0.94. En contraposición con las condiciones analíticas, el estudio del error relativo de los parámetros de ajuste **a** y **b** determina que de los cuatro casos estudiados este es el que plantea condiciones más favorables, y por lo tanto el caso en el que el método de las rectas es más potente. En efecto, la relación de secciones eficaces hace que este sea el caso que más se acerca al mínimo de las curvas de la figura 4.1 en el análisis del error del parámetro **a** (el mínimo ocurre en 0.707 mientras que la relación de secciones eficaces es 0.72; ver tabla 4.2), mientras que el factor T_b es el mayor de los cuatro casos estudiados (ver tabla 4.2). Ambos aspectos hicieron que fuera posible la determinación de las secciones eficaces de producción de ambos isómeros en las condiciones analíticas desventajosas ya mencionadas. En este caso el método de las rectas permite medir la sección eficaz de producción del estado metaestable aunque con el método directo, que en este caso puede aplicarse en condiciones analíticas similares, no es posible su medición (ver sección 3.2).

Conclusión: en el caso de las reacciones $^{54}\text{Fe}(\text{n},2\text{n})^{53}\text{Fe}^{\text{f}}$ y $^{54}\text{Fe}(\text{n},2\text{n})^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$ el método de las rectas se aplica en condiciones óptimas, lo que permite determinar secciones eficaces muy pequeñas, de 1 μb en el caso de la producción del fundamental y menor a 1 μb en el caso del metaestable (ver tabla 3.2.5), en condiciones analíticas desfavorables. Este ejemplo muestra que en estas condiciones el método de las rectas hace posible la determinación de la sección eficaz de producción del estado metaestable, aún cuando con la aplicación del método directo, que en este caso es posible en condiciones analíticas similares, no se obtienen resultados.

4. Las reacciones $^{46}\text{Sc}(\text{n},2\text{n})^{45}\text{Sc}^{\text{f}}$ y $^{46}\text{Sc}(\text{n},2\text{n})^{45}\text{Sc}^{\text{m}}$ plantean el único caso de los estudiados en que la vida media del estado metaestable es mayor que la del fundamental. Este caso se ubica en el grupo 2, con un valor de L negativo cercano a 0 (ver tabla 4.2). El estudio del error relativo de los parámetros de ajuste **a** y **b** ubica este caso alejado tanto de las situaciones óptimas como de la no aplicabilidad del método. El factor T_b tiene un valor intermedio entre el óptimo del caso de los isómeros del ^{53}Fe y

los productos del ^{58}Ni y ^{90}Zr (ver tabla 4.2), mientras que el análisis del parámetro de ajuste **a** ubica el caso alejado de las singularidades (ver figura 4.2) y cercano al valor mínimo de error relativo, que para la condición $\lambda_f > \lambda_m$ es 1 (ver tabla 4.2). Las condiciones analíticas plantean dificultades asociadas a la determinación de la emisión de interés en un espectro dominado por las emisiones asociadas al decaimiento del ^{46}Sc , y por la interferencia de la activación de las impurezas de Ta. Al igual que en el estudio de la reacción del ^{54}Fe se efectuó, el ajuste lineal agrupando los puntos obtenidos en varias irradiaciones, pero en este caso los puntos muestran una dispersión menor (ver figura 3.3.1), obteniéndose un coeficiente de correlación lineal mayor; $\rho=0.997$. Por lo tanto podemos considerar que desde el punto de vista de las condiciones analíticas este ejemplo se ubica en una situación intermedia respecto de los anteriores. Los resultados obtenidos reflejan estas consideraciones, determinándose los parámetros de ajuste con incertezas relativas intermedias entre el caso del ^{54}Fe y el ^{58}Ni (ver tabla 4.2).

Conclusión: en el caso de las reacciones $^{46}\text{Sc}(n,2n)^{45}\text{Sc}^f$ y $^{46}\text{Sc}(n,2n)^{45}\text{Sc}^m$ el método de las rectas es aplicable pero en condiciones alejadas de las óptimas. Las condiciones analíticas tampoco son las óptimas, y la combinación de estos factores hace que sea posible determinar las secciones eficaces de producción de ambos isómeros, pero con una alta incidencia de los errores asociados a los parámetros de ajuste en la determinación de la incerteza total de los parámetros medidos.

5. Resumen y conclusiones

En este trabajo se ha desarrollado una metodología de cálculo, el método de las rectas, que permite determinar simultáneamente las secciones eficaces de producción de dos estados isoméricos midiendo la evolución temporal de la emisión γ asociada al decaimiento del estado fundamental (el método también contempla la posibilidad de que el decaimiento del estado metaestable genere la misma emisión). Con las mediciones de la emisión γ que se estudia, efectuadas con diferentes tiempos de decaimiento, y los tiempos de irradiación, decaimiento y medición, se calculan dos variables que tienen una relación lineal. Estas variables, por lo tanto, pueden ajustarse por una recta, obteniéndose dos parámetros de ajuste que están relacionados con las secciones eficaces de producción de cada isómero de la reacción que se estudia. En la sección 2.2 se dedujeron las ecuaciones en que se sustenta el método, siendo la expresión general de la relación lineal entre los factores de tiempo y los diferentes parámetros

$$\frac{\mathbf{A}_{T,\gamma}}{\mathbf{y}_{f,\gamma} \mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma} \mathbf{N}_B \phi \mathbf{F}_m} = \left(\sigma_f + \frac{\mathbf{g} \sigma_m \lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f} \right) \frac{\mathbf{F}_f}{\lambda_f \mathbf{F}_m} + \left(\frac{\mathbf{y}_{m,\gamma}}{\mathbf{y}_{f,\gamma}} - \frac{\mathbf{g} \lambda_f}{\lambda_m - \lambda_f} \right) \frac{\sigma_m}{\lambda_m}$$

Con esta expresión podemos efectuar la parametrización mencionada, definiendo dos variables X e Y, que dependen de los tiempos de irradiación, decaimiento y medición, y del área de emisión γ que estudiamos.

$$\mathbf{X} = \frac{\mathbf{F}_f}{\lambda_f \mathbf{F}_m} \quad \text{y} \quad \mathbf{Y} = \frac{\mathbf{A}_{T,\gamma}}{\mathbf{F}_m}$$

Estas variables se ajustan con una función lineal, obteniéndose así a partir de las mediciones realizadas el valor de dos parámetros **a** y **b** que nos permiten obtener las secciones eficaces de producción de los isómeros que estudiamos.

$$\mathbf{a} = \mathbf{y}_{f,\gamma} \mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma} \mathbf{N}_B \phi \left(\sigma_f + \frac{\mathbf{g} \sigma_m \lambda_m}{\lambda_m - \lambda_f} \right) \quad \text{y} \quad \mathbf{b} = \mathbf{y}_{f,\gamma} \mathbf{E} \mathbf{f}_{\gamma} \mathbf{N}_B \phi \left(\frac{\mathbf{y}_{m,\gamma}}{\mathbf{y}_{f,\gamma}} - \frac{\mathbf{g} \lambda_f}{\lambda_m - \lambda_f} \right) \frac{\sigma_m}{\lambda_m}$$

La deducción de las ecuaciones se efectuó considerando reacciones con neutrones, debido a que en este trabajo se aplicó el método de las rectas al estudio de reacciones de este tipo. Sin embargo, la metodología es aplicable a cualquier reacción nuclear que genere dos isómeros, sin importar la energía o el tipo de partícula incidente. Las ecuaciones en la que se basa la parametrización lineal que da sustento al método, es independiente de la partícula incidente o de su energía, y sólo será necesario definir el parámetro ϕ de acuerdo a la reacción que se estudie, determinándolo experimentalmente en forma adecuada, eligiendo a su vez una sección eficaz de referencia pertinente.

La principal ventaja que plantea el método de las rectas respecto de los usuales se encuentra en que, al no ser necesario medir emisiones asociadas al decaimiento del estado metaestable, permite la determinación de su sección eficaz de producción aunque no tenga emisiones γ asociadas a su decaimiento. O también si, teniendo emisiones γ , su medición es pobre por ser pequeña su producción o por plantear dificultades analíticas. Debido a que en el método de las rectas no es necesario establecer condiciones experimentales que dependen de los valores relativos de las vidas medias de los estados fundamental y metaestable, es posible por este método determinar la sección eficaz de producción del estado fundamental aun en los casos en que las vidas medias de ambos estados no difieren sustancialmente; o sea en aquellos casos en que no es lícito considerar que uno de los estados a decaído completamente. Empleando el método directo en los casos en que la vida media del estado fundamental es mucho mayor que la del metaestable sólo es posible determinar la sección eficaz de la reacción suma de la producción de ambos estados, pero para determinar la de producción del fundamental es necesario conocer la del metaestable. Aplicando el método de las rectas es posible determinar la sección eficaz de producción de ambos estados sin esta última condición.

La principal limitación del método la encontramos en la necesidad de que las condiciones analíticas permitan medir la emisión γ que estudiamos con diferentes tiempos de decaimiento. Por ejemplo, en dos de los casos estudiados en este trabajo sólo se consiguieron estas condiciones estudiando materiales enriquecidos en el isótopo que genera la reacción que analizamos. Estas limitaciones están asociadas a la facilidad de irradiación y al sistema de medición que empleamos, y a los parámetros nucleares del caso que analizamos. Por otra parte, de una primera aproximación al análisis de las ecuaciones en que se sustenta el método surge que hay un conjunto de condiciones en que el método no es aplicable, o su aplicación conlleva errores muy grandes, mientras que otro conjunto de condiciones resultan óptimas para la aplicación del método de las rectas. En la sección 4.1 se efectuó este análisis, y en la tabla 4.1 se muestra un resumen de los resultados. En relación a este análisis, se observa otra ventaja del método que estudiamos. En el caso de las reacciones $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^f$ y $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^m$, en que la relación de vidas medias y secciones eficaces lo ubica cercano a las condiciones óptimas de aplicación, el método de las rectas permitió determinar la sección eficaz de producción del estado metaestable, mientras que las emisiones asociadas a su decaimiento no fueron detectadas, aún cuando se producen en condiciones analíticas similares a las de la emisión que estudiamos para aplicar el método de las rectas. Por lo tanto en este caso el método de las rectas permite un mejor umbral de medición de la sección eficaz de producción del estado metaestable que la medición directa.

El método de las rectas se utilizó en la determinación de la sección eficaz de producción de pares isoméricos generados en reacciones umbral con neutrones,

promediadas en flujo de fisión térmica de ^{235}U . Las determinaciones se efectuaron utilizando como monitor de flujo la reacción $^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{f+m}}$ ($\sigma=111 \pm 3$ mb; Baard et al., 1989). Los casos estudiados plantean diferentes situaciones en la aplicación del método, tanto en las condiciones analíticas como en las condiciones de aplicación del método. La tabla 5.1 muestra un resumen de las reacciones estudiadas y de las condiciones de aplicación del método. Las reacciones $^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{f}}$ y $^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{m}}$ tienen secciones eficaces de producción relativamente grandes, y la vida media del fundamental es mucho mayor que la del metaestable. Es posible medir las secciones eficaces de producción de estas reacciones utilizando el monitor de flujo elegido, $^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{f+m}}$, como monitor interno. El análisis de las posibilidades de aplicación del método de las rectas en este muestra muy buenas condiciones para la determinación del parámetro de ajuste **a**, y malas para la determinación del parámetro **b**. La combinación de ambos aspectos de la experiencia posibilitó la determinación de las secciones eficaces de producción de ambos isómeros con bajas incertezas, asociadas en su mayor parte al error en la sección eficaz del monitor de flujo. Las reacciones $^{54}\text{Fe}(\text{n,2n})^{53}\text{Fe}^{\text{f}}$ y $^{54}\text{Fe}(\text{n,2n})^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$ tienen secciones eficaces de producción muy pequeñas, la vida media del estado fundamental es mayor que la del metaestable pero la diferencia es chica, y es posible utilizar como monitor interno la reacción $^{54}\text{Fe}(\text{n,p})^{54}\text{Mn}$ como control. Las principales dificultades para su estudio se encuentran en las condiciones analíticas, pero el método de las rectas se aplica en condiciones muy cercanas a las óptimas, lo que permite determinar secciones eficaces muy pequeñas, de 1 μb en el caso de la producción del fundamental y menor a 1 μb en el caso del metaestable. Y, como ya se mencionó, la utilización del método de las rectas hace posible la determinación de la sección eficaz de producción del estado metaestable, aún cuando con la aplicación del método directo, que en este caso es posible en condiciones analíticas similares, no se obtienen resultados.

Tabla 5.1 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de ^{235}U
Condiciones de aplicación del método de las rectas en los casos estudiados^a

Reacciones	Condiciones analíticas	Condiciones de aplicación del método	
		parámetro a	parámetro b
$^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{f}}$ y $^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{m}}$	muy buenas	muy buenas	malas
$^{54}\text{Fe}(\text{n,2n})^{53}\text{Fe}^{\text{f}}$ y $^{54}\text{Fe}(\text{n,2n})^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$	muy malas	muy buenas	muy buenas
$^{45}\text{Sc}(\text{n,2n})^{44}\text{Sc}^{\text{f}}$ y $^{45}\text{Sc}(\text{n,2n})^{44}\text{Sc}^{\text{m}}$	malas	malas	buenas
$^{90}\text{Zr}(\text{n,2n})^{89}\text{Zr}^{\text{f}}$ y $^{90}\text{Zr}(\text{n,2n})^{89}\text{Zr}^{\text{f+m}}$	buenas	buenas	muy malas

^a Para la evaluación de las condiciones de aplicación del método en cada caso se establece una gradación de 4 valores, de muy malas a muy buenas, de acuerdo a la evaluación de la sección 4.2. La clasificación de cada caso no obedece a criterios rigurosos, sólo se establece en base a consideraciones generales.

Las reacciones $^{46}\text{Sc}(n,2n)^{45}\text{Sc}^f$ y $^{46}\text{Sc}(n,2n)^{45}\text{Sc}^m$ se producen con secciones eficaces relativamente grandes, y la vida media del estado fundamental es mucho menor que la del metaestable. El análisis de la aplicación del método de las rectas ubica este caso alejado tanto de las situaciones óptimas como de la no aplicabilidad del método, mientras que las condiciones analíticas plantean algunas dificultades. La combinación de estos factores hace que sea posible determinar las secciones eficaces de producción de ambos isómeros utilizando el método de las rectas, pero con una alta incidencia de los errores asociados a los parámetros de ajuste en la determinación de la incerteza total de los parámetros medidos. En este caso es posible determinar en forma directa la sección eficaz de producción del estado metaestable, siendo este valor consistente con el obtenido con el método de las rectas. Las reacciones $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^f$ y $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}^m$ tienen secciones eficaces de producción relativamente pequeñas y la relación de vidas medias de los isómeros es similar a la del caso del ^{58}Ni . Este caso plantea una ampliación en la aplicación del método de las rectas de las condiciones establecidas. En efecto, en este caso es necesario estudiar una emisión asociada al decaimiento del $^{89}\text{Y}^m$, que no es una emisión instantánea, y por lo tanto es necesario modificar las ecuaciones deducidas para el caso general. El estudio paramétrico muestra que el método se puede aplicar en buenas condiciones para determinar el parámetro **a**, pero son muy malas en el caso del parámetro **b**, lo que determina que aún cuando las condiciones analíticas son buenas no sea posible obtener un valor estadísticamente significativo, imposibilitando así la determinación de las secciones eficaces. Por lo tanto, en este caso el método de las rectas no es aplicable. Por otra parte, es posible determinar en forma directa tanto la sección eficaz de producción del estado metaestable como la suma de las secciones eficaces de producción de ambos estados, y a partir de estos valores la sección eficaz del fundamental.

Los valores de secciones eficaces promediadas en espectro de fisión térmica de ^{235}U obtenidos en este trabajo aplicando el método de las rectas constituyen un nuevo aporte al conocimiento de estos parámetros nucleares. Las determinaciones de las secciones eficaces de las reacciones $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^m$, $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^f$, $^{54}\text{Fe}(n,2n)^{53}\text{Fe}^m$, $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^f$ y $^{45}\text{Sc}(n,2n)^{44}\text{Sc}^m$ son, en nuestro conocimiento, las primeras que se efectúan. La medición directa de la sección eficaz de la reacción $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}^f$ tiene tres antecedentes, pero la medición que se expone en este trabajo, consistente con el antecedente más reciente, tiene un error asociado significativamente menor, constituyéndose en una mejora importante en su conocimiento. Las determinaciones directas de las secciones eficaces del ^{90}Zr aportan nuevos datos de reacciones que han sido estudiadas por varios autores, pero cuyos resultados muestran gran dispersión. La tabla 5.2 muestra un resumen de las determinaciones efectuadas.

Tabla 5.2 Determinación de las secciones eficaces promedio en flujo de fisión de ^{235}U realizadas
Resultados

Reacción	Determinación directa	Método de las rectas
$^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{f}}$	-	$74.8 \pm 2.3 \text{ mb}$
$^{58}\text{Ni}(\text{n,p})^{58}\text{Co}^{\text{m}}$	-	$36.6 \pm 1.2 \text{ mb}$
$^{54}\text{Fe}(\text{n,2n})^{53}\text{Fe}^{\text{f}}$	-	$1.14 \pm 0.13 \mu\text{b}$
$^{54}\text{Fe}(\text{n,2n})^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$	$< 1 \mu\text{b}$	$0.52 \pm 0.16 \mu\text{b}$
$^{45}\text{Sc}(\text{n,2n})^{44}\text{Sc}^{\text{f}}$	-	$27.3 \pm 1.3 \text{ mb}$
$^{45}\text{Sc}(\text{n,2n})^{44}\text{Sc}^{\text{m}}$	$19.9 \pm 3.0 \mu\text{b}$	$22.0 \pm 2.7 \text{ mb}$
$^{90}\text{Zr}(\text{n,2n})^{89}\text{Zr}^{\text{f}}$	$105.8 \pm 3.4 \mu\text{b}$	-
$^{90}\text{Zr}(\text{n,2n})^{89}\text{Zr}^{\text{m}}$	$13.86 \pm 0.40 \mu\text{b}$	-
$^{90}\text{Zr}(\text{n,2n})^{89}\text{Zr}^{\text{f+m}}$	$119.6 \pm 3.4 \mu\text{b}$	-

Referencias

Arribére M.A. (1986) *Caracterización de un detector de Germanio Hiperpuro, HPGe, para fuentes puntuales, cilíndricas y en forma de disco*. Trabajo Especial. Instituto Balseiro, Comisión Nacional de Energía Atómica y Universidad Nacional de Cuyo, Bariloche, Argentina.

Arribére M.A. (1997) “Determinación de secciones eficaces promediadas sobre un espectro de fisión para reacciones umbral inducidas sobre elementos livianos. Estudio de su importancia analítica.” Tesis Doctoral. Instituto Balseiro, Comisión Nacional de Energía Atómica y Universidad Nacional de Cuyo, Bariloche, Argentina.

Arribére, M. A., Ribeiro Guevara, S., Suárez, P. M., and Kestelman, A. J. (2001) “Threshold reaction cross sections of Nickel isotopes, averaged over a ^{235}U fission neutron spectrum.” *Nucl. Sci. Eng*: 139, 1-9.

Baard J.H., Zijp W.L. and Nolthenius H.J. (1989) *Nuclear data guide for reactor metrology*, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands.

Beckurtz K.H. and Wirtz K. (1964) *Neutron Physics*, Springer-Verlag, Berlin.

Boldeman J.W., (1964) Fission spectrum averaged cross sections of threshold reactions, *J. Nucl. Energy A/B*, 18, 417.

Bowler, M.G., (1973) *Nuclear Physics*, Pergamon Press, Oxford.

Brodskaja, A. K., Ivanova, N. I., Nasyrow. F. KH. (1985) Fission neutron spectra averaged cross-sections on (n, α), (n,p), (n,2n), (n,n') reactions for some elements. EXFOR 40319.008

Bychkov, V. M., Zolotarev, K. I., Pashchenko, A. B., and Plyaskin, V. I. (1982) “Establishment of the BOSFOR-80 Machine Library of Evaluated Threshold Reaction Cross-Sections and its Testing by Means of Integral Experiments”, INDC(CCP)-183/L 8, International Atomic Energy Agency.

Burcham, W.E. (1979) *Elements of Nuclear Physics*, Longman Inc., New York.

Calamand A. (1974) Cross sections for the fission neutron spectrum induced reactions, in: *Handbook on nuclear activation cross sections*, p.273, IAEA Technical Report Series no. 156, International Atomic Energy Agency.

Cohen, B.L. (1971) *Concepts of Nuclear Physics*, McGraw-Hill Book Company

- Cranberg** L. (1956) Fission Neutron spectrum of ^{235}U , *Phys. Rev.*, 103, 662.
- Debertin** K. and Helmer R.G. (1988) *Gamma- and X-ray Spectrometry with semiconductor detectors*. Elsevier Science Publishers B.V., Amsterdam, The Netherlands.
- EG-G**. Systems applications studies; PSD N° 17 “The minimum detectable activity concept”.
- ENSDF**, 1997. Información extraída de la base de datos ENSDF, actualizada a marzo de 1997.
- Evans**, D. R. (1955) *The Atomic Nucleus*, Mc.Graw-Hill Book Company, Inc.
- Firestone**, R.B. (1996) *Table of isotopes*, Volume I and II, John Wiley & Sons, New York, USA, Eighth Edition.
- GANAA**S (1991) Nuclear Analysis Software, Part 2: Gamma Spectrum Analysis, Activity Calculations and Neutron Activation Analysis, IAEA/CMS/3, International Atomic Energy Agency, Vienna.
- Grigor’ev** E.I., Melekhin, YU. A., Troshin, V. S., and Yoryna, V. P. (1999) Measurement and evaluation of the averaged reaction cross-sections for $^{64}\text{Zn}(n,p)^{64}\text{Cu}$, $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}$, $^{111}\text{Cd}(n,n')^{111}\text{Cd}^m$ for ^{235}U fission spectrum. EXFOR 41052.003.
- Grundl** J.A. (1968) A study of fission-neutron spectra with high-energy activation detectors. Part II: Fission Spectra, *Nucl. Sci. Eng.*, 31, 191.
- Grundl** J.A. and Eisenhauer C.M. (1975) Fission spectrum neutrons for cross section validation and neutron flux transfer, *Proc. Conf. Nuclear Cross Sections and Technology*, Washington, NBS Special Publication 425, Vol. 1., 250.
- Grundl** J.A. and Eisenhauer C.M. (1977) Fission rate measurements for materials neutron dosimetry in reactor environments, *1st ASTM-EURATOM Symposium on Reactor Dosimetry*, Proc. Symp. Petten, 1975, Report EUR 5667 e/f, Part I, p. 425-454, (CEC, Luxemburg, 1977).
- Gunnink** R. and Niday J.B. (1976) A working model for Ge(Li) detector counting efficiencies, *Proc. ERDA X- and Gamma- Ray Symposium*, Ann Arbor, MI, USA.
- Horibe** O. (1983) A new empirical rule for the estimation of the fission neutron spectrum averaged cross sections of the (n,p) and (n, α) reactions, *Ann. Nucl. Energy*, Vol.7, 359.
- Kaplan**, I., (1962) *Nuclear Physics*, Addison-Wesley Publishing Company
- Kobayashi** K. and Kobayashi T. (1990) Measurements of ^{235}U fission spectrum averaged cross sections for some threshold reactions, *NEA Nuclear Data Committee Report (J)*, 155,52.

Leachman, R.B. (1956) Determination of fission quantities of importance to reactors, Peaceful Uses of Atomic Energy, Proc. Int. Conf., Geneva, 1955, Vol. 2, 193.

Magurno, B.A., Kinsey, R.R., and Scheffel, F.M. (1982) Guidebook for the ENDF/B-V Nuclear Data Files, Report EPRI-NP-2510, BNL-NCS-31451, ENDF 328, (EPRI, Palo Alto, 1982).

Maidana, N. L., Días, M. S., and Geraldo, L. P. (1996) Measurements of U-235 fission neutron spectrum averaged cross sections for threshold reactions. EXFOR 31458.013

Mannhart W. (1985) Spectrum averaged cross sections in the ^{235}U fission-neutron field in MOL, *Proc. 5th ASTM-EURATOM Symp. on Reactor Dosimetry*, Geesthacht, FRG, 1984, J.P Genthon and H. Rottger (eds.), (2) 813.

Martin W.H. and Claire D.M., (1964) Determination of fast-neutron dose by nickel activation, *Nucl. Sci. Eng.*, **18** 468.

Mellish C.E., Payne J.A., and Otlet R.L., (1957) “*Proc. Int. Conf. on Radioisotopes in Scientific Research*”, Paris, Pergamon Press, London quoted by Rochlin, Ref. 15.

Mughabghab S.F., Divadeenam, and Holden N.E., (1981) *Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections. Vol. I, Part A, Z=1-60*, Academic Press, New York.

Passell T.O. and Heath R.L., (1961) “Cross sections of threshold reactions for fission neutrons: nickel as a fast flux monitor”, *Nucl. Sci. Eng.*, **10** 308.

Pfennig, G., Klewe-Nebenius, H., and Seelmann-Eggebert, W. (1995) *Karlsruher Nuklidkarte*, Institut für Radiochemie, Forschungszentrum karlsruhe GmbH

Plotts P.J. and Thorpe W. (1984) A simple method of estimating the position of a germanium gamma-ray detector crystal within its spectrometer housing using common gamma-ray calibration sources requiring the suppression of coincidence summing losses, *Nucl. Instr. and Meth.* 227, 97.

Qaim, S. M., Woelfle, R., Stuecklin, G. (1976) Activation cross sections of fast neutron induced nuclear reactions. EXFOR 20554.010

Ribeiro Guevara, S., y Kestelman, A. J. (1993a) Obtención de una expresión analítica de la eficiencia del detector HPGe de AAN y evaluación de su error. Informe interno del Laboratorio de Análisis por Activación Neutrónica, Centro Atómico Bariloche, Comisión Nacional de Energía Atómica.

Ribeiro Guevara, S., y Kestelman, A. J. (1993b) Obtención de una expresión analítica de la eficiencia del detector HPGe de AAN y evaluación de su error: mediciones con y sin absorbente de Pb. Informe interno del Laboratorio de Análisis por Activación Neutrónica, Centro Atómico Bariloche, Comisión Nacional de Energía Atómica.

Rinard, P.M. and Goldman, A. (1988) A Curve-Fitting Package for Personal Computers, Report LA-11082-MS, Rev.1, Los Alamos National Laboratory

Suárez, P.M., Ribeiro Guevara S. y Kestelman A.J. (1994) “Medición de la sección eficaz promedio para la reacción $^{58}\text{Ni}(n, np+pn+d)^{57}\text{Co}$ para el espectro de fisión de U-235”, *Actas 79^o Reunión de la Asociación Física Argentina*, Córdoba, Argentina.

Suárez, P. (1997) “Estudio del espectro de neutrones de fisión del ^{235}U a través del conocimiento de secciones eficaces promediadas sobre dicho espectro.” Tesis Doctoral. Instituto Balseiro, Comisión Nacional de Energía Atómica y Universidad Nacional de Cuyo, Bariloche, Argentina.

Suárez, P. M., Arribére, M. A., Ribeiro Guevara, S., and Kestelman, A. J. (1997) “Experimental and calculated scandium threshold reactor cross sections averaged over a ^{235}U fission neutron spectrum”, *Nucl. Sci. Eng.*, 127, 245-261.

Tuli, K.J. (1995) *Nuclear Wallet Cards*, National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, Fifth edition.

Tuli, K.J. (2000) *Nuclear Wallet Cards*, National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, Sixth edition.

Watt B.E. (1952) Energy spectrum of neutrons from thermal fission of ^{235}U , *Phys. Rev.* 87, 1037.

Wood J. (1973) The fission neutron spectrum of ^{235}U , *J. Nucl. En.*, 27, 591.