

Tesis Doctoral

Estudio de reacciones nucleares inducidas por neutrones sobre germanio. Determinación, trazabilidad y aplicaciones de los datos nucleares

Furnari, Juan Carlos

2012

Este documento forma parte de la colección de tesis doctorales y de maestría de la Biblioteca Central Dr. Luis Federico Leloir, disponible en digital.bl.fcen.uba.ar. Su utilización debe ser acompañada por la cita bibliográfica con reconocimiento de la fuente.

This document is part of the doctoral theses collection of the Central Library Dr. Luis Federico Leloir, available in digital.bl.fcen.uba.ar. It should be used accompanied by the corresponding citation acknowledging the source.

Cita tipo APA:

Furnari, Juan Carlos. (2012). Estudio de reacciones nucleares inducidas por neutrones sobre germanio. Determinación, trazabilidad y aplicaciones de los datos nucleares. Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires.

Cita tipo Chicago:

Furnari, Juan Carlos. "Estudio de reacciones nucleares inducidas por neutrones sobre germanio. Determinación, trazabilidad y aplicaciones de los datos nucleares". Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires. 2012.

EXACTAS UBA

Facultad de Ciencias Exactas y Naturales



UBA

Universidad de Buenos Aires



UNIVERSIDAD DE BUENOS AIRES

Facultad de Ciencias Exactas y Naturales

Departamento de Química Inorgánica, Analítica y Química Física

**Estudio de reacciones nucleares inducidas por neutrones
sobre germanio. Determinación, trazabilidad y
aplicaciones de los datos nucleares**

Tesis presentada para optar al título de Doctor en Ciencias Químicas

Juan Carlos Furnari

Director: Dr. Isaac Marcos Cohen

Consejero de Estudios: Dr. Roberto Etchenique

Lugar de Trabajo: Comisión Nacional de Energía Atómica
Centro Atómico Ezeiza; Centro Atómico Bariloche

Buenos Aires, 2012

***A mis hijos, Carla y Javier
A Mónica
A la memoria de mis padres***

Estudio de reacciones nucleares inducidas por neutrones sobre germanio. Determinación, trazabilidad y aplicaciones de los datos nucleares

Resumen

En la presente Tesis se estudió al germanio desde aspectos poco explorados. Se determinaron y publicaron varias constantes nucleares de isótopos del elemento y se encontraron dos aplicaciones originales en el campo de los reactores nucleares y del análisis por activación.

Para mejorar los escasos y discrepantes (o inexistentes) datos bibliográficos referidos a las constantes nucleares del germanio, se determinaron las secciones eficaces de las reacciones umbral $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$, $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$ y $^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$. Asimismo se midieron los factores k_0 correspondientes a ^{74}Ge y ^{76}Ge con exactitud y precisión comparables a otros datos publicados. Se desarrolló también un método radioquímico de separación de galio y germanio. Adicionalmente, se descubrieron nuevas transiciones gamma del ^{77m}Ge .

Se planteó así la primera derivación de esta Tesis, referida a la viabilidad de utilizar germanio como monitor integral de flujo neutrónico en reactores de investigación. A ese respecto, se demostró su potencialidad en el análisis por activación paramétrico de muestras biológicas; se desarrolló en tales matrices una aplicación novedosa, la determinación simultánea de fósforo y aluminio empleando germanio como monitor de flujo integral y comparador. Consecuentemente, se determinó la sección eficaz de la reacción $^{31}\text{P}(n,\alpha)^{28}\text{Al}$, mejorando sustancialmente los valores previos de dicha constante. También se desarrolló, como herramienta, un novedoso método para determinar simultáneamente los factores f y α en reactores de investigación.

Por último, se elaboraron varios trabajos concernientes al estudio, la determinación, la evaluación y la compilación de datos nucleares, que se incluyen en una de las secciones más relevantes de esta Tesis.

De resultados de todos los temas tratados, se han realizado ocho publicaciones en revistas internacionales con referato y catorce presentaciones en congresos nacionales e internacionales.

Palabras clave: germanio, reacciones nucleares, secciones eficaces, reactores nucleares, análisis por activación neutrónica, datos nucleares, trazabilidad.

Study of neutron induced nuclear reactions on germanium. Determination, traceability and applications of nuclear data

Abstract

In the present thesis, germanium was studied in aspects seldom explored. Several nuclear constants of isotopes of the element were determined and published. Two original applications, in the field of nuclear reactors and activation analysis, were found.

In order to improve the scarce and discrepant (or inexistent) bibliographical data, referred to the nuclear constants of germanium, the cross-sections of the threshold reactions: $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$, $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$ and $^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$ were determined; the k_0 factors corresponding to ^{74}Ge and ^{76}Ge were measured, as well, with accuracy and precision comparable to other published data. A radiochemical method for separation of germanium and gallium was also developed. In addition, new gamma transitions of $^{77\text{m}}\text{Ge}$ were discovered.

Thus, the first derivation of this thesis was outlined; it was referred to the viability of using germanium as integral neutron flux monitor in research reactors. In this respect, its potentiality in parametric activation analysis of biological samples was demonstrated; in such matrixes, an innovative application, the simultaneous determination of aluminium and phosphorus employing germanium as integral flux monitor and comparator, was developed. Consequently, the cross-section of the $^{31}\text{P}(n,\alpha)^{28}\text{Al}$ reaction was determined, substantially improving the previous values for this constant. As a tool, a new method for simultaneous determination of f and α research reactor parameters, was also developed.

Finally, several works, connected with study, determination, evaluation and compilation of nuclear constants were elaborated and published; they are including in one of the most relevant sections of this thesis.

As a result of all these subjects, eight publications in international journals and fourteen presentations in national and international conferences have been carried out.

Keywords: germanium, nuclear reactions, cross sections, nuclear reactors, neutron activation analysis, nuclear data, traceability.

Índice

Prefacio	I
Agradecimientos	II
Nomenclatura	III
Glosario de siglas empleadas	IV
1. Introducción	1
1.1. El elemento germanio	1
1.1.1. Aplicaciones del germanio y sus compuestos	2
1.2. Características isotópicas y nucleares.	4
Primera Parte	
Marco Teórico	
2. Elementos de neutrónica	8
2.1. Reacciones nucleares inducidas por neutrones	8
2.2. Activación neutrónica	10
2.3. Convenciones sobre el flujo neutrónico y las reacciones de captura	11
2.3.1. Convención de Högdahl	11
2.3.2. Convención de Westcott	16
2.3.3. Convención de Stoughton y Halperin	18
2.3.4. Convención de Blaauw - Bode - De Bruin	19
2.3.5. El comportamiento del flujo epicádmico y el factor α	21
2.3.6. El comportamiento general del flujo neutrónico en un reactor	23
3. Análisis por activación neutrónica	25
3.1. Generalidades	25
3.2. Modalidades del análisis por activación neutrónica	27
3.3. El método del k_0	28
3.4. Determinación experimental de los factores k_0	31
3.5. Métodos para la determinación del factor α	31
3.5.1. Método de multimonitores bajo cubierta de cadmio	33
3.5.2. Método de los tres monitores sin cubierta de cadmio	33

3.5.3. Método simplificado de los dos monitores bajo cubierta de cadmio	34
3.6. Métodos para la determinación de la relación de flujos f	36
3.6.1. Método de la relación de cadmio	36
3.6.2. Método de los dos monitores	37
3.7. Determinación simultánea de los factores f y α	37
3.8. Importancia de las reacciones umbral en análisis por activación	38

Segunda Parte

Desarrollo Experimental

4. Determinación de constantes nucleares del germanio	41
4.1. Consideraciones sobre los materiales empleados	41
4.1.1. Germanio.	41
4.1.2. Monitores de flujo	42
4.1.3. Preparación y manejo de las irradiaciones en el reactor RA-6	43
4.1.4. Preparación y manejo de las irradiaciones en el reactor RA-3.	45
4.1.5. Descripción de los reactores RA-3 y RA-6	48
4.2. Desarrollo de la separación radioquímica de Ge y Ga	56
4.2.1. Antecedentes	56
4.2.2. Desarrollo y resultados	57
4.3. Determinación de la sección eficaz de captura de la reacción $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$, promediada sobre el espectro neutrónico de fisión del ^{235}U	59
4.3.1. Introducción	59
4.3.2. Irradiaciones	60
4.3.3. Evaluación de impurezas de galio en el germanio	60
4.3.4. Mediciones	63
4.3.5. Correcciones	64
4.3.6. Caracterización y cuantificación de los flujos neutrónicos	67
4.3.7. Determinación de la sección eficaz	70
4.3.8. Resultados y conclusiones	72
4.4. Determinación de la sección eficaz de captura de las reacciones $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$ y $^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$ promediadas sobre el espectro neutrónico de fisión del ^{235}U	74
4.4.1. Introducción	74
4.4.2. Irradiaciones	74

4.4.3. Mediciones.	76
4.4.4. Correcciones	76
4.4.5. Caracterización y cuantificación de los flujos neutrónicos	77
4.4.6. Resultados y conclusiones	78
4.5. Determinación de factores k_0 del germanio.	80
4.5.1. Introducción	80
4.5.2. Irradiaciones, mediciones y correcciones	81
4.5.3. Resultados y conclusiones.	81
4.6. Identificación y determinación de nuevas transiciones gamma del ^{77m}Ge	85
4.6.1. Introducción	85
4.6.2. Metodología	85
4.6.3. Resultados y discusión	86
4.6.4. Conclusiones	92
5. Aplicaciones analíticas del germanio y de sus constantes nucleares	93
5.1. Empleo del germanio como monitor de flujo neutrónico y comparador, en métodos paramétricos de análisis	93
5.1.1. Introducción	93
5.1.2. Consideraciones operativas	94
5.1.3. Desarrollo teórico y evaluación	95
5.1.4. Comprobación experimental	109
5.1.4.1. Resultados y conclusiones	109
5.2. Determinación de Al y P en materiales biológicos por análisis por activación neutrónica empleando germanio como comparador y monitor integral de flujo	111
5.2.1. Introducción	111
5.2.2. Realización experimental	113
5.2.3. Tratamiento de datos	114
5.2.4. Resultados y conclusiones	115
5.3. Determinación de la sección eficaz de captura de la reacción $^{31}\text{P}(n,\alpha)^{28}\text{Al}$, promediada sobre un espectro neutrónico de reactor	117
5.3.1. Introducción	117
5.3.2. Irradiaciones, resultados y conclusiones	117
5.4. Nuevo método para la determinación de los factores f y α	120

5.4.1. Desarrollo teórico	120
5.4.2. Irradiaciones y resultados	121
5.4.3. Conclusiones	125

Tercera Parte

Datos Nucleares

6. Evaluación y manejo de datos nucleares	127
6.1. Consideraciones generales sobre los datos de tabla	127
6.2. Análisis de selección de datos nucleares	128
6.2.1. Introducción	128
6.2.2. Compilaciones de datos nucleares	129
6.2.3. Tipos de tablas	129
6.2.4. ¿Son verdaderamente evaluados los datos nucleares?	130
6.2.5. Ejemplo de información conflictiva	134
6.2.6. Distorsión de la información	135
6.2.7. Los criterios de los compiladores	136
6.2.8. Compilaciones, evaluaciones y renormalizaciones: realidades y esperanzas.	137
6.2.9. Fuentes de datos bibliográficos de secciones eficaces	140
6.2.10. Conclusiones	141
6.3. Aplicación del concepto de trazabilidad a los datos nucleares	142
6.3.1. Introducción	142
6.3.2. Requerimiento de datos nucleares en el análisis por activación neutrónica .	142
6.3.3. Implicancias de la calidad de los datos nucleares	143
6.3.4. El sentido de la renormalización	144
6.3.5. Trazabilidad en datos nucleares	145
6.3.6. Secuencia de responsabilidades: generador del dato, compilador, usuario.	147
6.3.7. Factores que influyen en la dispersión de los datos de tablas	148
6.3.8. Reflexiones finales.	149
6.4. La renormalización de datos nucleares	150
6.4.1. Introducción	150
6.4.2. Renormalización de las constantes nucleares determinadas en esta Tesis . .	152
6.4.3. Resultados y discusión	156

6.5. Repercusiones de algunas publicaciones emanadas de esta Tesis	157
6.5.1. El concepto de trazabilidad aplicado a los datos nucleares	157
6.5.2. Uso universal de bases de datos unificadas y otros	161
6.5.3. Conclusiones	162
7. Consideraciones finales	164
8. Referencias bibliográficas	166

Prefacio

Una Tesis doctoral pretende ser un trabajo de investigación de excelencia, que demuestre la capacidad del doctorando para enfrentar la vida profesional en forma independiente con el máximo nivel científico y académico. Esto último significa idear, planificar, dirigir, ejecutar o bien juzgar, desde complejas experiencias de laboratorio y desarrollos teóricos creativos, hasta llevar adelante proyectos de investigación o tecnológicos de envergadura.

Su realización no es una empresa sencilla, como no lo es el ejercicio de la profesión ni la vida misma. Si bien la comparación parece desmesurada, encuentro algunas analogías que considero válidas en muchos sentidos. En los tres casos, el alcance de metas y objetivos impuestos no siempre es directo y simple. Es por lo tanto necesario cultivar criterios amplios que permitan adecuarse a los cambios que impongan las circunstancias o los resultados inesperados, tanto adversos como favorables. Estar atento y aprender de los aciertos y errores, propios o ajenos, es una valiosa premisa. Esto es la esencia misma del método científico: hechos o experimentos, planteo de hipótesis, ensayo, error o novedad, rectificación, nuevas experiencias. Como soporte fundamental, es además imprescindible basarse en una escala de valores y principios que mantengan los aspectos éticos a resguardo. Sólo así es posible llevar emprendimientos hacia el éxito, con agrado y satisfacción al mismo tiempo.

Lo precedente, más allá de ser una mera enunciación de loables preceptos, es precisamente la línea rectora de esta Tesis. La planificación realizada al comienzo permitió rápidos avances en los primeros años, estando cerca de concluirla. Por entonces surgió la idea de emplear al germanio como monitor de flujo neutrónico y como comparador para el análisis por activación paramétrico. Esto proporcionó un nuevo impulso que, no sin tropiezos ni complicaciones, llevó a una sucesión de trabajos, en su mayoría publicados, convirtiéndose las aplicaciones citadas en uno de los temas centrales de la Tesis, enriqueciéndola en forma significativa.

Por otro lado, las distintas experiencias relacionadas con el germanio derivaron en otras realizaciones que también se agregaron a esta Tesis, por considerarlas un aporte original y útil. Es así como, con el Dr. Cohen, incursionamos en el campo de la evaluación y compilación de datos nucleares, planteando reglas generales y recomendaciones, también con varios trabajos publicados y presentaciones en congresos.

De todo esto, he aprendido.

Juan Carlos Furnari

Agradecimientos

Deseo agradecer a mi Director de Tesis, Dr. Isaac Marcos Cohen, por haberme guiado acertadamente en todo el camino, compartiendo muchas horas conmigo planificando y realizando las experiencias, repasando cálculos y discutiendo resultados. Muchas de las derivaciones de nuestras tareas fructificaron en otras actividades no relacionadas con la Tesis, destacando entre ellas muy especialmente la docencia. También recuerdo y valoro las numerosas y enriquecedoras charlas con él y otros colegas acerca de muchos aspectos relacionados con la vida científica y tecnológica, las más de las veces más allá de la Tesis.

Agradezco también a mi Consejero de Estudios, Dr. Roberto Etchenique, quien ha sabido sugerirme las últimas materias que cursé para la Tesis, una de ellas actuando como docente, ha realizado una acertada revisión del texto y me ha acompañado y avalado en las gestiones ante la Subcomisión de Doctorado.

Agradezco a mis compañeros de trabajo con los que he compartido más de 30 años de carrera en la Comisión Nacional de Energía Atómica, institución a la que pertenezco con orgullo.

Extiendo mi gratitud a las autoridades de la Comisión Nacional de Energía Atómica que me han brindado apoyo y permitieron el desarrollo de las experiencias en los Centros Atómicos Ezeiza y Bariloche. En este sentido, agradezco especialmente al Lic. Abraham Kestelman, ya retirado, quien en los primeros años de esta Tesis era responsable del Laboratorio de Análisis por Activación Neutrónica del Centro Atómico Bariloche, por habernos cedido su tiempo, sus instalaciones y a veces hasta los servicios de sus colaboradores, para realizar algunas experiencias en el reactor nuclear RA-6. Vaya entonces mi gratitud a la Dra. María Arribère, al Dr. Sergio Riveiro y al Lic. Osvaldo Calzetta, personal del RA-6.

A Jesús Luis Gómez por suministrarme el germanio de ultra alta pureza con el cual realizamos la mayoría de las experiencias de la Tesis. A Silvana Semino por su paciencia y tesón ante mis inacabables pedidos de bibliografía.

A la Mg. María Celeste Fornaciari Iijadica y a la Lic. María del Carmen Ali Santoro, por ayudarme en la revisión de la Tesis y darme una mano fundamental en la renormalización de las constantes determinadas en la Tesis.

Mi agradecimiento y gratos recuerdos al fallecido Dr. Daniel Batistoni, por entonces integrante de la Subcomisión de Doctorado del Departamento de Química Inorgánica, Analítica y Química Física de la Facultad de Ciencias Exactas y uno de mis mejores profesores quien, perteneciendo además a la CNEA, obró de consultor en diversas oportunidades.

Deseo mencionar y agradecer especialmente al Dr. Ernesto Germán Brenner, mi querido profesor y amigo, quien me enseñó a amar a la ciencia y entre otras muchas lecciones, una bien aplicada en esta oportunidad: “se debe ser señor antes que doctor”.

Finalmente, agradezco con el corazón a mis hijos Javier y Carla; a Mónica, mi mujer y amiga; a mis recordados padres; a mis familiares cercanos y a mis amigos Fernando Loza y Nicolás Rona quienes, todos ellos, lejos de lamentarse por haberles quitado tiempo para dedicarme a la Tesis, me han instado fervientemente a completarla, agregando al cariño, su continuo respaldo y adhesión.

Juan Carlos Furnari

Nomenclatura

Para la escritura de esta Tesis se adoptaron las convenciones internacionales con las que se representan a los nucleidos y las reacciones nucleares, por ejemplo, $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$. Los parámetros más usuales, como el periodo de semidesintegración ($T_{1/2}$) y la sección eficaz de captura (σ), entre otras, se aclaran de todas maneras. Por supuesto se utilizan las unidades y normas del Sistema Internacional de Unidades.

Las unidades de tiempo utilizadas son
s: segundos (y sus submúltiplos μs y ms)
min: minutos
h: horas
d: días
a: años

Las energías se expresan en electrón-volt [eV] y sus múltiplos keV y MeV

Por otra parte, las unidades de las magnitudes físicas, simples o compuestas, se escriben con sus exponentes correspondientes y entre corchetes, como es usual, por ejemplo, $[\text{s}^{-1} \text{cm}^{-2}]$.

Para las referencias bibliográficas se adoptó la que es empleada por muchas revistas científicas, citando en el texto el apellido de los autores principales y el año de publicación entre corchetes; registrándose luego por orden alfabético en la sección de Referencias Bibliográficas con el título entre comillas, los autores y la referencia en forma completa. Esto hace que se mencione a los autores en el texto y facilita la compilación de la bibliografía.

Cuando fue necesario efectuar alguna aclaración circunstancial, se realizó una llamada con un asterisco como supraíndice, al pie de la página. De la misma forma se emplearon números entre corchetes como supraíndice, para las referencias bibliográficas de tablas o gráficos, realizando las citas a continuación de los mismos.

Las ecuaciones matemáticas se numeraron entre paréntesis, anteponiendo al número correlativo el número principal de la sección correspondiente, por ejemplo, la ecuación 15 consignada en la sección 2.3.1. se nombrará (ec. 2.15). Un criterio análogo se utilizó para numerar las tablas y figuras.

Las incertidumbres absolutas o relativas de los valores estipulados en tablas se consignaron, según la conveniencia del caso o para respetar el dato original publicado, de acuerdo a los siguientes ejemplos de formatos:

$$21,23(4) : 21,23 \pm 0,04$$
$$1,240 \cdot 10^{-5} (1,2\%) : 1,240 \cdot 10^{-5} \pm 0,015 \cdot 10^{-5}$$

Para presentar o enfatizar una frase, o citar un parámetro, se utilizó el formato itálico, como ejemplos, *integral de resonancia*; cociente Q_0

La simbología o el significado matemáticos de ciertos parámetros se definieron en cada caso.

Glosario de siglas empleadas

Si bien están aclaradas en el texto, hemos considerado conveniente listar las siglas citadas en la Tesis en orden alfabético a continuación

AANI: Análisis por Activación Neutrónica Instrumental

AANR: Análisis por Activación Neutrónica Radioquímico

ARN: Autoridad Regulatoria Nuclear

BIPM: Bureau International des Poids et Mesures

CAB: Centro Atómico Bariloche

CAC: Centro Atómico Constituyentes

CAE: Centro Atómico Ezeiza

CNEA: Comisión Nacional de Energía Atómica

FDA: Food and Drug Administration

IAEA: International Atomic Energy Agency

ICRM: International Committee for Radionuclide Metrology

IPEN: Instituto Peruano de Energía Nuclear

IUPAC: International Union of Pure and Applied Chemistry

NBS: National Bureau of Standards, Estados Unidos

NIST: National Institute of Standards and Technology, Estados Unidos

OIEA: Organismo Internacional de Energía Atómica. En la bibliografía se citó como IAEA

1. Introducción

1.1. El elemento germanio

Este metal, de hermoso brillo plateado, fue uno de los tres elementos cuya existencia predijo Dmitri Mendeleiev (o Mendeléyev) a principios de la década de 1870. El primero fue el ekaaluminio, llamado luego galio por su descubridor P. E. Lecoq de Boisbaudran, en 1874. Luego siguió el ekaboro, descubierto en 1878 por el químico sueco L. F. Nilson, quien lo bautizó como escandio. El triunfo final llegó en 1886, cuando el alemán Clemens Alexander Winkler, estudiando el mineral de plata argirodita ($4\text{Ag}_2\text{S}\cdot\text{GeS}_2$), descubierto el año anterior, al comprobar que se cometía un error sistemático del 7% en el análisis cuantitativo del mismo, encontró al elemento que en todo concordaba con el ekasilicio de Mendeleiev. Winkler le puso el nombre germanio, estableciendo la rara casualidad de que los tres elementos vaticinados fueran nombrados por sus descubridores en honor a sus respectivas regiones de origen [Asimov, 1983], Galia, Escandinavia y Germania.

En la corteza terrestre se encuentra en una proporción de $1,5 \cdot 10^{-4}$ % en peso. El elemento se encuentra en otros minerales, además de la argirodita: canfieldita [$4\text{Ag}_2\text{S}\cdot(\text{Sn},\text{Ge})\text{S}_2$]; germanita ($\text{FeCu}_6\text{GeS}_8$, que además contiene galio, arsénico y cinc); ranierita (sulfuro de cobre, hierro, cinc y arsénico) y en otros minerales menos significativos de cinc.

El elemento se obtiene principalmente de la germanita y de la ranierita, o como subproducto en los procesos de obtención de cobre, cinc y en las cenizas de ciertos carbones (esta última constituiría una importante reserva futura de germanio).

El proceso de producción consiste en convertir a todos los compuestos del elemento existentes en los minerales en GeCl_4 por tratamiento con HCl. El GeCl_4 es un líquido volátil (Peb.: 84°C), y gracias a esto se separa de los demás elementos presentes (fundamentalmente arsénico) por destilación fraccionada. El cloruro se hidroliza luego para obtener GeO_2 , que por último se reduce en atmósfera de hidrógeno a 650°C . Para la purificación posterior se usa el proceso de fusión zonal, llegando a la ultra-alta pureza con la que se emplea en los detectores de fotones (relación de impurezas aproximada $1:10^{13}$).

Algunas de las propiedades fisicoquímicas del germanio son [Handbook, 2010; Webelements, 2011]:

Punto de fusión: $938,25^\circ\text{C}$

Punto de ebullición: 2833°C

Densidad (25°C): $5,3234\text{ g/cm}^3$

Volumen atómico: $13,63\text{ cm}^3/\text{mol}$

Densidad atómica: $4,418 \cdot 10^{22}\text{ átomos/cm}^3$

Masa atómica relativa: $72,63\text{ g/mol}$ [IUPAC, 2011a]

Resistividad eléctrica: aproximadamente $50000 \cdot 10^{-8}\ \Omega\cdot\text{m}$

Estructura cristalina: Cúbica

Dureza: 6 (escala de Mohs)

Color: Gris plateado

En estado puro es cristalino, relativamente duro y quebradizo. En condiciones de laboratorio, el agua, el ácido clorhídrico, el ácido sulfúrico diluido y las bases no lo atacan, pero sí lo hacen los ácidos sulfúrico concentrado, nítrico y fluorhídrico diluidos.

1.1.1. Aplicaciones del germanio y sus compuestos [Webelements, 2011; MedicineNet, 2011]

Junto al silicio, el germanio es un conocido material semiconductor utilizado en infinidad de dispositivos electrónicos. El desarrollo de los primeros diodos se hizo con germanio y fue usado durante y luego de la segunda guerra mundial como detector de ultra alta frecuencia (UHF) en señales de radar y de radio. Dopado con P, As, Sb, B, Al o Ga, se usa como diodo, transistor u otros componentes en cientos de aplicaciones.

Exceptuando sus aplicaciones en electrónica, no son muy difundidos los usos del germanio, sin ser por ello menos importantes o interesantes. En el campo de la óptica, el GeO_2 o los vidrios basados en germanatos (Na_2GeO_3 , Mg_2GeO_4), poseen alto índice de refracción y han encontrado aplicación en lentes gran angular de cámaras, en objetivos de microscopio y para la fabricación de fibras ópticas. Puesto que el metal y su óxido son transparentes a la radiación infrarroja, se usan en forma de monocristales en la construcción de lentes, prismas, ventanas y filtros y otros dispositivos ópticos en el ámbito del espectro IR de 2 a 14 μm , entre los que se encuentran detectores infrarrojos extremadamente sensibles

Se han desarrollado nuevas aplicaciones de aleaciones de germanio, por ejemplo 24% de germanio y 76% de arsénico, que funde a 351°C; aleaciones de germanio, niobio y aluminio son superconductoras a 20 K y otras similares sirven para fabricar imanes de gran potencia. El contenido de germanio en ciertas aleaciones contribuye a que se expandan al bajar la temperatura.

También se emplean compuestos de germanio como catalizadores en la industria petroquímica y del poliéster y para la construcción de filamentos en la industria de las lámparas especiales.

Existen los germanos, $\text{Ge}_n\text{H}_{2n+2}$, hidruros semejantes a los silanos, que se descomponen a temperaturas superiores a 300°C y se usan para producir capas finas de germanio mediante su descomposición térmica.

Una mención especial se merece el empleo de compuestos organogermánicos en la preparación de productos farmacéuticos. Existen estudios sobre el uso del sesquisulfuro de 1-fenil-2-carbamiletelgermanio y del hexóxido de 1-fenil-2-carbamiletelgermanio como citotóxicos en quimioterapia oncológica, al igual que el llamado Germanium-132 [Applied Health, 2009]. Respecto de este último compuesto hexóxido de 2-carboxietil germanio, llamado comercialmente Germanium Organic o Ge-132, al igual que el lactato-citrato de germanio, se emplea como suplemento dietario, revitalizante de la piel y otros órganos, antioxidante e incluso en tratamiento de osteoporosis [Fuji et al., 1993].

Como curiosidad, existen reportes que atestiguan (a veces sin fundamento) haber encontrado concentraciones altas de germanio, de hasta 2000 ppm, en aguas y plantas consideradas milagrosas, como el agua de Lourdes, el ginkgo biloba y el aloe vera. El empleo de 2-carboxietil germanio, al que le atribuyen “asombrosos poderes curativos”, ha sido muy popular en Japón desde 1970. Usualmente, estos compuestos son administrados en dosis del orden de 500 mg diarios durante 2 a 36 meses. Ahora bien, el germanio ciertamente no es un elemento esencial y, si bien su toxicidad es baja, se han reportado casos de disfunción renal en pacientes que lo han ingerido durante largos periodos.

1. Introducción

Food and Drug Administration (FDA) de EE.UU. advierte que existen en el mercado productos que contienen germanio y han sido etiquetados como medicamentos de uso en diagnóstico, cura, mitigación, tratamiento o prevención de enfermedades como el SIDA o el cáncer, si bien no hay nuevas autorizaciones de empleo de compuestos de germanio como medicamento ni en experimentación.

El germanio ha sido puesto a la venta con una amplia variedad de nombres comerciales, como sesquióxido de germanio, GE-132, GE-OXY-132, vitamina O, Pro-Oxygen, Nutrigel 132, Inmune Multiple y Germax. La FDA recomienda que los productos que contienen germanio para el uso humano deben ser etiquetados como "tóxicos y nocivos para la salud" [MedicineNet, 2011].

Continuando con las aplicaciones médicas, ahora en la medicina nuclear, es interesante mencionar el empleo del isótopo radiactivo ^{68}Ge del germanio en los "generadores de $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ". En estos dispositivos se fija el ^{68}Ge *, como Ge(IV) en una columna de resina de intercambio iónico, alúmina, TiO_2 o ZnO_2 (según el fabricante), para luego eluir el ^{68}Ga , producto de su decaimiento, como cloruro, citrato o complejos de EDTA o DTPA. Dado el período de semidesintegración del ^{68}Ge , estos generadores tienen una vida útil de alrededor de un año. El ^{68}Ga , emisor de positrones, se emplea marcando compuestos para diagnóstico por imágenes empleando la técnica de tomografía por emisión de positrones (PET, por su sigla en inglés).

En el ámbito de la tecnología nuclear, la utilización más difundida del germanio es la construcción de distintas clases de detectores de fotones X o gamma para espectrometrías de media y de alta resolución. Existen detectores de germanato de bismuto ($\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$), denominado BGO, excelente centellador de alta eficiencia para fotones de energía media, empleados precisamente en tomógrafos PET y convencionales (tomografía axial computada de rayos X), a pesar de su relativamente lenta respuesta. El BGO presenta muy buenas propiedades mecánicas y ópticas, así como altos valores de densidad, número atómico (por el Bi) e índice de refracción, lo que lo convierte en un material altamente absorbente de fotones por efecto fotoeléctrico en un amplio espectro de energías [Knoll, 2000, pág. 239].

En la actualidad, el germanio enriquecido en su isótopo 76 se emplea en el estudio de la transformación beta doble, libre de neutrinos, en la instalación subterránea de Gran Sasso [Klapdor-Kleingrothaus et al., 2003].

Volviendo al elemento germanio, en forma de metal monocristalino y de alta pureza, es muy conocida la ya adelantada utilidad como detector semiconductor para espectrometría de alta resolución en prácticamente todo el rango de energías (0,5 keV a 4 MeV). En un principio (décadas del '60 y del '70) se empleó el germanio compensado con litio, en los populares detectores de Ge(Li). Esta aplicación impulsó el desarrollo de métodos especiales de purificación y análisis con el fin de lograr un material de mayor pureza, sin la necesidad de compensar el número de portadores de carga. Así, el germanio de ultra-alta pureza, también llamado hiperpuro (high purity germanium -GeHP-), se consigue refinándolo por fusión zonal, logrando un grado de pureza extraordinariamente alto, compensado en cargas intrínsecamente.

La concentración de impurezas resulta del orden de 10^9 átomos/cm³ (ca. $2 \cdot 10^{-2}$ ppt o bien

* ^{68}Ge , $T_{1/2} = 270,95$ días. Decae por captura electrónica a ^{68}Ga ($T_{1/2} = 67,71$ min.), emisor de positrones.

relación impurezas/matriz 1:10¹³ en masa), verificable sólo por efecto Hall, pues ningún método analítico convencional o nuclear es capaz de alcanzar estos valores de sensibilidad.

El efecto Hall es la generación de una diferencia de potencial perpendicular al sentido de circulación de una corriente a través de un semiconductor, cuando éste se somete a un campo magnético transversal al plano en el que circula la corriente. En un semiconductor intrínseco como es el GeHP, la diferencia de potencial mencionada proveniente del efecto Hall es directamente proporcional a la cantidad de portadores de carga generados por las impurezas presentes en el material. Las mediciones para determinar la cantidad de portadores se realizan siguiendo el método de Van der Pauw [IEEE-1160-1993]

El hecho de disponer de un material tan puro fue aprovechado especialmente en los trabajos experimentales de esta Tesis, puesto que ofrece diversas posibilidades de aplicación en el campo de la química nuclear al permitir estudiar ciertas reacciones nucleares con alta precisión y exactitud. Además, brindó la posibilidad de emplearlo como material de referencia en algunas experiencias, como la determinación de flujos neutrónicos o de otros parámetros de interés en reactores nucleares de investigación, así como su empleo como comparador en el análisis por activación paramétrico, tal como se expondrá más adelante.

1.2. Características isotópicas y nucleares

El elemento germanio posee cinco isótopos naturales, cuyas características se consignan en la tabla 1.1, incluyendo los valores de las principales constantes nucleares conocidas en los comienzos de esta Tesis.

Tabla 1.1: Principales constantes nucleares del germanio y sus isótopos en 1994.

(σ : sección eficaz de captura; I_0 : integral de resonancia. Los significados de estas constantes se aclararán más adelante). Masa atómica relativa del germanio: 72,64(1) ^[1]

Isótopo	Abundancia isotópica [%] ^[2]	σ (n, γ) [barn] ^[3]	σ (n, γ) [barn] ^[4]	I_0 [barn] ^[3]	σ (n,p) [mbarn]
⁷⁰ Ge	21,23(4)	3,15(16)	3,50(13)	2,4(7)	---
⁷² Ge	27,66(3)	0,98(9)	---	0,88(22)	0,022(6) ^[5]
⁷³ Ge	7,73(1)	15(2)	---	65(6)	---
⁷⁴ Ge	35,94(2)	0,24(6)	0,52(6)	0,43(7)	---
⁷⁶ Ge	7,44(2)	0,05(2)	0,07(2)	2,0(4)	---
Ge elem.		2,3(2)			

^[1] IUPAC, 1994

^[2] IUPAC, 1991

^[3] Mughabghab, 1973

^[4] Sher, 1974

^[5] Rau, 1967; en Calamand, 1974

Varias constantes nucleares no estaban determinadas o lo estaban con insuficiente precisión en los trabajos previos antes de comenzar esta Tesis, siendo uno de los avances logrados con

1. Introducción

ella la mejora en la información bibliográfica acerca de sus datos nucleares, como se verá durante el desarrollo. Como adelanto entonces, se presenta en la tabla 1.2 un resumen del estado actual (2011) de los valores de los mismos parámetros y constantes. No están incluidos los factores k_0 de dos de sus isótopos y la nuevas emisiones gamma descubiertas del ^{77m}Ge (ver secciones 4.5 y 4.6, respectivamente).

Tabla 1.2: Valores de las principales constantes nucleares de los isótopos de germanio en 2011

Masa atómica relativa del germanio: $72,63(1)^{[1]}$

Isótopo	Abundancia isotópica (%) ^[2]	σ (n, γ) [b] ^[3]	σ (n, γ) [b]	I_0 [b] ^[4]	σ (n,p) [mb]
^{70}Ge	20,57(27)	3,052	2,90(20) ^[5]	1,5(3)	3,1(3) ^{[4][6]}
^{72}Ge	27,45(32)	0,886	0,8(2) ^[5]	0,8(2)	0,0959(24) ^[7]
^{73}Ge	7,75(12)	14,70	14,4(4) ^[5]	64(6)	---
^{74}Ge	36,50(20)	0,519	0,51(8) ^[4]	1,0(2)	0,00938(59) ^{[4][6]}
^{76}Ge	7,73(12)	0,1546	0,0688(34) ^[5]	1,8(4)	---
Ge elem.			2,20(4) ^[4]	6,0(1,0)	

^[1] IUPAC, 2011a

^[2] IUPAC, 2011b

^[3] NNDC, 2011

^[4] Mughabghab, 2003

^[5] Meierhofer et al., 2009

^[6] Cohen, Furnari et al., 1996 (esta Tesis)

^[7] Furnari y Cohen, 1994a (esta Tesis)

Se realiza a continuación una comparación análoga con los datos de la conocida Tabla de Nucleidos del Forschungszentrum Karlsruhe [FZ Karlsruhe, 1995 y 2006]

Figura 1.1: El germanio en la Tabla de Nucleidos de 1995

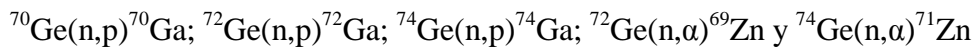
The figure is a nuclear chart showing isotopes of Se, As, Ge, Ga, Zn, and Cu. Each cell contains the element symbol, mass number, half-life, and decay modes. The chart is color-coded by element: Se (red), As (orange), Ge (yellow), Ga (green), Zn (light green), and Cu (dark green).

Figura 1.1: El germanio en la Tabla de Nucleidos de 2006

Se 69 27.4 s	Se 70 41.1 m	Se 71 4.74 m	Se 72 8.5 d	Se 73 39 m 7.1 h	Se 74 0.89	Se 75 119.64 d	Se 76 9.37	Se 77 17.5 s 7.63	Se 78 23.77	Se 79 3.9 m 4.8 · 10 ⁵ a	Se 80 49.61
β ⁺ 5.6; 5.8... γ 96; 67; 692... β 1.81; 2.23...	β ⁺ γ 50; 426; 377...	β ⁺ 3.4... γ 147; 1095; 830...	ε no β ⁺ γ 46	h 209... β ⁺ 1.3... γ 67; 254; 84... 593... β ⁺ 1.3; 1.7... γ 381; 67...	ε no β ⁺ γ 53...	γ 265; 136; 260; 121; 401... α 330	ε 22 + 63	h 162 ε 42	ε 0.38 + 0.05	h 96 ε 10 β ⁻ 2... no γ g	ε 0.05 + 0.54
As 68 2.53 m	As 69 15.1 m	As 70 53 m	As 71 65.28 h	As 72 26.0 h	As 73 80.3 d	As 74 17.77 d	As 75 100	As 76 26.4 h	As 77 38.8 h	As 78 1.5 h	As 79 8.2 m
β ⁺ 4.7; 6.1... γ 1016; 762; 651; 1778...	β ⁺ 3.0... γ 233; 146; 87...	β ⁺ 2.1; 2.8... γ 1040; 668; 1114; 745; 1708; 2020...	ε no β ⁺ γ 175; 1095...	β ⁺ 2.5; 3.3... γ 834; 630...	ε no β ⁺ γ 53...	β ⁺ 0.9; 1.5... β ⁻ 1.4... γ 596; 635...	ε 4.0	β ⁻ 3.0... γ 559; 657; 1216... g	β ⁻ 0.7... γ 239; 521; 250... g	β ⁻ 4.4... γ 614; 695; 1309...	β ⁻ 2.1... γ 96; 365; 432; 679... m
Ge 67 2.83 m	Ge 68 270.82 d	Ge 69 39.0 h	Ge 70 20.38	Ge 71 11.43 d	Ge 72 27.31	Ge 73 7.76	Ge 74 36.72	Ge 75 47 s 83 m	Ge 76 7.83 1.53 · 10 ²¹ a	Ge 77 53 s 11.3 h	Ge 78 88 m
β ⁺ 3.0; 3.2... γ 167; 1473...	ε no β ⁺ no γ α 1.0	ε β ⁺ 1.2... γ 1107; 574; 872; 1336...	ε 3.0	ε no γ	ε 0.9	ε 15	ε 0.14 + 0.28	h 140... β ⁻ 1.2... γ 265; 168... β ⁻ 1... γ 280...	β ⁻ 0.09 + 0.06	β ⁻ 2.2... γ 294; 211; 216; 418... h 180	β ⁻ 0.7... γ 277; 294
Ga 66 9.4 h	Ga 67 78.3 h	Ga 68 67.63 m	Ga 69 60.108	Ga 70 21.15 m	Ga 71 39.892	Ga 72 14.1 h	Ga 73 4.86 h	Ga 74 9.5 s 8.1 m	Ga 75 2.1 m	Ga 76 32.6 s	Ga 77 13 s
β ⁺ 4.2... γ 1039; 2752; 634; 2190; 4296...	ε no β ⁺ γ 93; 185; 300...	β ⁺ 1.9... γ 1077; (1833...)	ε 1.68	β ⁻ 1.7... ε γ (1040; 176)	ε 4.7	β ⁻ 1.0; 3.2... γ 834; 2202; 630; 2508...	β ⁻ 1.2; 1.5... γ 297; 53; 326... e ⁻	h 67... β ⁻ 2.6; 4.9... 311; 2354; 608... g	β ⁻ 3.3... γ 253; 575... g	β ⁻ 5.9... γ 563; 546; 1108...	β ⁻ 5.2... γ 469; 459... m
Zn 65 244.3 d	Zn 66 27.9/5	Zn 67 4.102	Zn 68 19.024	Zn 69 13.8 h 56 m	Zn 70 0.631	Zn 71 3.9 h 2.4 m	Zn 72 46.5 h	Zn 73 5.8 s 23.5 s	Zn 74 96 s	Zn 75 10.2 s	Zn 76 5.6 s
ε; β ⁺ 0.3 γ 1115... α 96 α _n α 2.0	ε 0.9 α _n α <2E-5	ε 6.9 α _n α 0.0004	ε 0.072 + 0.8 α _n α <2E-5	h 439 β ⁻ 1.5... γ 219... ε 0.0081 + 0.083	β ⁻ 1.5; 2.5... γ 596; 427; 910; 600... β ⁻ 2.8... γ 145; 192... e ⁻	β ⁻ 0.3... γ 145; 192... e ⁻	h 196 β ⁻ 4.3... γ 49; 144; 193... m; g	β ⁻ 4.3... γ 49; 144; 193... m; g	β ⁻ 5.5; 5.9... γ 229; 432; 156; 606...	β ⁻ 4.0... γ 199; 76; 366; 172...	
Cu 64 12.700 h	Cu 65 30.85	Cu 66 5.1 m	Cu 67 61.9 h	Cu 68 3.8 m 30 s	Cu 69 3.0 m	Cu 70 6.6 s 33 s 44.5 s	Cu 71 19.5 s	Cu 72 6.6 s	Cu 73 3.9 s	Cu 74 1.59 s	Cu 75 1.22 s
ε; β ⁻ 0.6 β ⁺ 0.7 γ (1346) α ~270	ε 2.17	β ⁻ 2.6... γ 1039; (834...)	β ⁻ 0.4; 0.6... γ 185; 93; 91...	h 528; 85; 118... β ⁻ 3.5; β ⁻ 3.7; 4.6... 1.8 γ 1077; 1261	β ⁻ 2.5... γ 1007; 834; 531... g	β ⁻ 1.5; β ⁻ 2.8... γ 885; 3.6... 5.9... γ 802; 7885; h 101; 902; h 41; e ⁻ 1252	β ⁻ 0.3... γ 490; 595; 587... g; m	β ⁻ 6.52; 1005; 1656; 847...	β ⁻ 4.50; 199; 502; 307...	β ⁻ 6.06; 1064; 1139; 813... 724 β ⁻ 7	β ⁻ 1.85; 421; 724 β ⁻

En las fig. 1.1 y 1.2 se reproduce el sector de la Tabla de Nucleidos, en el que están situados los isótopos naturales del germanio y sus radioisótopos más importantes. Entre estos últimos se destacan el ⁷⁵Ge, el ⁷⁷Ge y el ^{77m}Ge, productos de reacciones (n,γ) que estudiamos con detalle en esta Tesis.

También se observan los isótopos de los elementos vecinos, algunos de los cuales están relacionados con el germanio por ser productos de las reacciones nucleares inducidas por neutrones sobre nuestro elemento, que fueron ensayadas en esta Tesis:



Observemos, por ejemplo, el cambio en los valores consignados de las abundancias isotópicas del germanio (debajo de los nombres de los isótopos en los cuadros negros, expresados en %), actualizados a 2003 [IUPAC, 2003]. Pero más interesante aún es que, habiendo nuevos datos de secciones eficaces y de periodos de semidesintegración, la Tabla de Nucleidos de 2006 consigna los mismos valores que en 1995. El uso de esta tabla es prácticamente universal, pero como se observa, los valores de las constantes no siempre están debidamente actualizados. Es de remarcar que esta tabla tiene muchas utilidades, pero no es recomendable emplear los datos nucleares en cálculos precisos. En el caso de esta Tesis se han utilizado exclusivamente datos de publicaciones primarias o de tablas evaluados especialmente. Esto se trata in extenso en la sección 6.

El sentido de esta comparación, más que destacar el aporte de nuestras investigaciones en el marco de la Tesis, es hacer notar que los datos de tablas cambian, se actualizan, y por lo tanto es necesario controlar este conocimiento variable para mantener la debida consistencia con otros datos con los que se vinculan en los cálculos.

Sobre esta importante consideración, dado que todas las experiencias fueron realizadas sobre determinados isótopos del germanio, resulta significativo considerar las posibles variaciones en la composición isotópica del elemento. Al respecto, es interesante observar que

la International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC) centraliza toda la información bibliográfica original acerca de la determinación experimental de pesos atómicos y las composiciones isotópicas de los elementos químicos, realizando análisis estadísticos y elaborando datos promediados según criterios propios. Estos resultados son los que se informan a la comunidad científica, quien acepta como única e indiscutida esta fuente. En general, para otros parámetros y constantes existe gran diversidad de tablas elaboradas por diferentes instituciones o investigadores, quedando a criterio del usuario la elección de los datos que empleará en sus cálculos, junto a los resultados de sus experiencias. Ambas modalidades de presentación de datos, esto es, la compilación centralizada o las tablas independientes, presentan ventajas y desventajas cuya discusión detallada, que motivó varias publicaciones y presentaciones en congresos [Cohen y Furnari, 1994; 1995; 1999; Furnari y Cohen, 1994c; 1995a; 1998 y 2010], se presentará más adelante en la sección 6. En principio, es de destacar que se ha tomado muy en cuenta el origen y la evaluación de los datos de tabla empleados en los cálculos realizados para esta Tesis, puesto que de ellos depende la calidad de los resultados obtenidos.

En el caso de los pesos atómicos y abundancias isotópicas, se han encontrado algunos factores de duda acerca de la validez de los datos consignados o de sus incertidumbres en varios elementos químicos [Furnari y Cohen, 1995b]. Como se puede apreciar, aun tomando en cuenta estas observaciones críticas, se puede confiar en que la variabilidad de las abundancias isotópicas no influirá significativamente en las incertidumbres de las constantes y de los parámetros nucleares determinados en esta Tesis.

Los datos empleados en esta Tesis, correspondientes a las masas atómicas relativas y las abundancias isotópicas de los nucleidos de interés, fueron extraídos de la última publicación de pesos atómicos y abundancias isotópicas de IUPAC [IUPAC, 2011a; IUPAC, 2011b].

Como corolario, es de hacer notar que si se realizaran los cálculos con el conjunto de valores de la versión anterior [IUPAC, 1991 y 1994], las constantes nucleares determinadas en esta Tesis presentarían una diferencia de alrededor de 1% con respecto a las establecidas, lo cual resalta la necesidad de renormalizar los valores determinados experimentalmente toda vez que se cuente con nuevos datos, confiables y consistentes, lo cual se llevó a cabo en la sección 6.4.2.



Primera parte

Marco teórico

2. Elementos de neutrónica

2.1. Reacciones nucleares inducidas por neutrones

Existe una gran diversidad de interacciones de los neutrones con la materia. Desde la sencilla dispersión elástica, causante del frenado o moderación de los neutrones, hasta las diferentes familias de reacciones nucleares. En este último caso, la facilidad con que esta partícula neutra puede penetrar en los núcleos, y en parte la disponibilidad de diferentes sistemas para obtención de flujos neutrónicos, desde sencillas fuentes de laboratorio hasta reactores nucleares, han hecho de las reacciones nucleares inducidas por neutrones el principal medio para la producción de radioisótopos con fines científicos o industriales, así como su aplicación en ciertos métodos analíticos.

La probabilidad de ocurrencia de las interacciones citadas depende de las propiedades de la especie nuclear irradiada y de la energía cinética del neutrón. La descripción probabilística de tales interacciones está dada por la *sección eficaz* σ , cuya unidad es el *barn* ($1 \text{ b} \equiv 10^{-24} \text{ cm}^2$). Así, para el proceso de absorción del neutrón se emplean las secciones eficaces de captura, que son constantes nucleares propias del nucleido considerado, según la reacción nuclear inducida. Según la energía del neutrón, pueden ocurrir reacciones de *captura radiante* (n,γ), exoérgicas; o reacciones *umbral*, en general endoérgicas. Éste último nombre deriva de la necesidad de superar un umbral energético por parte de los neutrones para que ocurran. En estos casos, usualmente se expulsa una partícula del núcleo, en reacciones de tipo (n,n'); ($n,2n$); (n,p); (n,α); etc.

En el caso de las reacciones de captura radiante, la sección eficaz de captura $\sigma(v)$ es inversamente proporcional a la velocidad v (o a la energía) de los neutrones incidentes, de forma tal que es válida la expresión:

$$\sigma(v) = \frac{\sigma_0 \cdot v_0}{v} \quad [\text{barn}] \quad (\text{ec. 2.1})$$

siendo

σ_0 : sección eficaz a una dada velocidad de referencia v_0 , normalmente $2200 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ que, como se verá más adelante, corresponde a la velocidad más probable de los *neutrones térmicos*, es decir, los neutrones que están en equilibrio térmico con las moléculas del medio en el que se hallan. La ec. 2.1 postula el comportamiento ideal de σ como función de $1/v$ que será tratado más adelante, dado que existen apartamientos de esta ley que obligan a consideraciones especiales.

La dispersión de neutrones está también regida por su sección eficaz correspondiente, aunque si lo que interesa es sólo el estudio de las reacciones nucleares, es la sección eficaz de captura la única que se tiene en cuenta.

Con respecto a los neutrones causantes de tales interacciones, éstos se hallan siempre en conjunto, con densidad (número de neutrones por unidad de volumen), energías y movimientos particulares, conformando lo que se podría llamar *fluido neutrónico*. La analogía es tal que los neutrones de relativamente baja energía cinética, que posean también movimientos isotrópicos, pueden describirse como un gas, siguiendo con buena aproximación la ecuación de Maxwell de distribución de energías:

$$n(E)dE = \frac{2\pi n}{(\pi kT)^{3/2}} e^{-E/kT} \cdot E^{1/2} dE \quad (\text{ec. 2.2})$$

donde

n : densidad de neutrones [cm^{-3}]

$n(E) dE$: densidad de neutrones con energías comprendidas entre E y $E+dE$

k : constante de Boltzmann { $8,6173324(78) \cdot 10^{-5} \text{ eV}\cdot\text{K}^{-1}$ } [CODATA, 2010]

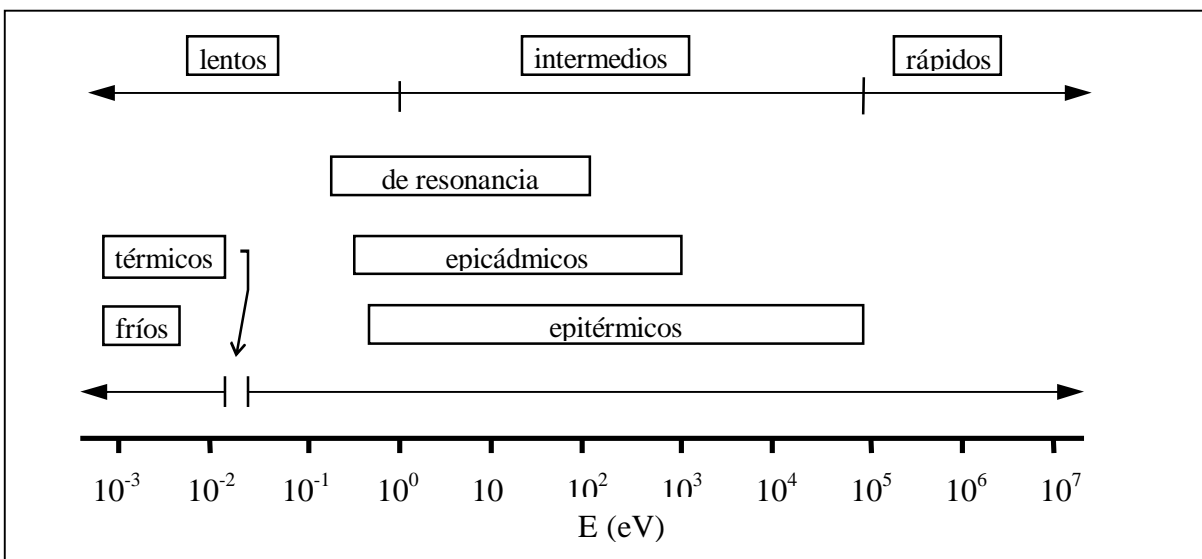
T : temperatura absoluta [K]

La ec. 2.2 permite calcular la energía más probable a una dada temperatura, esto es, $E_0 = kT$ que, para 20°C ($293,2 \text{ K}$), es $0,0253 \text{ eV}$. Tal como se adelantó, los neutrones en estas condiciones energéticas se denominan *térmicos* y su velocidad más probable es de $2200 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$.

El movimiento de los neutrones, sea ahora isotrópico o no, configura el *flujo neutrónico* Φ , es decir, el número de neutrones que atraviesa un área de 1 cm^2 por unidad de tiempo, expresado por tanto en $\text{s}^{-1}\cdot\text{cm}^{-2}$, caracterizado además por su espectro de energías. Los distintos dispositivos generadores de neutrones poseen flujos neutrónicos tipificados en magnitud y energías, y su conocimiento determina el empleo de tal fuente, la clase de reacciones factibles y los cálculos a realizar.

Una clasificación posible de los neutrones, de acuerdo a sus energías, es la siguiente:

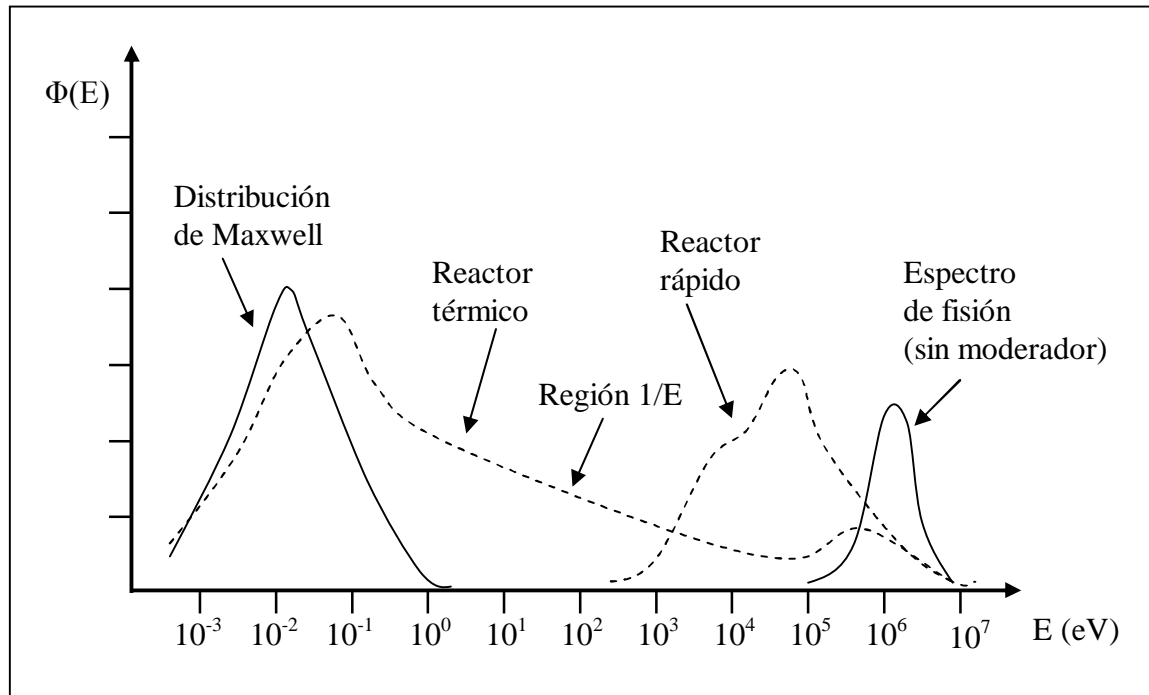
Figura 2.1: Espectro neutrónico descriptivo



La mayoría de las reacciones de captura radiante ocurre con neutrones lentos y de resonancia; y las reacciones umbral, en general con neutrones intermedios y rápidos.

Para un reactor nuclear, el flujo neutrónico vs. energía se puede representar como sigue:

Figura 2.2: Perfiles de espectros neutrónicos en reactores nucleares



Una manera usual de seleccionar los neutrones es interponiendo una lámina de cadmio de aproximadamente 1 mm de espesor, con lo cual se absorben casi completamente los neutrones de menos de 0,55 eV, dejando pasar más del 70 % de los neutrones de mayor energía. En particular se absorbe el 99,998% de los neutrones térmicos [Thomas et al., 2006].

El valor de 0,55 eV, llamado *energía de corte de cadmio*, establece una diferenciación entre los neutrones *subcádmicos* y *epicádmicos*. Se puede prácticamente eliminar así la componente térmica o lenta de las de mayor energía, de un flujo neutrónico de espectro amplio, como el de un reactor nuclear.

2.2. Activación neutrónica

Sobre la base de lo expuesto, la velocidad R de ocurrencia de las reacciones nucleares inducidas por neutrones, por cada núcleo, está expresada por la ecuación

$$\frac{R}{N} = \int_0^{\infty} \sigma(v) \Phi(v) dv \quad [s^{-1}] \quad (\text{ec. 2.3})$$

en la que

$\sigma(v)$: sección eficaz de captura [cm^2], dependiente de v

v : velocidad de los neutrones [$\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$]

$\Phi(v)$: flujo neutrónico [$\text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$]

N : número de núcleos irradiados

La mayoría de estas reacciones, tanto de captura radiante como umbral, llevan a la generación de algún radionucleido, cuya actividad A generada, luego de ciertos tiempos de irradiación y decaimiento, está dada por la siguiente ecuación:

$$A = \frac{m \theta N_A}{W} \left[\int_0^\infty \sigma(v) \Phi(v) dv \right] (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} \quad [\text{Bq}] \quad (\text{ec. 2.4})$$

Donde

m : masa del elemento irradiado [g]

W : Masa atómica relativa de dicho elemento [g/mol]*

θ : abundancia isotópica del nucleido precursor [relación adimensional, N° de átomos del nucleido / N° de átomos del elemento]

N_A : Número de Avogadro [mol^{-1}]

λ : constante de desintegración del radioisótopo inducido ($\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}$) [s^{-1}]

$T_{1/2}$: periodo de semidesintegración del radioisótopo [s]

t_i : tiempo de irradiación [s]

t_d : tiempo de decaimiento, luego de la irradiación [s]

No existen descripciones matemáticas exactas para la resolución de la integral de la ec. 2.4 en todo el ámbito de velocidades, pero distintos autores han propuesto diferentes *convenciones* postulando ciertas características y formas de expresión de $\sigma(v)$ y $\Phi(v)$, que permiten obtener soluciones aceptablemente exactas al cálculo de la velocidad de ocurrencia de reacciones nucleares. Las convenciones de Westcott [Ídem, 1958], de Stoughton y Halperin [Ídem, 1959], de Högdahl [Ídem, 1965] y la de Blaauw et al. [Ídem, 1991] son las más empleadas en el tratamiento teórico de los métodos paramétricos de análisis por activación neutrónica.

2.3. Convenciones sobre el flujo neutrónico y las reacciones de captura

Gran parte de la información volcada en esta sección fue condensada de distintas publicaciones [Montoya, 1995a y 1995b; Hernández et al., 1997; Thomas et al., 2005]

2.3.1. Convención de Högdahl [Högdahl, 1965]

Este tratamiento, relativamente simple, fue establecido para isótopos que se comportan idealmente en reacciones con neutrones de energías comprendidas aproximadamente entre cero y 1 eV. La convención se basa en el empleo muy difundido de la ya mencionada cubierta de cadmio de 1 mm de espesor, que permite sustraer el flujo neutrónico subcádmico del epicádmico, como una aproximación de la división térmico - epitérmico. Se postula la posibilidad de separar la ec. 2.3 en dos partes:

* Se adoptó el símbolo W en lugar del habitual M puesto que este último se utilizará para otro parámetro (ver pág. 27)

2. Marco teórico

$$\int_0^{\infty} \sigma(v)\Phi(v)dv = \int_0^{v_{Cd}} \sigma(v)\Phi(v)dv + \int_{v_{Cd}}^{\infty} \sigma(v)\Phi(v)dv \quad (\text{ec. 2.5})$$

Las dos integrales del segundo término de esta ecuación definen las velocidades de reacción con los flujos subcádmico y epicádmico respectivamente, siendo v_{cd} la velocidad de los neutrones correspondiente a la *energía de corte de cadmio*, que como ya se citó, es 0,55 eV. La primera de estas integrales, suponiendo un comportamiento ideal, se puede expresar en función de los datos de referencia σ_0 y v_0 , normalmente aceptados como correspondientes a *neutrones térmicos* ($v_0 = 2200 \text{ m.s}^{-1}$ y $E_0 = 0,025 \text{ eV}$), como una aproximación a lo que estrictamente corresponde a los neutrones subcádmicos:

$$\int_0^{v_{Cd}} \sigma(v)\Phi(v)dv = \sigma_0 v_0 \int_0^{v_{Cd}} n(v)dv \quad (\text{ec. 2.6})$$

Donde $n(v)$ es la densidad de neutrones de energía v

Si ahora se define el *flujo subcádmico* Φ_s como

$$\Phi_s = v_0 \int_0^{v_{Cd}} n(v)dv \quad (\text{ec. 2.7})$$

entonces, de las ecuaciones 2.6 y 2.7 se deduce la velocidad de reacción para el flujo subcádmico R_s que quedará expresada como

$$R_s = \sigma_0 \Phi_s \quad [\text{s}^{-1}] \quad (\text{ec. 2.8})$$

A partir de 0,55 eV [De Corte, citado en Blaauw, 1991] el espectro neutrónico *epicádmico*, se puede expresar en función de la energía neutrónica:

$$\int_{v_{Cd}}^{\infty} \sigma(v)\Phi(v)dv = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E)\Phi(E)dE \quad (\text{ec. 2.9})$$

Si el comportamiento resulta ideal, el flujo epicádmico $\Phi_e(E)$ se puede formular como:

$$\Phi_e(E) = \frac{\Phi(E_{ref}) E_{ref}}{E} \quad (\text{ec. 2.10})$$

tomando por conveniencia dimensional $E_{ref} = 1 \text{ eV}$.

Ahora se define la constante Φ_e (*flujo epicádmico convencional*) como:

$$\Phi_e = \Phi(E_{ref}) E_{ref} \quad (\text{ec. 2.11})$$

2. Marco teórico

Se define también la *integral de resonancia* I_0 , un análogo de la sección eficaz, pero para la región epicádmica:

$$I_0 = \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{E_{ref}}{E} dE \quad [\text{barn}] \quad (\text{ec. 2.12})$$

Entonces, la velocidad de reacción integrada para toda la región epicádmica del espectro neutrónico resulta

$$\frac{R_e}{N} = I_0 \Phi_e \quad (\text{ec. 2.13})$$

Finalmente, la velocidad de reacción por núcleo en todo el espectro será

$$\frac{R}{N} = \sigma_0 \Phi_s + I_0 \Phi_e \quad (\text{ec. 2.14})$$

Ahora bien, para aquellas posiciones de irradiación en las que el flujo neutrónico no sigue en la zona epitérmica un comportamiento ideal $1/E$, aparece el *factor de corrección* α , que se tratará con mayor detalle en la sección 2.3.5. El mencionado factor de corrección se incluye en las ecuaciones correspondientes como sigue [De Corte et al., 1981]:

$$\Phi_e(E) = \frac{\Phi_e(E_{ref}) E_{ref}^\alpha}{E^{1+\alpha}} \quad (\text{ec. 2.15})$$

En la que la constante E_{ref} toma el valor de 1 eV para mantener las dimensiones. Además, a la constante $\Phi_e(E_{ref})$ se la simboliza simplemente Φ_e , por lo que se estila expresar la ecuación 2.15 como

$$\Phi_e(E) = \Phi_e \frac{1 \text{ eV}^\alpha}{E^{1+\alpha}} \quad (\text{ec. 2.16})$$

Por su parte, entonces, tomando en cuenta la inclusión del factor α , la ecuación 2.14 queda expresada como

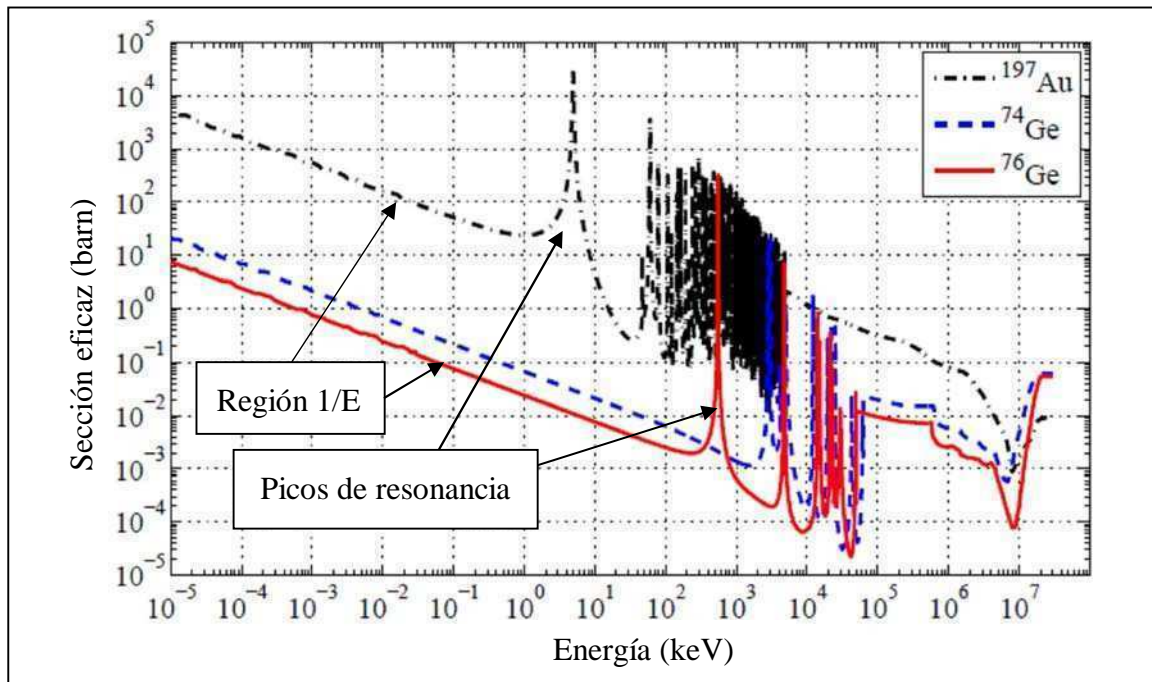
$$\frac{R}{N} = \sigma_0 \Phi_s + I_0(\alpha) \Phi_e \quad (\text{ec. 2.17})$$

Para efectuar en la práctica los cálculos, se hace necesario disponer de datos de tablas de σ_0 y de I_0 , además de determinar experimentalmente los flujos neutrónicos y el factor α . Las integrales de resonancia I_0 se pueden calcular a partir de la integración de la ecuación 2.12, pero la función $\sigma(E)$ está pobremente caracterizada, por lo que se prefiere determinar experimentalmente los valores de I_0 al igual que los de σ_0 .

Para acceder a la determinación experimental, se trabaja con monitores que poseen picos de resonancia de energías bien conocidas, que son muy pocos, por lo que se hizo necesario definir la llamada *energía efectiva de resonancia* \bar{E}_r , parámetro introducido por Ryves [ídem, 1969] y adaptado por Moens y colaboradores para el método del k_0 de análisis por activación neutrónica [Moens et al., 1979], descrito en la sección 3.3. \bar{E}_r es la energía de un solo pico virtual de resonancia que brinda la misma velocidad de reacción de activación que el conjunto de resonancias reales del nucleido considerado [De Corte et al., 1986].

A propósito de los picos de resonancia, a continuación se presenta un gráfico de sección eficaz en función de la energía de los neutrones, en la región $1/E$ y de resonancias, mostrando las secciones eficaces para reacciones (n, γ) para el oro y los dos principales isótopos del germanio, estudiados in extenso en esta Tesis [Meierhofer et al., 2010]

Figura 2.3: Gráfico de sección eficaz vs energía en la región de neutrones epitérmicos



Como el concepto de *energía efectiva de resonancia* implica una dependencia de la distribución del flujo neutrónico epitérmico, aparece la corrección del factor α , de tal manera que se cumple

$$\left[\frac{\bar{E}_r}{E_{ref}} \right]^{-\alpha} = \frac{I'_0(\alpha)}{I'_0} \quad (\text{ec. 2.18})$$

Como consecuencia de la definición de \bar{E}_r , se introdujo la noción de *integral de resonancia pura o reducida* I'_0 y a su análoga $I'_0(\alpha)$, que representa la contribución aislada de los picos de resonancia a la velocidad de ocurrencia de reacciones (n, γ) consideradas. Según esta concepción, la integral de resonancia reducida resulta:

$$I'_0 = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \left[\sigma(E) - \frac{\sigma_0 v_0}{v} \right] \frac{E_{ref}}{E} dE \quad (\text{ec. 2.19})$$

Y en el caso de desviaciones de la proporcionalidad a $1/E$, se convierte en

$$I'_0(\alpha) = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \left[\sigma(E) - \frac{\sigma_0 v_0}{v} \right] \frac{E_{ref}^{\alpha}}{E^{1+\alpha}} dE \quad (\text{ec. 2.20})$$

La ecuación 2.19 se puede simplificar expresándola como

$$I'_0 = I_0 - \int_{E_{Cd}}^{\infty} \frac{\sigma_0 v_0}{v} \cdot \frac{dE}{E} \quad (\text{ec. 2.21})$$

Luego, integrando y calculando para $E_{Cd} = 0,55$ eV, resulta

$$I'_0 = I_0 - 0,429 \cdot \sigma_0 \quad (\text{ec. 2.22})$$

(por el factor 0,429, ver ec. 2.25)

De manera análoga, la ecuación 2.19 se puede expresar como

$$I'_0(\alpha) = I_0(\alpha) - \int_{E_{Cd}}^{\infty} \frac{\sigma_0 v_0}{v} \cdot \frac{1 \text{ eV}^{\alpha} dE}{E^{1+\alpha}} \quad (\text{ec. 2.23})$$

e integrando resulta

$$I'_0(\alpha) = I_0(\alpha) + \frac{\sqrt{E_0} \cdot \sigma_0 \cdot 1 \text{ eV}^{\alpha}}{\left(\frac{1}{2} + \alpha\right) \cdot E_{Cd}^{\alpha + \frac{1}{2}}} \quad (\text{ec. 2.24})$$

Calculando, según la bibliografía:

$$I'_0(\alpha) = I_0(\alpha) + \frac{0,429 \cdot \sigma_0 \cdot 1 \text{ eV}^{\alpha}}{(1 + 2\alpha) \cdot E_{Cd}^{\alpha}} \quad (\text{ec. 2.25})$$

Aquí vale la pena observar que el factor 0,429, que consta en la mayor parte de la literatura sobre el tema, surge del cálculo de $2 \cdot \sqrt{E_0/E_{Cd}}$, tomando el valor de $E_0 = 0,0253$ eV y $E_{Cd} = 0,55$ eV. Otros autores (por ejemplo De Corte et al., 1979a y 1979b) toman $E_0 = 0,025$ eV, con el que dicha constante resulta 0,426. En esta Tesis hemos adoptado el valor 0,429 por considerarlo más riguroso, y con él se realizaron todos los cálculos subsecuentes.

2. Marco teórico

Ahora, reemplazando en la ecuación 2.18, deviene

$$\bar{E}_r^\alpha = \frac{I_0(\alpha) + \frac{0,429 \cdot \sigma_0 \cdot 1 \text{ eV}^\alpha}{(1+2\alpha) \cdot E_{Cd}^\alpha}}{I_0 - 0,429 \cdot \sigma_0} \quad (\text{ec. 2.26})$$

Luego, despejando $I_0(\alpha)$ se obtiene

$$I_0(\alpha) = \frac{I_0 - 0,429 \cdot \sigma_0}{\bar{E}_r^\alpha} + \frac{0,429 \cdot \sigma_0 \cdot 1 \text{ eV}^\alpha}{(1+2\alpha) \cdot E_{Cd}^\alpha} \quad (\text{ec. 2.27})$$

Como se observará, y volviendo a las ecuaciones 2.14 y 2.27, con el fin de realizar los cálculos correspondientes es necesario conocer los valores de tabla σ_0 ; I_0 y \bar{E}_r para cada uno de los nucleidos involucrados, y por su parte, para las posiciones de irradiación empleadas, se hace necesario determinar experimentalmente Φ_s ; Φ_e y α .

Finalmente, tomando en cuenta estas consideraciones, la ecuación 2.14 se rescribe así:

$$\frac{R}{N} = \sigma_0 \Phi_s + I_0(\alpha) \Phi_e \quad (\text{ec. 2.28})$$

2.3.2. Convención de Westcott [Westcott, 1955, 1958]

Esta descripción resulta más rigurosa que la anterior, y se aplica a flujos neutrónicos altamente *termalizados*, esto es $\Phi_{\text{térmico}} / \Phi_{\text{epitérmico}} > 100$. En este caso no es necesario que las secciones eficaces sigan un comportamiento ideal proporcional a $1/E$ en ningún ámbito del espectro neutrónico, aunque, como se explicó, coloca la situación experimental en casos más restrictivos, alcanzable sólo en determinadas posiciones de irradiación. Según este formalismo, el flujo neutrónico dependiente de la energía se expresa como

$$\Phi(E) = \Phi_t \frac{E}{(kT)^2} e^{-E/kT} + \Phi_e \frac{\Delta(E/kT)}{E} \quad (\text{ec. 2.29})$$

donde

Φ_t : $\Phi_{\text{térmico}}$

Φ_e : $\Phi_{\text{epitérmico}}$

$\Delta(E/kT)$: función de empalme entre los flujos térmico y epitérmico: $\begin{cases} \Delta=1, & \text{para } E > \mu kT \\ \Delta=0, & \text{para } E < \mu kT \end{cases}$

μ : constante empírica que define el valor de μkT , límite inferior de la componente $1/E$. Su valor varía según el tipo de reactor entre 3,7 y 5. Se acepta este último para la mayoría de los reactores de investigación. [Simonits, 1976; Thomas, 2005]

Por otra parte, la integral de resonancia se define con la siguiente ecuación:

$$I = \int_0^{\infty} \sigma(E) \Delta(E/kT) \frac{dE}{E} \quad (\text{ec. 2.30})$$

que, por razones de conveniencia se separa en

$$I = I' + \int_{\mu kT}^{\infty} \frac{g(T) \sigma_0 v_0}{v} \frac{dE}{E} \quad (\text{ec. 2.31})$$

donde

I' : integral de resonancia *pura* o *reducida*, tal como fue expresada en la ecuación 2.19

El segundo término de la ecuación 2.29 representa la sección eficaz de captura proporcional a $1/E$, en el espectro neutrónico a partir de la energía μkT . Por su parte $g(T)$ es un factor de corrección que toma en cuenta desviaciones en el comportamiento $1/E$ de $\sigma(E)$, definiéndose como:

$$g(T) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{T}{T_0}} \frac{1}{\sigma_0} \int_0^{\infty} \sigma(E) \frac{E}{kT} e^{-\frac{E}{kT}} dE \quad (\text{ec. 2.32})$$

Para un nucleido ideal, en el que $\sigma(v) \propto (1/v)$, resulta $g(T)=1$. Se puede expresar también como:

$$g(T) = \frac{\hat{\sigma}_m}{\sigma_0} \quad \text{con } \hat{\sigma}_m : \text{Sección eficaz para un espectro puramente maxwelliano}$$

Westcott ha publicado los valores de $g(T)$ para diferentes nucleidos que se desvían del comportamiento $1/v$, a distintas temperaturas neutrónicas, pero esto fue insuficiente para implementar debidamente los métodos paramétricos de análisis por activación, por lo que otros autores propusieron otras metodologías.

Unificando, la velocidad R de reacción por núcleo está expresada por

$$R = \hat{\sigma} \Phi_w \quad (\text{ec. 2.33})$$

En la que

$\hat{\sigma}$: sección eficaz efectiva o de Westcott, promediada para el espectro real de irradiación, definida como

$$\hat{\sigma} = \sigma_0 [g(T) + r s_0 \sqrt{T/T_0}] \quad (\text{ec. 2.34})$$

en la que aparecen los factores

$$r = \frac{\varphi}{1 + \varphi b} \quad \text{y} \quad s_0 = \frac{2I'}{\sigma_0 \sqrt{\pi}}$$

con

$$b = 4 / (\mu\pi)^{1/2} \quad \text{y} \quad \varphi = \Phi_e / \Phi_t$$

que también están incorporados en la definición de Φ_w , flujo neutrónico de Westcott:

$$\Phi_w = \Phi_0 (1 + b\varphi) \quad (\text{ec. 2.35})$$

en la que Φ_0 es una constante

2.3.3. Convención de Stoughton y Halperin [Stoughton y Halperin, 1959]

Este modelo resulta más simple que el de Westcott y más exacto que el de Högdahl. Sus autores plantean que la velocidad de ocurrencia de reacciones nucleares por núcleo en un reactor nuclear, irradiando una sustancia en muy pequeña cantidad o bien muy diluida, en lo referente a reacciones con neutrones térmicos o epitérmicos (pero exceptuando los rápidos) está dada por la siguiente ecuación:

$$\frac{R}{N} = g(T) \sigma_0 \Phi_t + I'_0 \Phi_e = \sigma_t \Phi_t + I_0 \Phi_e \quad (\text{ec. 2.36})$$

con

$$\sigma_t = g(T) \sigma_0 + \frac{\Phi_e}{\Phi_t} \int_{5E_m}^{E_{cd}} \sigma(E) \frac{dE}{E} = g(T) \sigma_0 + \frac{\Phi_e}{\Phi_t} (I'_0 - I_0) \quad (\text{ec. 2.37})$$

y definiendo al flujo térmico convencional como:

$$\Phi_t = v_0 \int_0^{\infty} n_m(v) dv \quad (\text{ec. 2.38})$$

Siendo

n_m : densidad neutrónica térmica o maxwelliana

$E_m = kT$ energía correspondiente a la velocidad modal de la distribución maxwelliana

$E_{cd} = 0,55$ eV energía de corte de cadmio

Se define entonces la *sección eficaz efectiva* como:

$$\sigma_{ef} = g(T) \sigma_0 + \frac{\Phi_e}{\Phi_t} I'_0 = \sigma_t \frac{\Phi_e}{\Phi_t} I_0 \quad (\text{ec. 2.39})$$

de manera tal que resulta

$$\frac{R}{N} = \sigma_t \Phi_t \quad (\text{ec. 2.40})$$

Las condiciones impuestas en este modelo son:

- 1) El espectro térmico o maxwelliano se extiende en todo el espectro neutrónico
- 2) El flujo epitérmico comienza en $5 E_m$ y es proporcional a $1/v$

De esta manera, se puede expresar la velocidad de ocurrencia de reacciones por núcleo, considerando el flujo compuesto como se expuso, de la siguiente manera:

$$\frac{R}{N} = \int_0^{\infty} \sigma(v) \Phi(v) dv = \int_0^{\infty} \sigma(v) \Phi_m(v) dv + \int_{5E_m}^{\infty} \sigma(E) \Phi(E) dE \quad (\text{ec. 2.41})$$

Si consideramos que el flujo térmico se puede expresar en forma general de tal forma que resulta:

$$\sigma(v) \Phi(v) = g(T) \sigma_0 v_0 n(v) \quad (\text{ec. 2.42})$$

entonces, el cociente R/N se puede formular como:

$$\frac{R}{N} = g(T) \sigma_0 v_0 n_t + \Phi_e \int_{5E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{dE}{E} \quad (\text{ec. 2.43})$$

Pudiéndose expresar la integral de esta ecuación como:

$$\int_{5E_m}^{\infty} \sigma(E) \frac{dE}{E} = \int_{5E_m}^{E_{Cd}} \sigma(E) \frac{dE}{E} + \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{dE}{E} \quad (\text{ec. 2.44})$$

Resultando entonces la conocida expresión en la que están representados todos los componentes del flujo neutrónico y que se empleará en adelante en esta Tesis, en lo que se refiere al tratamiento y aplicación del método paramétrico de análisis por activación del k_0 :

$$\frac{R}{N} = \sigma_0 \Phi_t + \Phi_e [\Delta I + I] \quad (\text{ec. 2.45})$$

2.3.4. Convención de Blaauw - Bode - De Bruin [Blaauw et al., 1991]

Planteadas por los autores para ser empleadas con el método del k_0 en análisis por activación neutrónica, empleando reacciones (n,γ) para las cuales el factor $g(T)$ de Westcott sea diferente de la unidad (es decir, no sigue la proporcionalidad con $1/v$) y no haya resonancias a valores menores que 0,35 eV. Aquí, la velocidad de reacción por núcleo se separa en dos factores:

$$\frac{R}{N} = \int_0^{\infty} \sigma(v) \Phi(v) dv = \int_0^{\infty} \frac{\sigma_0 v_0}{v} \Phi(v) dv + \int_0^{\infty} \left[\sigma(v) - \frac{\sigma_0 v_0}{v} \right] \Phi(v) dv \quad (\text{ec. 2.46})$$

Se plantea aquí el desdoblamiento de la sección eficaz en lugar de la expresión del flujo neutrónico como en las anteriores convenciones. Así, la sección eficaz queda expresada por dos términos, el primero referido al comportamiento ideal y el segundo a los picos de resonancia.

Se define un *flujo convencional total* como

$$\Phi_{tot} = E_0 \int_0^{\infty} n(E) dE \quad (\text{ec. 2.47})$$

con la que la ecuación 2.46 queda expresada como

$$\frac{R}{N} = \sigma_0 \Phi_{tot} + \int_0^{\infty} \left[\sigma(v) - \frac{\sigma_0 v_0}{v} \right] \Phi(v) dv \quad (\text{ec. 2.48})$$

Se postula entonces que, si las reacciones (n,γ) consideradas no poseen resonancias antes de 0,35 eV, el integrando de la ecuación 2.48 es cero, por lo que se puede reemplazar el flujo $\Phi(E)$ por el flujo epitérmico de la ecuación 2.15. Junto a esta consideración, se define una *integral de resonancia alternativa* $I_0''(\alpha)$ expresada como sigue

$$I_0''(\alpha) = \int_0^{\infty} \left[\sigma(E) - \frac{\sigma_0 E_0}{E} \right] \frac{E_{ref}^{\alpha}}{E^{1+\alpha}} dE \quad (\text{ec. 2.49})$$

enunciando entonces:

$$\frac{R}{N} = \sigma_0 \Phi_{tot} + I_0''(\alpha) \Phi_e \quad (\text{ec. 2.50})$$

resultando Φ_e tal como se definió en la ecuación 2.15.

Esta convención es de hecho en una variante de la de Högdahl, por cuanto la ecuación 2.50 resulta equivalente a la 2.28

$$\frac{R}{N} = \sigma_0 \Phi_s + I_0(\alpha) \Phi_e = \sigma_0 \Phi_{tot} + I_0''(\alpha) \Phi_e \quad (\text{ec. 2.51})$$

Según esta formulación, la relación entre $I_0''(0)$ y $I_0''(\alpha)$ está dada por

$$\left[\frac{\bar{E}_r}{E_{ref}} \right]^{-\alpha} = \frac{I_0''(\alpha)}{I_0''(0)} \quad (\text{ec. 2.52})$$

quedando expresada de manera análoga a la ecuación 2.18, correspondiente a la convención de Högdahl.

Por otro lado, $I''_0(\alpha)$ resulta idéntica a $I'_0(\alpha)$ para aquellas reacciones (n, γ) que no posean resonancias entre 0,35 eV y 0,55 eV, según se deduce de las ecuaciones 2.26 y 2.49. Los valores de I''_0 se obtienen a partir de los datos de tabla I_0 , según la relación

$$I''_0 = I_0 - 0,429 \sigma_0 \quad (\text{ec. 2.53})$$

válida para todos los nucleidos con $g(T) = 1$.

2.3.5. El comportamiento del flujo epicádmico y el factor α

Como se mencionó en la sección 2.3.1, en la convención de Högdahl se define el flujo epicádmico según la ecuación 2.10, siguiendo una proporcionalidad directa con $1/E$. Se ha demostrado que las diferentes posiciones de irradiación en el núcleo de un reactor de investigación, conforman un flujo neutrónico que, en general, se aparta de tal comportamiento $1/E$ en mayor o menor medida [De Corte et al., 1979a, 1979b, 1982; Moens et al., 1979].

De Corte et al., 1981, han definido otra forma de expresión del flujo epitérmico, indicada en la ecuación 2.15, dependiente de $1/E^{1+\alpha}$. De esta forma se ha planteado un modelo, en principio empírico, que se ajusta mucho mejor a los resultados experimentales. El sustento teórico correspondiente [Op de Beeck, 1985a, 1985b] sitúa al factor α dentro de los parámetros típicos de los reactores nucleares, que da cuenta de la desviación del comportamiento $1/E$. En principio, tal como se muestra en la figura 2.4. y aun mejor en la 2.5. el espectro neutrónico se “endurece” en posiciones de irradiación más cercanas al núcleo, lo cual es lógico por haber menos moderación; esto resulta en factores $\alpha < 0$. Al alejarse del núcleo y haber mayor moderación de los neutrones, el factor α se vuelve mayor. El factor α varía entonces de manera importante según la posición de irradiación, y resulta prácticamente independiente de la energía de los neutrones. Puede adquirir valores negativos o positivos entre aproximadamente -0,2 y 0,2.

Es interesante analizar la variación de los valores de α obtenidos en un reactor muy bien caracterizado, como lo es el reactor Thetis del INW de Gent, Bélgica. [Verheijke et al., 1988] (figura 2.5). Como se observa, a medida que las posiciones de irradiación son más cercanas al núcleo y el espectro epitérmico se vuelve consecuentemente más “duro”, los valores de alfa disminuyen y se tornan negativos. El comportamiento observado en el reactor RA-6, del Centro Atómico Bariloche, en el que se realizó gran parte de las experiencias de esta Tesis, resulta similar (ver sección 5.4.1).

Figura 2.4: Esquema de un espectro neutrónico de reactor moderado con agua, a 20 °C

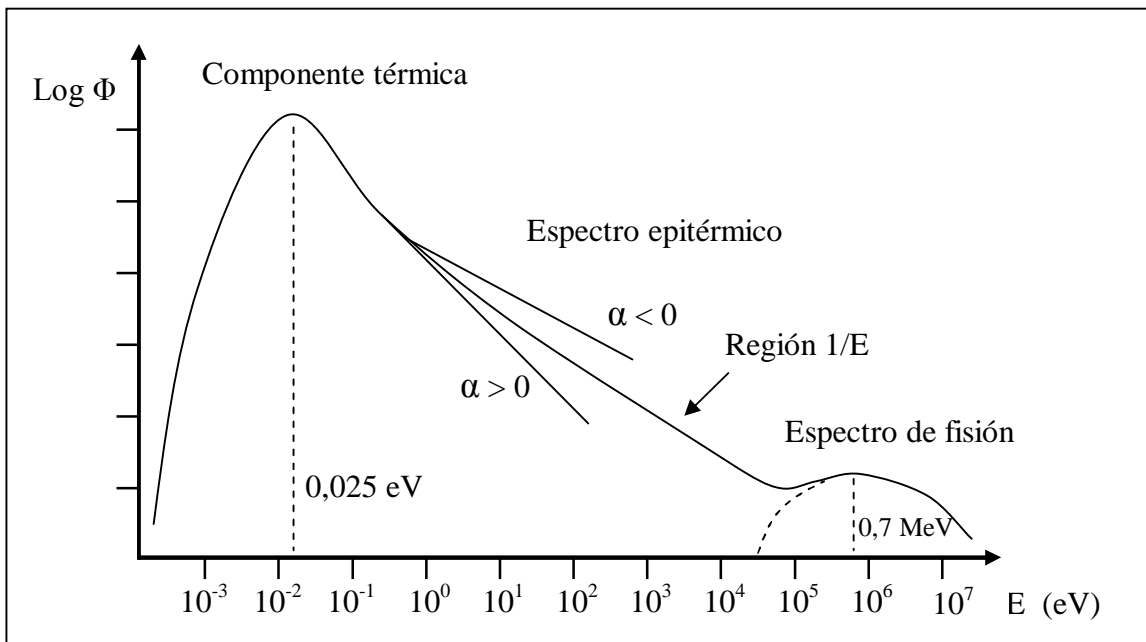
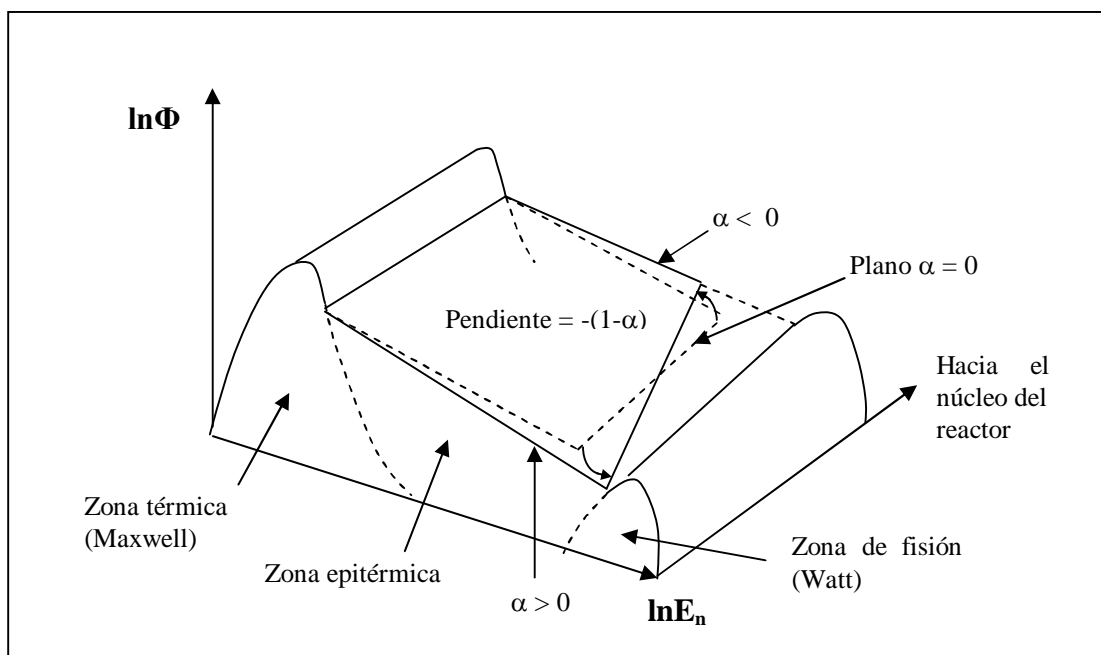


Figura 2.5: Comportamiento del factor α en el reactor Thetis, Bélgica

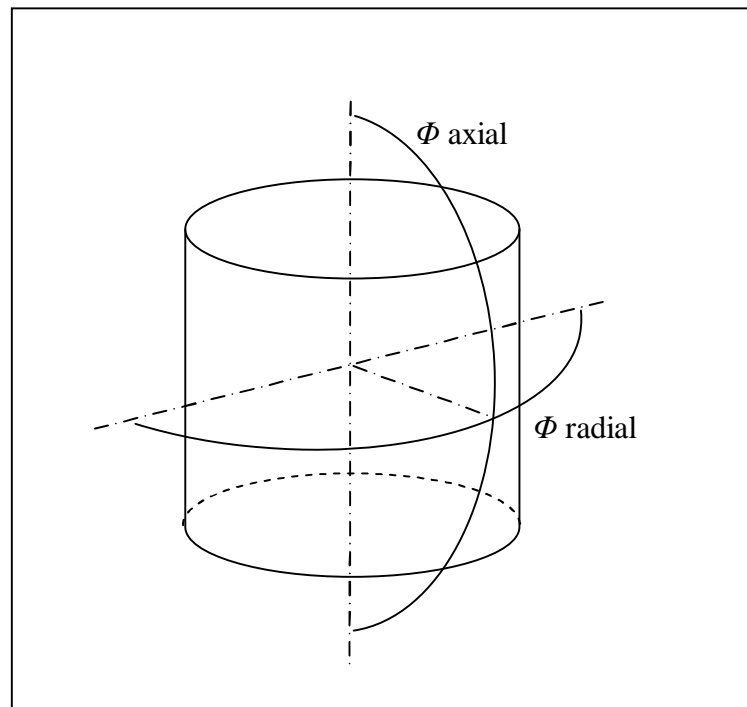


Tanto el factor α como la relación de flujos f son necesarios en los cálculos correspondientes a la aplicación del método del k_0 , y puesto que ambos son valores propios de cada posición de irradiación del reactor empleado, se hace imprescindible su determinación experimental con suficientes exactitud y precisión. Los métodos de determinación de los factores f y α se tratarán en forma detallada en las secciones 3.5 y 3.6, y se volverá sobre el tema en la sección 5.4 exponiendo resultados experimentales.

2.3.6. El comportamiento general del flujo neutrónico en un reactor

Las intensidades de las componentes térmicas y rápidas del flujo neutrónico en un reactor se distribuyen geoméricamente siguiendo una serie de formalismos físicos y matemáticos de los modelos de reactores finitos y heterogéneos. En forma descriptiva y simplificada, el flujo de un reactor cilíndrico se distribuye axial y radialmente según lo que muestra la figura 2.6.

Figura 2.6: Distribución axial y radial del flujo neutrónico Φ en un reactor cilíndrico



Esta distribución debe tenerse en cuenta toda vez que se realiza un experimento de activación, puesto que las variaciones longitudinal y radial del flujo en la misma cápsula de irradiación pueden ser significativas. Previo a la realización de las determinaciones expuestas en los capítulos 4 y 5 de esta Tesis, se han realizado experiencias de caracterización de los flujos neutrónicos térmicos y epitérmicos que incluyeron determinaciones de la variación longitudinal del flujo en las cápsulas de irradiación. De ellas surgieron factores de corrección propios para cada posición de irradiación en función de la distancia a la base de la cápsula. La variación radial, en cambio, resultó insignificante.

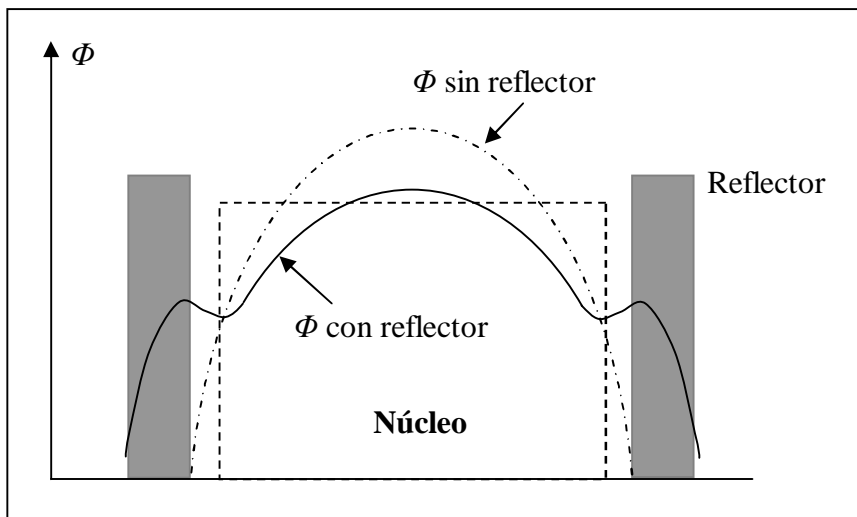
Otro factor que es conocido en la física de reactores [Canteach, 2003, pág147] es el efecto que produce el reflector de grafito que suelen poseer los reactores de investigación con el propósito de mejorar el balance de los neutrones térmicos. En efecto, los neutrones que se difunden hacia el exterior del núcleo tienden a perderse, por lo que si se dispone de una barrera de grafito rodeando el núcleo, una buena proporción de dichos neutrones es reflejada hacia núcleo incrementando el flujo localmente, tal como se muestra en la figura 2.7.

En la sección 4.1.5 se describen los reactores RA-3 y RA-6 de los Centros Atómicos Ezeiza y Bariloche, en los que se han realizado todas las experiencias de esta Tesis. En las figuras

4.11 y 4.12 se muestran los elementos de grafito que constituye el reflector de los núcleos de ambos reactores. Se observa que existen algunas posiciones de irradiación próximas al reflector, para aprovechar el efecto mencionado. Estas posiciones proveen un flujo más termalizado que las posiciones centrales y aún suficientemente alto.

Las posiciones de irradiación se elijen en lugares del núcleo donde los flujos sean óptimos, tanto en intensidad como en las características espectrales buscadas. En el centro del núcleo se obtienen los mayores valores de flujos térmico y rápido, por lo que esta posición se emplea especialmente para la producción de radioisótopos. Las posiciones más termalizadas, cerca o incluso detrás del reflector, se emplean para favorecer las reacciones (n,γ) frente a las reacciones umbral.

Figura 2.7: Efecto del reflector de grafito en el flujo neutrónico de un reactor



3. Análisis por activación neutrónica

3.1. Generalidades

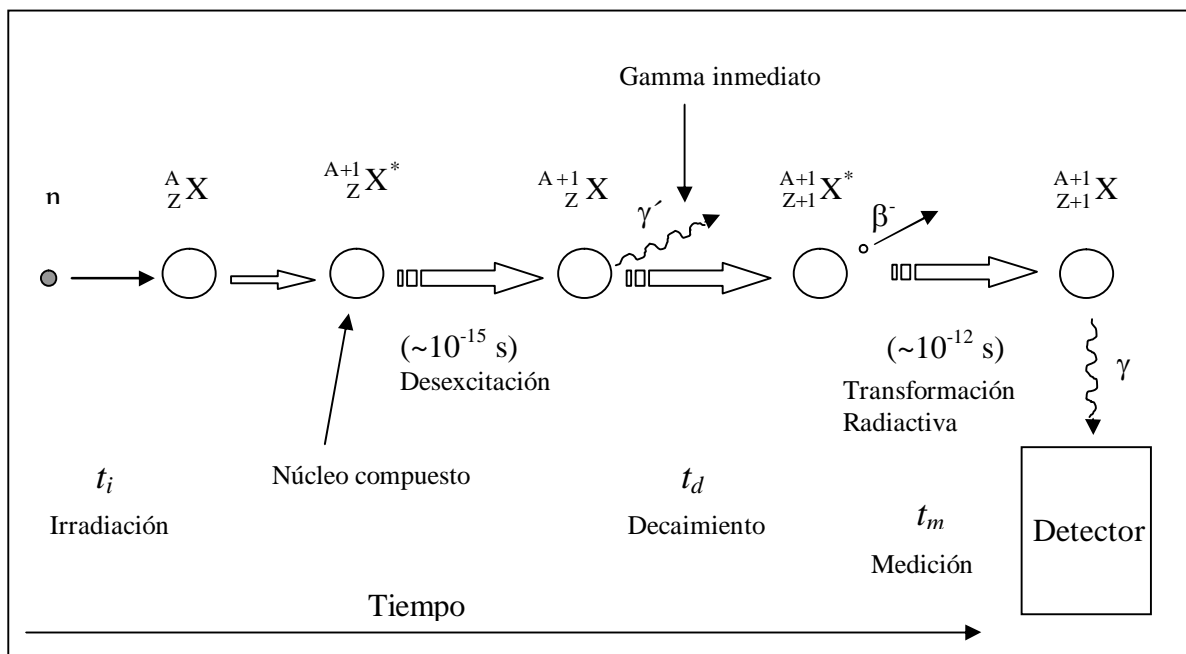
El análisis por activación neutrónica es una de las llamadas técnicas analíticas nucleares, en las que se hacen intervenir los núcleos atómicos del analito a través de procesos de excitación o reacción nuclear, cuya manifestación, por emisión de determinado tipo de radiación, se traduce en alguna señal mensurable proporcional a la concentración del analito en estudio.

Otras técnicas analíticas nucleares son el análisis por gammas inmediatos (prompt gamma) y el menos difundido análisis por activación con protones u otras partículas cargadas. Por razones de similitud metodológica o instrumental, se estila vincular a estas técnicas con otras en las que no interviene el núcleo atómico de ninguna manera, como el análisis por emisión de radiación X inducida por partículas, conocida por su sigla en inglés PIXE (Particle Induced X-Ray Emission); la fluorescencia de rayos X en sus diversas modalidades o el análisis por microsonda electrónica o EMPA (Electron Microprobe Analysis). Estas últimas técnicas emplean diversos modos de excitación de los electrones atómicos para la emisión de rayos X. Algunas veces se las menciona como “técnicas conexas o relacionadas” a las nucleares.

Los fundamentos del análisis por activación neutrónica se refieren a la inducción de reacciones nucleares sobre los núcleos de las especies presentes, de tal manera de producir núcleos radiactivos cuyas radiaciones son medidas posteriormente. Se obtiene así información acerca de los diferentes nucleidos precursores y sus concentraciones. Esto último significa que pueden realizarse análisis cualitativo y cualitativo multielemental en la misma operación.

Un modelo representativo de los eventos, para una reacción del tipo (n,γ) , podría exponerse de la siguiente manera:

Figura 3.1: Secuencia de sucesos y operaciones en análisis por activación neutrónica instrumental



El primer rayo gamma emitido (γ) es el gamma inmediato (prompt gamma) que se detecta, en el caso de la técnica analítica homónima, en forma simultánea a la irradiación. En cambio, en análisis por activación se mide la segunda emisión de rayos gamma, proveniente de la transformación radiactiva, transcurrido un tiempo de decaimiento (t_d) después de finalizada la irradiación, por lo que irradiación y medición se realizan en actos separados, cada una con sus propios tiempos.

Tanto en la técnica de prompt gamma como en análisis por activación se emplean sistemas de espectrometría gamma de alta resolución, basados en detectores semiconductores de Ge hiperpuro y analizadores multicanal de altura de pulsos como espectrómetro.

Tal como se expuso antes, la actividad A inducida de un radioisótopo obtenido por una reacción nuclear se puede calcular a partir de la ecuación 2.4, que se expresa de manera simplificada (válida para partículas monoenergéticas) y a fin de la irradiación ($A_0, t_d = 0$) como:

$$A_0 = \frac{m \theta N_A}{W} \sigma \Phi S \quad (\text{ec. 3.1})$$

en la que

$S = (1 - e^{-\lambda t_i})$ factor de saturación o de crecimiento durante el tiempo t_i de irradiación

Φ : flujo de partículas bombardeantes.

La determinación experimental de A se realiza con sistemas de espectrometría gamma de alta resolución basados en detectores semiconductores de GeHP asociados a analizadores multicanal de altura de pulsos y a software apropiado para procesamiento de datos. Con estos equipos se obtienen espectros gamma a partir de los cuales se determinan las áreas de los picos de interés.

El cálculo de la actividad A_0 del radioisótopo medido, referida al fin de la irradiación, se realiza con la siguiente ecuación general:

$$A_0 = \frac{C M}{D t_v \varepsilon_\gamma i_\gamma} \quad (\text{ec. 3.2})$$

donde,

C : área neta del pico gamma elegido, corregida por fondo y tiempo muerto (la sustracción del fondo y la corrección por tiempo muerto las realiza el software del analizador multicanal de acuerdo a formulaciones usuales empleadas en espectrometría gamma [Knoll, 2000, pág. 691])

t_v : tiempo vivo de medición prefijado, de cuya extensión hasta t_m surge la corrección automática de las pérdidas por tiempo muerto que realiza el espectrómetro multicanal.

ε_γ : eficiencia del sistema de medición para la energía del pico γ elegido.

i_γ : intensidad de emisión de fotones γ del pico elegido.

$D = e^{-\lambda t_d}$ factor de decaimiento durante el tiempo t_d transcurrido entre el fin de la irradiación y el inicio de la medición.

M es el factor de corrección por decaimiento durante la medición^{*}, de tiempo real t_m , y se calcula con:

$$M = \frac{\lambda t_m}{1 - e^{-\lambda t_m}} \quad (\text{ec. 3.3})$$

3.2. Modalidades del análisis por activación neutrónica

Existen diferentes modalidades de trabajo en análisis por activación neutrónica, clasificables según la dificultad que ofrece la muestra en estudio o la forma de diseñar la experiencia y procesar los resultados. De esta forma, podemos considerar al “análisis por activación neutrónica instrumental” (AANI) cuando se obtiene el espectro gamma de la muestra luego de la irradiación, sin procesamiento alguno más que su acondicionamiento físico para la medición.

En cambio, cuando por alguna causa el espectro gamma es demasiado complejo, o la actividad de un componente provoca un fondo espectral demasiado alto, se torna necesario realizar una separación radioquímica de alguno o de un grupo de constituyentes de la muestra irradiada, en ese caso se habla de “análisis por activación neutrónica con separación radioquímica” o, resumidamente “análisis por activación neutrónica radioquímico” (AANR). Para esta última modalidad es necesario contar además con instalaciones y personal capacitado y autorizado para aplicar separaciones radioquímicas.

Si se desea practicar AANI únicamente, puede contarse sólo con el equipamiento de espectrometría gamma, pero es muy conveniente el uso de un sistema neumático para realizar irradiaciones cortas. Esto es así pues el único control que se puede ejercer en esta modalidad acerca de las interferencias espectrales es a través de los tiempos de irradiación y decaimiento, y es preferible en ese caso realizar irradiaciones cortas (minutos de duración) y trabajar preferentemente con los radioisótopos de períodos cortos y medios (segundos a horas).

Otra clasificación metodológica de las modalidades del AAN es según el diseño conceptual de la experiencia y la forma de obtener los resultados de concentración elemental. Esto es, existe el ya perimido “método absoluto”, basado en el cálculo de la masa o de la concentración del analito a partir de la ecuación 3.1, determinando experimentalmente la actividad del radioisótopos y el flujo neutrónico. La actividad se establece, como se explicó, a partir de mediciones por espectrometría gamma empleando un patrón del mismo radionucleido o una curva de calibración de eficiencia vs. energía gamma, y aplicando la ecuación 3.2. El flujo neutrónico se obtiene irradiando y midiendo la actividad inducida en monitores de flujo adecuados. El resto de los parámetros y constantes nucleares se obtiene individualmente de tablas, lo que conlleva el riesgo de cometer errores altos por suma de incertidumbres y por inconsistencia entre los datos empleados, tal como fue planteado.

En contraposición con esta metodología, los “métodos comparativos”, fundamentados en el empleo de patrones o comparadores, evitan ese tipo de errores. En el método comparativo directo se utiliza un patrón conteniendo los elementos químicos en estudio en concentraciones bien conocidas. El patrón puede ser una sustancia sólida simulando las características físicas de la muestra o una solución acuosa. Una masa conocida del patrón se irradia junto a la muestra,

^{*} Este es el parámetro que se nombrará con el símbolo M , tal como fue anunciado en la pág. 11

con lo que se asegura que el flujo neutrónico es el mismo, al igual que el tiempo de irradiación. Con estas condiciones, cada una de las actividades A_0 del mismo radionucleido generado en la muestra y en patrón, referidas al fin de la irradiación, cumplen con las ecuaciones 3.1 y 3.2, siendo las únicas diferencias, evidentemente, los conteos de las áreas medidas, las masas involucradas y los tiempos de decaimiento hasta y durante la realización de las mediciones correspondientes. Con lo expuesto, si se realiza el cociente de actividades según las ecuaciones 3.1 y 3.2, se obtienen las siguientes relaciones:

$$\frac{A_{0,x}}{A_{0,p}} = \frac{C_x D_p M_x t_{v,p}}{C_p D_x M_p t_{v,x}} = \frac{m_x}{m_p} \quad (\text{ec. 3.4})$$

en la que los subíndices x y p corresponden a la muestra y al patrón, respectivamente.

Es obvio mencionar que el resto de las magnitudes involucradas, tanto las constantes como el flujo neutrónico y los factores de saturación, se cancelan en el cociente por ser iguales, disminuyendo sensiblemente el riesgo de errores y la incertidumbre del resultado final. La desventaja de este método es la necesidad de contar con patrones adecuados para irradiar junto con las muestras, que en análisis multielemental de, a veces, más de 20 elementos químicos, puede resultar un inconveniente difícil y/o costoso de resolver.

La última metodología planteada como método comparativo es el caso del análisis paramétrico llamado “método del k_0 ”. Esta modalidad se puede considerar a mitad de camino entre las dos anteriores, por cuanto emplea como patrones apenas una o dos laminillas de metales puros o aleaciones de composición conocida llamadas “comparadores” y ciertas constantes agrupadas con relativamente baja incertidumbre que sortean las incertidumbres individuales presentadas en el método absoluto. Puesto que este método es una parte significativa en el desarrollo de esta Tesis, se ha decidido dedicarle una explicación detallada.

3.3. El método del k_0

Esta modalidad de análisis por activación paramétrico fue desarrollada por el equipo de Simonits, de Corte y Hoste [Simonits et al., 1975], del Central Research Institute for Physics, de Hungría y de la Universidad de Gent, Bélgica, y ha supuesto un avance sustancial al análisis por activación neutrónica. Este método reúne la simplicidad operativa de los métodos absolutos y la precisión de los relativos por cuanto, como ya se adelantó, empleando uno o dos materiales simples como comparadores, se puede cuantificar una gran cantidad de elementos, sin necesidad de recurrir al empleo de complejos patrones multielementales.

La definición del factor k_0 se basa en el desarrollo teórico que surge de reunir a aquellas constantes propias del isótopo precursor y su producto de activación, normalizando adecuadamente, como se verá a continuación.

Como se expuso en la sección 2.2. (ec. 2.4) y tomando en cuenta la convención de Högdahl (ec. 2.28); se puede escribir la ecuación 3.1 como sigue:

3. Análisis por activación neutrónica

$$A_0 = \frac{C M}{D t_v \varepsilon_\gamma i_\gamma} = \frac{m \theta N_A}{W} [\sigma_0 \Phi_s + I_0(\alpha) \Phi_e] S \quad (\text{ec. 3.5})$$

Podemos entonces reformular esta ecuación, dividiendo ambos miembros por $\sigma_0 \Phi_e$:

$$\frac{C M}{D t_v \varepsilon_\gamma i_\gamma} \frac{1}{\sigma_0 \Phi_e} = \frac{m \theta N_A}{W} \left[\frac{\Phi_s}{\Phi_e} + \frac{I_0(\alpha)}{\sigma_0} \right] S \quad (\text{ec. 3.6})$$

Ahora definimos los siguientes parámetros:

$$Q_0 = \frac{I_0}{\sigma_0} \quad \text{y a su análogo} \quad Q_0(\alpha) = \frac{I_0(\alpha)}{\sigma_0} \quad (\text{ec. 3.7})$$

y el siguiente parámetro

$$F = f + Q_0(\alpha) \quad (\text{ec. 3.8})$$

siendo $f = \frac{\Phi_s}{\Phi_e}$ la relación usual de flujos subcádmico a epicádmico.

Entonces, describimos la ecuación 3.6 como sigue:

$$\frac{C M}{D t_v \varepsilon_\gamma i_\gamma} \frac{1}{\sigma_0 \Phi_e} = \frac{m \theta N_A}{W} F S \quad (\text{ec. 3.9})$$

Consideremos ahora la irradiación en forma conjunta (en la misma posición de irradiación y durante el mismo tiempo) de una muestra incógnita de masa m , en la que están comprendidas masas incógnitas m_j de los elementos a determinar, y una masa m_c de un elemento químico empleado como “comparador”. En esas condiciones se podrían expresar, para cada uno de los materiales irradiados, ecuaciones análogas a la ecuación 3.9, es decir:

$$\frac{C_c M_c}{D_c t_{v,c} \varepsilon_{\gamma,c} i_{\gamma,c}} \frac{1}{\sigma_{0,c} \Phi_e} = \frac{m_c \theta_c N_A}{W_c} F_c S_c \quad (\text{ec. 3.10})$$

y

$$\frac{C_j M_j}{D_j t_{v,j} \varepsilon_{\gamma,j} i_{\gamma,j}} \frac{1}{\sigma_{0,j} \Phi_e} = \frac{m_j \theta_j N_A}{W_j} F_j S_j \quad (\text{ec. 3.11})$$

Donde los subíndices c y j corresponden a las constantes y parámetros de los isótopos precursores o radionucleidos generados del *comparador* y del *elemento* j a determinar en la muestra, respectivamente.

Si dividimos miembro a miembro, se llega a:

3. Análisis por activación neutrónica

$$\frac{m_c}{m_j} = \frac{C_c t_{v,j} \varepsilon_{\gamma,j}}{C_j t_{v,c} \varepsilon_{\gamma,c}} \cdot \frac{D_j M_c}{D_c M_j} \cdot \frac{F_j S_j}{F_c S_c} \cdot \underbrace{\frac{W_c \theta_j \sigma_j i_{\gamma,j}}{W_j \theta_c \sigma_c i_{\gamma,c}}}_{k_0} \quad (\text{ec. 3.12})$$

El último término es un conjunto de constantes nucleares que se puede agrupar definiendo así el esperado factor k_0 :

$$k_0 = \frac{W_c \theta_j \sigma_j i_{\gamma,j}}{W_j \theta_c \sigma_c i_{\gamma,c}} \quad (\text{ec. 3.13})$$

Como se observará, los factores k_0 así definidos se refieren a un determinado isótopo precursor, un producto de su activación y una dada emisión gamma correspondiente a este último y tienen valores que dependen además de las constantes respectivas del elemento empleado como comparador. Para normalizarlos, De Corte impuso emplear al elemento oro como referencia, con el fin de tabular los valores de los factores k_0 en forma consistente y universal. Se recuerda que el elemento oro es monoisotópico ($\theta = 1$); la reacción considerada es $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$; y la energía que se emplea de este último radioisótopo es 411,8 keV. El resto de sus constantes ($T_{1/2}$; W , E_γ , i_γ) se conoce con bastante exactitud y precisión.

De acuerdo con este concepto, se aceptan como herramienta analítica los factores $k_{0,Au}$ definidos como se mencionó, para el isótopo j , un dado producto de activación y emisión gamma:

$$k_{0,Au}(j) = \frac{W_{Au} \theta_j \sigma_j i_{\gamma,j}}{W_j \sigma_{Au} i_{\gamma,Au}} \quad (\text{ec. 3.14})$$

Obviamente el k_0 definido así, para el mismo oro, es igual a la unidad.

Volviendo al procedimiento analítico, la masa del elemento j a determinar en la muestra, estará dada por

$$m_j = \frac{C_j t_{v,c} \varepsilon_{\gamma,c}}{C_c t_{v,j} \varepsilon_{\gamma,j}} \cdot \frac{D_c M_j}{D_j M_c} \cdot \frac{F_c S_c}{F_j S_j} \cdot \frac{k_{0,Au}(c)}{k_{0,Au}(j)} \cdot m_c \quad (\text{ec. 3.15})$$

o bien la concentración δ del elemento j en la muestra de masa m , expresada en ppm:

$$\delta_j = \frac{C_{esp,j} \varepsilon_{\gamma,c}}{C_{esp,c} \varepsilon_{\gamma,j}} \cdot \frac{F_c}{F_j} \cdot \frac{k_{0,Au}(c)}{k_{0,Au}(j)} \cdot 10^6 \quad (\text{ec. 3.16})$$

donde C_{esp} es el *conteo específico corregido*, definido como

$$C_{esp} = \frac{C M}{m t_v D S} \quad (\text{ec. 3.17})$$

para una determinada emisión gamma del radioisótopo j medido en la muestra de masa m_j (ídem para el comparador c , de masa m_c).

3.4. Determinación experimental de los factores k_0

Aun cuando carece de sentido físico, el factor k_0 constituye una constante nuclear en sí misma, susceptible de ser determinado en forma directa con su incertidumbre correspondiente que, obviamente, resultará menor que la obtenida por cálculo a partir de las constantes individuales que lo conforman.

La forma de determinar los factores k_0 se basa en irradiar al elemento de interés junto a otro elemento de referencia o patrón, que puede o no ser oro, según convenga por la activación misma, la disponibilidad y los $T_{1/2}$ involucrados.

La formulación empleada para el cálculo se deduce también de la ecuación 3.12, resultando, para un isótopo de interés (j), empleando un comparador (c):

$$k_{0,Au}(j) = \frac{C_{esp,j}}{C_{esp,c}} \frac{\epsilon_{\gamma,c}}{\epsilon_{\gamma,j}} \frac{F_c}{F_j} k_{0,Au}(c) \quad (\text{ec. 3.18})$$

Además del esquema experimental general presentado, es necesario determinar el valor del factor α de desviación del comportamiento ideal del flujo neutrónico epitérmico, y el valor del cociente f entre los flujos subcádmico y epicádmico.

Actualmente se encuentran en la literatura [De Corte, 2001a; Kolotov y De Corte, 2003 y 2004] factores k_0 determinados para alrededor de 100 isótopos de interés, con una incertidumbre menor que 2 %; y para otros 20 isótopos con incertidumbre cercana a 5 %. La historia y proyección del método ha sido comentada por el mismo autor [De Corte, 2001b].

3.5. Métodos para la determinación del factor α

Estas secciones se ubican aquí y no luego de la presentación del factor α (sección 2.3.5), pues fue necesario presentar previamente toda la formulación del factor k_0 . Entonces, y como ya se expuso, para la aplicación del método del k_0 se requiere conocer con exactitud y precisión suficientes tanto el factor α como la relación de flujos f , y que es menester su determinación experimentalmente dado que son valores propios de cada posición de irradiación del reactor empleado.

En paralelo con la evolución del método del k_0 , se han desarrollado distintas técnicas para la determinación de α y de f que fueron revisadas por Simonits et al., 1976 y De Corte et al., 1981. En general se basan en la irradiación de varios monitores, bajo cubierta de cadmio y sin ella, necesitándose en general tediosas series de irradiaciones y mediciones. Para el desarrollo de esta Tesis se han empleado algunas de estas técnicas.

Las técnicas de medición del factor α se basan en la ecuación 2.16

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

de la que surge:

$$\Phi_e(E).E = \Phi_e E^{-\alpha} I eV^\alpha \quad (\text{ec. 3.19})$$

y tomando logaritmos es

$$\ln[\Phi_e(E).E] = \alpha . \ln(E) + \Phi_e \quad (\text{ec. 3.20})$$

Es decir que si se graficara $\ln[\Phi_e(E).E]$ en función de $\ln(E)$, se obtendría una recta cuya pendiente es α . Experimentalmente esto se realiza irradiando, bajo cubierta de cadmio, diferentes monitores con picos de energías de resonancia bien definidos, para los que se cumple, sobre la base de la ecuación 3.20, que

$$\ln[\Phi_e(E_r).E_r] = \alpha . \ln(E_r) + \Phi_e \quad (\text{ec. 3.21})$$

Tal como se expuso en la convención de Högdahl, sección 2.3.1. los monitores con resonancias simples son escasos, por lo que en la práctica, y para este modelo, se emplea la *energía efectiva de resonancia* \bar{E}_r definida por Ryves [ídem, 1969] (ya presentada en la sección 2.3.1.), con la cual se puede generalizar la ecuación 3.21 como

$$\ln[\Phi_e(\bar{E}_r).\bar{E}_r] = \alpha . \ln(\bar{E}_r) + \Phi_e \quad (\text{ec. 3.22})$$

Para realizar la determinación experimental y los consecuentes cálculos, basta recurrir a la ecuación 2.18 en su expresión aplicada a la E_r simple, es decir:

$$E_r^{-\alpha} = \frac{I_0(\alpha)}{I_0}$$

y luego reemplazar en la ecuación 3.19, llegando a:

$$\Phi_e(E).E = \Phi_e \frac{I_0(\alpha)}{I_0} \quad (\text{ec. 3.23})$$

que se puede formular como

$$\Phi_e(E).E = \frac{R_e}{I_0} \quad (\text{ec. 3.24})$$

en la que R_e es la velocidad de ocurrencia de reacciones nucleares (n, γ) en el ámbito epitérmico (epicádmico, más rigurosamente) que, a su vez, se puede calcular como:

$$R_e = \frac{C_{esp,Cd} W}{N_A \theta \epsilon_\gamma i_\gamma} \quad (\text{ec. 3.25})$$

con el conteo específico $C_{esp,Cd}$ descrito por la ecuación 3.17 y aplicado a la medición del monitor irradiado bajo cadmio.

3.5.1. Método de multimonitores bajo cubierta de cadmio

La aplicación concreta de los conceptos vertidos antes es la que emplea varios monitores diferentes irradiados bajo cubierta de cadmio, de manera tal que un análogo de la velocidad de ocurrencia de reacciones responde a la siguiente expresión, derivada de la ecuación 3.25:

$$R'_e = \frac{C_{esp,Cd}}{k_{o,Au(i)} N_A \varepsilon_\gamma} \quad (\text{ec. 3.26})$$

En la que se reemplazaron los parámetros correspondientes por el $k_{o,Au}$ del isótopo i en estudio, disminuyendo sustancialmente la incertidumbre de los resultados. Se calificó de análogo, pues el $k_{o,Au}$ incluye las constantes nucleares del oro y el σ_0 , correspondiente a la inexistente activación térmica, de todas maneras, a los fines de la determinación, basada en la medición de una pendiente, no cuentan estas constantes.

Buscando el procedimiento de graficación planteado para la ecuación 3.20, se reemplaza I_0 según la ecuación 3.2 y luego combina la ecuación 3.24 con la 3.26, graficando

$$\ln \left[\frac{C_{esp,i,Cd} \bar{E}_r^{-\alpha}}{k_{o,Au(i)} \varepsilon_\gamma Q_{0,i}(\alpha)} \right] \text{ versus } \ln \bar{E}_{r,i} \quad (\text{ec. 3.27})$$

3.5.2. Método de los tres monitores sin cubierta de cadmio

Este método [De Corte et al., 1982] es uno de los más empleados, por su precisión y su sencillez, al no usar la siempre dudosa cubierta de cadmio*.

El fundamento es la irradiación de tres monitores de diferentes Q_0 , de manera tal de resolver la siguiente ecuación, que se puede desarrollar según las convenciones de Högdahl, Westcott o Blaauw. Según el formulismo de Westcott [De Corte et al., 1989], es:

$$(a-b) \cdot Q_{0,1}(\alpha) - a \cdot Q_{0,2}(\alpha) + b \cdot Q_{0,3}(\alpha) = 0 \quad (\text{ec. 3.28})$$

Con

$$a = \left(1 - \frac{C_{esp,2} k_{o,Au}(1) \varepsilon_1}{C_{esp,1} k_{o,Au}(2) \varepsilon_2} \right)^{-1} \quad (\text{ec. 3.29})$$

* Es conocido el hecho de que la presencia de cadmio deprime el flujo neutrónico en sus cercanías, además de filtrarse una pequeña proporción de neutrones térmicos difícil de precisar.

$$b = \left(1 - \frac{C_{esp,3} k_{0,Au}(1) \varepsilon_1}{C_{esp,1} k_{0,Au}(3) \varepsilon_3} \right)^{-1} \quad (\text{ec. 3.30})$$

Tomando en cuenta que se puede expresar

$$Q_{0,i}(\alpha) = \left(\frac{Q_{0,i} - 0,429}{\bar{E}_{r,i}^\alpha} \right) \quad (\text{ec. 3.31})$$

siendo i el número de monitor 1, 2 o 3. Así, la ecuación 3.28 con los datos experimentales y de tablas, preparada para el cálculo queda:

$$(a - b) \cdot \left(\frac{Q_{0,1} - 0,429}{\bar{E}_{r,1}^\alpha} \right) - a \cdot \left(\frac{Q_{0,2} - 0,429}{\bar{E}_{r,2}^\alpha} \right) + b \cdot \left(\frac{Q_{0,3} - 0,429}{\bar{E}_{r,3}^\alpha} \right) = 0 \quad (\text{ec. 3.32})$$

Para obtener el valor de α se realizan iteraciones hasta satisfacer la ecuación precedente.

En las pruebas comparativas realizadas durante el desarrollo experimental de esta Tesis, se modificó la ecuación 3.31 a fin de simplificar los programas de cálculo. Así, la formulación finalmente empleada fue:

$$(A - B) \cdot \left(\frac{Q_{0,1} - 0,429}{\bar{E}_{r,1}^\alpha} \right) + (B - C) \cdot \left(\frac{Q_{0,2} - 0,429}{\bar{E}_{r,2}^\alpha} \right) + (C - A) \cdot \left(\frac{Q_{0,3} - 0,429}{\bar{E}_{r,3}^\alpha} \right) = 0 \quad (\text{ec. 3.33})$$

Con

$$A = \frac{C_{esp,1} k_{0,Au}(1) \varepsilon_1}{C_{esp,3} k_{0,Au}(2) \varepsilon_2} \quad B = \frac{C_{esp,1} k_{0,Au}(1) \varepsilon_1}{C_{esp,2} k_{0,Au}(3) \varepsilon_3} \quad C = \frac{C_{esp,1}^2}{C_{esp,2} C_{esp,3}}$$

3.5.3. Método simplificado de los dos monitores bajo cubierta de cadmio

Cohen y colaboradores propusieron un nuevo método para la determinación de α , a partir de la selección de monitores apropiados para un cálculo simplificado, a irradiar bajo cubierta de cadmio [Cohen et al., 2006].

Partiendo de la ec. 2.27, el cociente $Q_0 = (I_0/\sigma_0)$ se puede expresar como:

$$Q_0(\alpha) = \left[\frac{Q_0 - 0,429}{(\bar{E}_r)^\alpha} + \frac{0,429}{(1 + 2\alpha)0,55^\alpha} \right] \quad (\text{ec. 3.34})$$

Asimismo, la expresión empleada para el cálculo de relaciones de flujos f es:

3. Análisis por activación neutrónica

$$f(\alpha) = \frac{\frac{C_{sp,2}}{k_{0,2} \cdot \varepsilon_2} Q_{0,1}(\alpha) - \frac{C_{sp,1}}{k_{0,1} \cdot \varepsilon_1} Q_{0,2}(\alpha)}{\frac{C_{sp,1}}{k_{0,1} \cdot \varepsilon_1} - \frac{C_{sp,2}}{k_{0,2} \cdot \varepsilon_2}} \quad (\text{ec. 3.35})$$

Donde:

C_{sp} : Conteos por unidad de tiempo y masa, corregidos por los factores temporales (tiempos de irradiación, decaimiento y medición)

ε : Eficiencia del detector para las energías consideradas

k_0 : Constante agrupada presentada en la sección 3.3

Cuando se emplean absorbedores de cadmio f es igual a cero, situación que implica que el numerador del segundo miembro de la igualdad se convierte también en cero, entonces,

$$\frac{C_{sp,2}}{k_{0,2} \cdot \varepsilon_2} Q_{0,1}(\alpha) - \frac{C_{sp,1}}{k_{0,1} \cdot \varepsilon_1} Q_{0,2}(\alpha) = 0 \quad (\text{ec. 3.36})$$

La ecuación 3.34 puede describirse en la siguiente forma:

$$Q_0(\alpha) = \left\{ \frac{Q_0}{(\bar{E}_r)^\alpha} - 0,429 \left[\frac{1}{(\bar{E}_r)^\alpha} + \frac{1}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right] \right\} \quad (\text{ec. 3.37})$$

Si $Q_0/\bar{E}_r^{-\alpha}$ fuera mucho mayor que el segundo término, o bien \bar{E}_r muy pequeño, podría emplearse la expresión aproximada:

$$Q_0(\alpha) \cong \frac{Q_0}{(\bar{E}_r)^\alpha} \quad (\text{ec. 3.38})$$

Combinando las ecuaciones 3.36 y 3.38:

$$\alpha \cong \frac{\ln \left[\frac{C_{sp,1} \cdot k_{0,2} \cdot \varepsilon_2 / C_{sp,2} \cdot k_{0,1} \cdot \varepsilon_1}{Q_{0,2} / Q_{0,1}} \right]}{\ln(\bar{E}_{r,2} / \bar{E}_{r,1})} \quad (\text{ec. 3.39})$$

Se estaría así en condiciones de medir un valor aproximado de α , empleando sólo dos monitores de flujo en irradiación bajo cadmio.

Sobre la base de una serie de consideraciones, los autores eligieron los siguientes pares de monitores, de una serie de 104 nucleidos: $^{197}\text{Au} / ^{238}\text{U}$; $^{197}\text{Au} / ^{96}\text{Zr}$; $^{158}\text{Gd} / ^{152}\text{Sm}$ y $^{159}\text{Tb} / ^{169}\text{Tm}$, que cumplen de manera excelente con las expectativas de determinación sencilla y rápida del factor α .

3.6. Métodos para la determinación de la relación de flujos f

Se han descrito varios métodos para la determinación de la relación de flujos térmico a epitérmico f [Simonits et al., 1976].

3.6.1. Método de la relación de cadmio

Este es el método más inmediato conceptualmente. Consiste en irradiar dos monitores de un elemento con propiedades y constantes nucleares bien conocidas, usualmente oro, uno de ellos bajo cubierta de cadmio y el otro sin ella (“desnudo”). En ambos casos se produce la reacción $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$, pudiéndose medir luego la emisión gamma de 411,8 keV del producto en ambos monitores para cuantificar las activaciones.

La relación de cadmio es, en este caso

$$R_{Cd,Au} = \frac{C_{esp,Au}}{(C_{esp,Au})_{Cd}} \quad (\text{ec. 3.40})$$

Luego, la relación de flujos queda expresada como

$$f = (F_{Cd,Au} \cdot R_{Cd,Au} - 1) \cdot \frac{F_{a,e,Au}}{F_{a,t,Au}} \cdot Q_{0,Au}(\alpha) \quad (\text{ec. 3.41})$$

donde

$F_{Cd,Au}$: factor de transmisión epitérmica, que indica el grado de transparencia de la cobertura normalizada de cadmio* a los neutrones epitérmicos. Se define como el cociente entre la actividad específica corregida del isótopo irradiado bajo cadmio en el espectro neutrónico completo, y la correspondiente al mismo irradiado sin cobertura, sólo con neutrones epitérmicos.

$$F_{Cd,Au} = \frac{(C_{esp})_{Cd}}{(C_{esp})_e} \quad (\text{ec. 3.42})$$

Los valores de $F_{Cd,Au}$ dependen de los isótopos irradiados y son para la mayoría de ellos iguales a la unidad, sin embargo existen tablas de dicho factor [El Nimr et al., 1981].

Por su parte $F_{a,t}$ y $F_{a,e}$ son factores de corrección por autoapantallamiento de los flujos térmico y epitérmico respectivamente dentro del material irradiado. Si el monitor posee una sección eficaz alta, como en el caso del Au o del Co, dichos factores pueden ser importantes, por lo que estos elementos suelen emplearse en forma de aleaciones con aluminio, con el fin de diluirlos.

* Cápsula cilíndrica de cadmio de 1 mm de espesor de pared y relación diámetro / altura = 2

Siguiendo la metodología del laboratorio de Análisis por Activación del Centro Atómico Bariloche, el cálculo de los factores de autoapantallamiento se realiza según la tradicional ecuación [Soete et al., 1972, pag. 445], válida para una hojuela de espesor H:

$$F_a = \frac{\Phi_m}{\Phi_0} = 1 - \frac{H.L}{2} \left(0,923 + \ln \frac{1}{H.L} \right) \quad (\text{ec. 3.43})$$

Donde

Φ_m : Flujo neutrónico perturbado o deprimido por la presencia de una muestra

Φ_0 : Flujo neutrónico no perturbado, o con una muestra infinitamente diluida

y

$$L = \frac{1}{\sum n_i \sigma_i}$$

siendo n_i la densidad en número de átomos/cm³ del elemento i considerado, en un eventual compuesto. El parámetro L resulta ser el recorrido libre medio de los neutrones en el material irradiado, en cm.

Los factores de corrección que aparecen son típicos de las irradiaciones bajo cadmio, y si bien son cercanos a la unidad, deben ser considerados si se desea obtener resultados con máxima exactitud. En la sección 4.4.3 se observa un ejemplo de aplicación de este factor en las irradiaciones de germanio realizadas en el contexto de esta Tesis.

3.6.2. Método de los dos monitores

Otro de los métodos empleados consiste en irradiar dos monitores de flujo 1 y 2 o bien un monitor bi-isotópico, como el zirconio, cuyas constantes Q_0 sean bastante diferentes entre sí, de manera tal de emplear la siguiente ecuación que se deduce a partir de la ecuación 3.5.

$$f(\alpha) = \frac{\frac{C_{esp,2}}{k_{0,Au(2)} \varepsilon_{\gamma,2}} Q_{0,1}(\alpha) - \frac{C_{esp,1}}{k_{0,Au(1)} \varepsilon_{\gamma,1}} Q_{0,2}(\alpha)}{\frac{C_{esp,1}}{k_{0,Au(1)} \varepsilon_{\gamma,1}} - \frac{C_{esp,2}}{k_{0,Au(2)} \varepsilon_{\gamma,2}}} \quad (\text{ec. 3.44})$$

Donde 1 y 2 son los subíndices que representan a los dos monitores respectivamente. Obviamente es necesario determinar también el factor α para completar el cálculo.

3.7. Determinación simultánea de los factores f y α

Por último, y como corolario de estas evaluaciones, se ha desarrollado y publicado, en el marco de esta Tesis, una nueva metodología para la determinación simultánea de los factores f y α de una dada posición de irradiación [Cohen, Furnari et al., 1995], cuyos resultados experimentales se exponen en la sección 5.4.

Sucintamente, el nuevo método se desarrolló sobre la base del empleo de la ecuación 3.35 con dos pares de monitores. Con los resultados de las mediciones se grafica f en función de α , obteniéndose una curva para cada par de monitores. Como existe sólo un valor verdadero para f y para α , éstos deben ser comunes a los resultados obtenidos con todos los monitores, es decir, es el punto de cruce de las curvas $f(\alpha)$ vs. α . Si se realizan irradiaciones con más de dos pares de monitores, el punto de cruce, que sigue siendo común, permite determinar los factores f y α con menor error aun.

Con esta metodología hemos determinado, dentro de los trabajos experimentales de esta Tesis, los factores k_0 de varias de las emisiones gamma de ciertos radioisótopos del germanio, en buena concordancia con aquellos datos determinados por De Corte y colaboradores [Ídem, 1993; IUPAC, 2002], tal como se expone en la sección 4.5.

3.8. Importancia de las reacciones umbral en análisis por activación

Es conocido el interés de las llamadas reacciones umbral (n,p) ; (n,α) ; (n,n') ; $(n,2n)$ [Cohen, 1991; De Corte et al., 1987], sobre la base de diferentes aspectos expuestos a continuación.

En primer lugar, dichas reacciones poseen importancia analítica, ya como alternativa al empleo de reacciones de captura radiante (n,γ) en los casos en que éstas no resultan convenientes, por ejemplo en la determinación de talio o bien en las ocasiones en que se inducen reacciones umbral en la matriz generando radionucleidos que interfieren en las mediciones de los radioisótopos de interés, por ejemplo, la determinación de vanadio en presencia de cromo. En forma explícita, en el primer ejemplo no existe una reacción (n,γ) adecuada para la formación de un radioisótopo del talio susceptible de ser determinado cómodamente por su emisión gamma; en cambio, la reacción umbral $^{203}\text{Tl}(n,2n)^{203}\text{Tl}$, es una alternativa válida, pues el producto ^{203}Tl es un emisor gamma de energía y período de semidesintegración adecuados para ser determinado sin dificultad [Cohen et al., 1982]. En el segundo ejemplo, la reacción de interés analítico es $^{51}\text{V}(n,\gamma)^{52}\text{V}$, cuyo empleo se ve interferido por la formación del mismo producto a través de la reacción $^{52}\text{Cr}(n,p)^{52}\text{V}$.

Con relación a esto último, ciertas reacciones umbral se utilizan para caracterizar y determinar el flujo rápido, proveyendo una herramienta fundamental para la evaluación de las interferencias del tipo antes mencionado. En este caso, como estas reacciones poseen precisamente un umbral energético a partir del cual ocurren, la metodología es emplear monitores de distintas energías umbral para permitir la determinación de las componentes del espectro neutrónico o su proporción..

Por otra parte, las reacciones umbral proveen vías para la producción de ciertos radionucleidos “libres de portador”, por ejemplo, la obtención de ^{32}P por reacción (n,p) sobre ^{32}S en lugar de la reacción (n,γ) sobre el ^{31}P ; o la producción de ^{54}Mn por irradiación de hierro según $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$.

Por todas estas razones, la determinación precisa de las secciones eficaces de tales reacciones es un requisito imprescindible para disponer de datos nucleares confiables toda vez que sea necesario realizar correcciones por interferencias, evaluar incertidumbres en los resultados analíticos, o bien calcular la producción de determinado radioisótopo.

En el caso particular que nos ocupa en esta Tesis, dos razones principales llevaron a la determinación de varias secciones eficaces de reacciones umbral inducidas en isótopos del germanio. En primera instancia posee interés académico, por cuanto algunas secciones eficaces no existían en la bibliografía, otras no estaban determinadas con suficiente precisión, no estaban bien expresadas, o bien existían discrepancias; y otra, más innovadora, se refiere a demostrar la posibilidad de emplear al germanio como comparador y como monitor de flujo integral en el método paramétrico del k_0 .

Efectivamente, sólo una publicación [Calamand, 1974] daba cuenta de una compilación de secciones eficaces de reacciones (n,p) ; (n,α) ; $(n,2n)$ y (n,n') sobre el elemento germanio. De quince reacciones posibles, sólo cuatro poseían valores experimentales. En la actualidad, la base de datos EXFOR, del OIEA, es la que reúne toda esta información [EXFOR, 2011].

Con respecto a aquello, se encararon las determinaciones de la sección eficaz de la reacción $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$ [Furnari, Cohen y Kestelman, 1994]; de las secciones eficaces de las reacciones $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$ y $^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$ [Cohen, Furnari et al., 1992 y 1996]; y se ha probado la utilidad del germanio como comparador y monitor de flujo con excelentes resultados [Cohen y Furnari, 1994b].



Segunda parte

Desarrollo experimental

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

En este capítulo se describen los siguientes trabajos experimentales:

- Aspectos metodológicos de la preparación e irradiación de monitores y muestras.
- Determinaciones de las secciones eficaces de las reacciones $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$, $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$ y $^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$ promediadas sobre el espectro neutrónico de fisión del ^{235}U [Furnari y Cohen, 1994a; Cohen, Furnari et al., 1992 y 1996].
- Determinación de los factores k_0 del germanio.
- Identificación de nuevas transiciones gamma en el ^{77m}Ge . [Kestelman, Cohen, Furnari et al., 2000].

Más adelante, en el capítulo 5, se exponen las aplicaciones nucleares y analíticas de las constantes del germanio determinadas, que se listan a continuación:

- El empleo del germanio como comparador y monitor integral de flujo neutrónico en análisis por activación paramétrico [Furnari, Cohen et al. 1997 y Cohen, Furnari et al., 1999]
- La determinación de aluminio y fósforo en materiales biológicos por análisis por activación neutrónica empleando germanio como comparador y monitor integral de flujo [Furnari y Cohen, 1994b].
- La determinación de la sección eficaz de la reacción $^{31}\text{P}(n,\alpha)^{28}\text{Al}$, promediada sobre un espectro de fisión, para fines analíticos [Cohen, Furnari et al., 1993 y Furnari y Cohen, 1994b]
- La determinación simultánea de los parámetros f y α en reactores nucleares [Cohen, Furnari et al., 1995 y 1996]

Este ordenamiento no responde cronológicamente a las tareas realizadas, sino que es puramente temático, así por ejemplo, la determinación de los factores k_0 del germanio se realizó como una necesidad luego de haber desarrollado el método para la determinación de Al y P en materiales biológicos, y posteriormente dichos factores fueron utilizados en otra demostración analítica.

4.1. Consideraciones sobre los materiales empleados y las irradiaciones

4.1.1. Germanio

En todas las experiencias en las que se utilizó germanio, se partió de dicho elemento en forma metálica, disponiendo de pequeñas láminas de espesores comprendidos entre algunas décimas de milímetro y 2 mm, y masas entre 10 y 500 mg.

El material de partida fue germanio monocristalino de muy alta pureza, proveniente de un cristal de germanio del tipo empleado en la construcción de detectores GeHP, que obraba en poder de un grupo de desarrollo de detectores semiconductores del Departamento de Electrónica, Centro Atómico Ezeiza.

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

Tal como se expuso en la Introducción, la concentración estimada de impurezas, según la bibliografía [Knoll, 2000, pág. 405], es del orden de 10^9 átomos por cm^3 de Ge (cuya concentración en átomos del elemento matriz es $4,418 \cdot 10^{22}$ átomos/ cm^3), es decir, en una proporción, expresada en masa, del orden de $1:10^{13}$. Pierde sentido entonces expresar la pureza en porcentaje, pues sería de 99,.. seguido de 11 nueves más. Es interesante hacer notar que, tal como menciona Knoll, este tipo de germanio ultrapuro es el material más alta pureza del mundo jamás producido en escala comercial.

El empleo de germanio ultrapuro en los trabajos experimentales de esta Tesis no es casual ni es un dato menor. La disponibilidad de tal material fue una de las razones principales que motivaron el tema mismo de la tesis, por cuanto supimos de inmediato que los espectros gamma que obtendríamos nos brindarían una enorme ventaja: sabíamos a priori que literalmente no podríamos ver ningún pico gamma proveniente de impurezas, lo cual siempre es una dificultad en análisis por activación neutrónica. Todos los rayos gamma que veríamos corresponderían exclusivamente a productos de reacciones nucleares sobre isótopos de germanio, lo cual nos permitiría medir sin interferencias y con mucha precisión las secciones eficaces que nos habíamos propuesto determinar. Además, esta ventaja nos dio la sorpresa de descubrir más de una decena de nuevas emisiones gamma del $^{77\text{m}}\text{Ge}$, desconocidas hasta 1994.

Volviendo a los aspectos metodológicos, se cortaron láminas de germanio de 1 a 2 mm de espesor y 20 a 30 cm^2 de área con una sierra circular diamantada (lentamente y refrigerando con agua, pues es bastante quebradizo); luego se partieron mecánicamente en pequeños trozos de 50 a 500 mg. Las laminillas resultantes, de pocos mm^2 , se trataron con una solución mezcla de HNO_3 (c), HF (c) y H_2O_2 (c) en proporción 5:5:1, desarrollada en esta Tesis, con el fin de decapar su superficie y así eliminar contaminaciones, obteniendo además los espesores deseados; luego se lavaron con agua bidestilada, se secaron a temperatura ambiente y se almacenaron en pequeños sobres de polietileno sellados para su uso en las distintas experiencias. Las láminas fueron seleccionadas por su forma y grosor.

El pesado de las láminas de germanio, muestras y monitores se realizó con las balanzas disponibles en cada sitio, siempre de micro o ultramicro escala (Mettler M5, Sartorius M9). Para realizar correcciones por autoapantallamiento neutrónico y autoabsorción de la radiación gamma, el espesor de los especímenes a irradiar fue medido con un micrómetro.

4.1.2. Monitores de flujo

En todas las experiencias se emplearon monitores de flujo en forma de pequeñas láminas de menos de 0,1 mm de espesor y unos 20 a 60 mm^2 . En el caso de emplear oro o cobalto, puesto que sus secciones eficaces son altas y pueden provocar depresiones de flujo neutrónico, es usual disponer de ellos en forma de alambres o folias de aleaciones en base a aluminio, con concentraciones del orden de 0,1 %. Por ejemplo, uno de los monitores de oro empleados es un alambre de 0,5 mm de espesor de una aleación de Au/Al con un contenido certificado de oro de $(0,116 \pm 0,002)$ %.

Todos estos materiales se adquirieron especialmente para este fin, generalmente de la firma Reactor Experiments Inc, California, Estados Unidos. Poseen su certificación, donde se consignan las concentraciones de impurezas con el objeto de realizar necesarias correcciones.

4.1.3. Preparación y manejo de las irradiaciones en el reactor RA-6

Dependiendo tanto del reactor como de la experiencia a realizar, es de destacar que el diseño y la preparación de las irradiaciones resultaron ser actos únicos a decidir, o eventualmente a desarrollar, en cada caso. Sin embargo, a lo largo de las experiencias se pudo sistematizar una serie de pasos a seguir, ajustados además por las modalidades de trabajo de cada laboratorio.

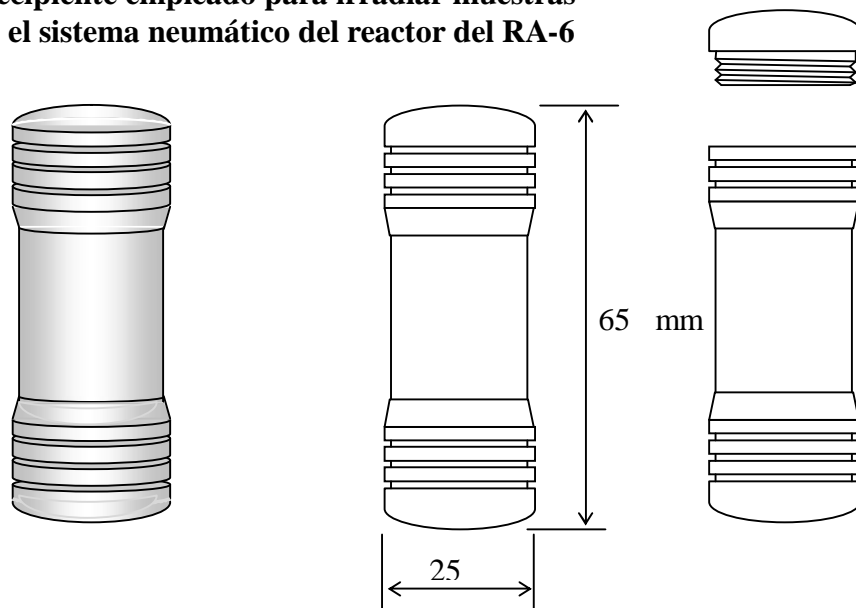
En el caso del reactor RA-6, del Centro Atómico Bariloche (ver sección 4.1.5), las irradiaciones reunieron las siguientes características:

- El RA-6 cuenta con un sistema neumático para el envío de muestras a irradiar en su núcleo y su posterior recepción.
- El manejo de las irradiaciones fue realizado por el autor y otros colegas del Laboratorio de Análisis por Activación.
- Los tiempos de irradiación en general fueron más cortos (minutos), con tiempos de decaimiento del mismo orden.
- Las cápsulas de irradiación son de polietileno.
- La apertura de las cápsulas se realiza en una campana radioquímica, manualmente.
- Los flujos neutrónicos son más de un orden de magnitud menores que los del RA-3.

El sistema neumático mencionado permite el envío, en décimas de segundo, de las muestras a irradiar a alguna de las dos posiciones de irradiación en el núcleo durante tiempos prefijados, y su posterior recepción al finalizar el proceso. Luego del disparo de la cápsula conteniendo los materiales a irradiar, los tiempos prefijados de irradiación y el reenvío hacia el laboratorio de mediciones son comandados automáticamente. Los tiempos de transporte durante envío y la recepción son bien conocidos y se descuentan o suman a los tiempos de irradiación o de decaimiento respectivamente.

La cápsula de irradiación, llamada “bala” es un recipiente especial de polietileno de alta densidad, resistente a los impactos y a la radiación, con tapa a rosca y tamaño exacto para circular por las cañerías del sistema neumático, tal como se esquematiza en la figura 4.1.

Figura 4.1: Recipiente empleado para irradiar muestras empleando el sistema neumático del reactor del RA-6



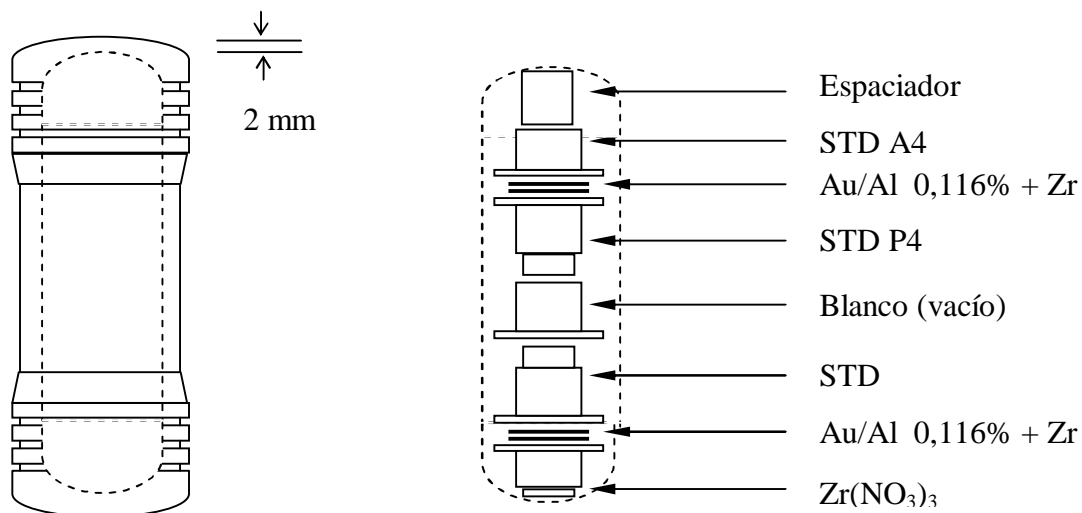
4. Determinación de constantes nucleares del germanio

Los materiales a irradiar se colocan en el interior de la bala habitualmente dentro de otros pequeños envases o envueltos en láminas de polietileno de 100 μm de espesor, selladas con un dispositivo térmico, o de papel delgado de aluminio. Tanto por los tiempos de irradiación como por la conformación de los espectros neutrónico y gamma del reactor, los daños por radiación en el RA-6 son usualmente despreciables.

La mayoría de las veces, el diseño de la irradiación indicaba posicionar los monitores y/o las muestras en determinados lugares del interior de la bala. Para lograr esto, se emplearon recortes de tubo de polietileno con las medidas convenientes para oficiar de espaciadores, tal como se ejemplifica en la figura 4.2.

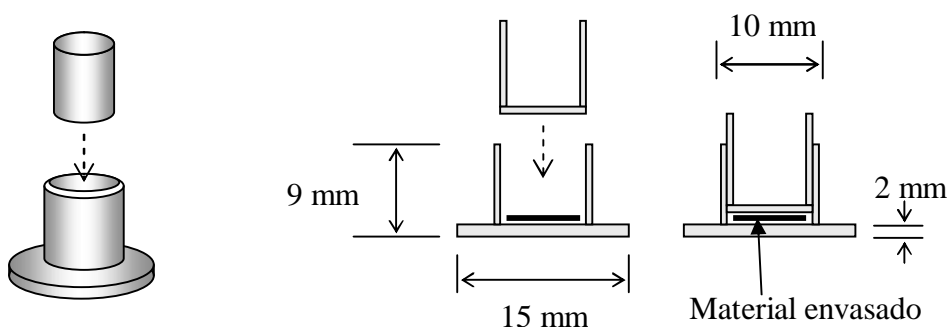
Figura 4.2.: Disposición típica del armado de irradiaciones

(Ejemplo de una de las irradiaciones realizadas para la determinación del factor α)



Si el material a irradiar era un polvo, como los materiales de referencia o las drogas de alta pureza, se envasó y pesó en pequeños cilindros de polietileno cerrados en un extremo (en realidad son tapas de ciertos tubos). Este tipo de recipiente era sellado con un émbolo del mismo material, de medidas adecuadas, que se introducía a presión, como se ilustra en la figura 4.3. En esos casos, la medición posterior a la irradiación se realizaba en el mismo envase. En muchos otros casos, aún las folias de monitores o los cristales de germanio, por comodidad o para reproducir geometrías, también se irradiaban y se medían en los pequeños émbolos.

Figura 4.3.: Recipiente para envasado de muestras y posterior medición



Si los materiales irradiados eran polvos, o bien se trataba de minimizar los tiempos de decaimiento, las mediciones se realizaban en los mismos envases irradiados. En esas circunstancias, se irradiaban y medían luego envases vacíos idénticos a manera de blancos, para descontar pequeñas concentraciones de impurezas en el polietileno, como trazas de aluminio, hierro u otros metales presentes, como consecuencia de su producción industrial.

Cuando fue necesario irradiar bajo cadmio, se emplearon pequeñas cápsulas comerciales del mencionado metal, de 1 mm de espesor, conformadas por dos partes cóncavas que se pueden introducir una en otra con una leve presión, a la manera de cuerpo y tapa, de unos 12 mm de diámetro (ver figura 4.4). Este recipiente cumple con los requisitos descritos en la sección 3.6.1. En algunas ocasiones se construyeron artesanalmente cápsulas de cadmio, a partir de chapa de 0,5 mm del citado material.

Figura 4.4.: Cápsula para irradiación bajo cadmio



Finalmente, la bala se cierra con su tapa a rosca. Al fin de la irradiación, el sistema devuelve la bala, que se sujeta con una pinza especial. Usando una herramienta ad hoc que se introduce en la depresión cuadrangular que posee la bala en la tapa, se desenrosca y se extrae el contenido.

Inmediatamente se disponen las muestras en la secuencia programada para las mediciones. El sistema de detección está en el mismo local donde se encuentra la campana de recepción del neumático, de manera tal de minimizar los tiempos de decaimiento de las muestras irradiadas hasta sus mediciones y brindar comodidad operativa. De esta forma, si es necesario, y dependiendo de la forma de empaquetado en la bala, se puede lograr un tiempo de decaimiento de la primera muestra a medir que ronda los 20 s después de la irradiación.

4.1.4. Preparación y manejo de las irradiaciones en el reactor RA-3

Las irradiaciones que se realizan en el Centro Atómico Ezeiza están regidas por procedimientos establecidos, dependientes en gran parte del uso principal del reactor cual es la producción de radioisótopos de uso médico o industrial.

Las irradiaciones en el RA-3 realizadas en el contexto de esta Tesis tuvieron las siguientes características:

- El RA-3 no contaba con un sistema neumático para el envío de muestras a irradiar.
- El manejo de las muestras fue manual por parte de los operadores del reactor.
- Los tiempos de irradiación en general fueron más largos (horas) y requirieron mayores tiempos de decaimiento, en comparación con las efectuadas en el RA-6.

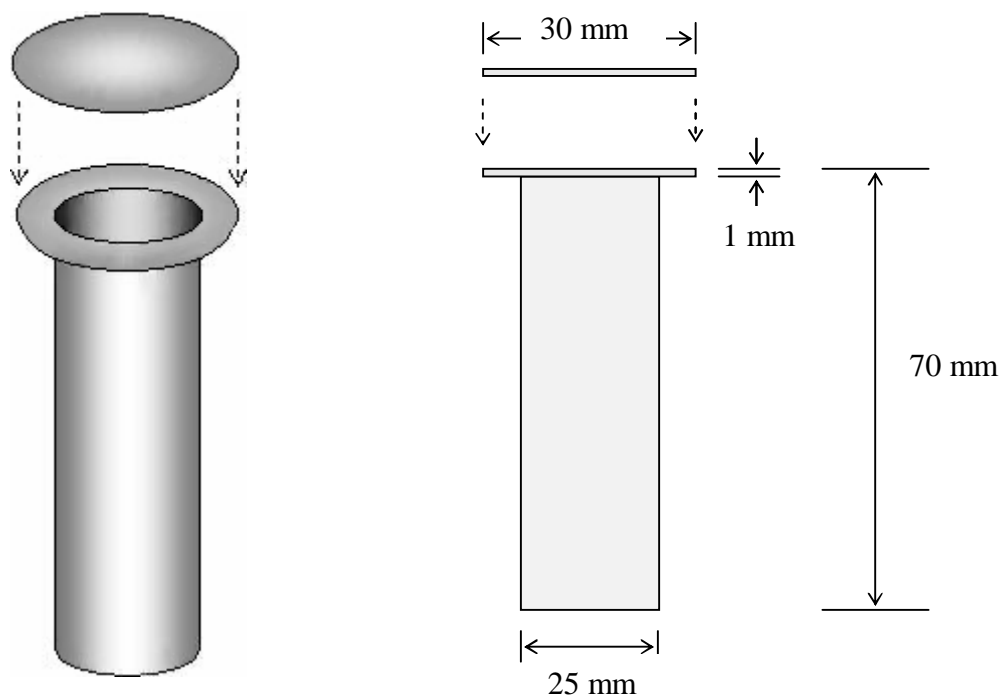
4. Determinación de constantes nucleares del germanio

- Los flujos neutrónicos son más de un orden de magnitud superiores al RA-6.
- Las cápsulas de irradiación fueron los típicos recipientes de aluminio que se utilizan en el RA-3.
- La apertura de las cápsulas se realizó en una celda blindada de la instalación del reactor, con telepinzas.

Estas particularidades obligaron a preparar las irradiaciones en general empleando materiales más resistentes a la radiación gamma y de neutrones para el envasado de las muestras, tales como ampollas de cuarzo selladas con soplete o papel de aluminio. Para los trabajos de esta Tesis, cuando las irradiaciones no superaron las 2 h, se pudo emplear polietileno de 100 μm de espesor selladas con un dispositivo térmico, como envoltura de los monitores y muestras. Más allá de ese tiempo, el polietileno se deteriora, se vuelve muy quebradizo y se rompe. En algunos casos se empleó papel de aluminio delgado.

Como envase contenedor del conjunto de materiales a irradiar se emplea una cápsula de aluminio llamada informalmente “can”, que se muestra en la figura 4.5.

Figura 4.5.: “Can” de aluminio de alta pureza, para irradiar en el reactor RA-3



El can, luego de la ubicación interna de las muestras, debe rellenarse con lana de cuarzo para amortiguar el golpe durante la caída en la celda de apertura, pues se envía desde el piso superior por una cañería. Por último, se cierra con una prensa neumática luego de pulir los bordes y la tapa con un cepillo circular de acero asociado a un motor.

Las irradiaciones bajo cadmio se efectuaban tapizando interiormente parte del can con un cilindro hecho con dos vueltas de cinta de cadmio metálico de 0,5 mm de espesor, agregando discos del mismo material como fondo y tapa respectivamente. En estos casos, se debe tener en cuenta que la absorción de neutrones provoca un significativo aumento de temperatura en el

cadmio, lo que inhabilita el uso de polietileno, pues lo quema, aún en tiempos del orden de 1 h. El aumento de temperatura en estos casos y el mayor daño por radiación en general, son una particularidad de las irradiaciones en el RA-3.

Al can cerrado se le efectúan pruebas de estanqueidad de dos maneras diferentes. Una, sumergiéndolo en agua hirviendo, esto hace que aumente la presión del aire en su interior y escape una fila de burbujas si hubiese un defecto en el sellado.

La otra forma, más rigurosa, se lleva a cabo sumergiendo la región sellada del can en nitrógeno líquido, de manera tal que si llegase a haber una falla, la disminución de la presión hace que se introduzca nitrógeno en el can a través de la falla. Acto seguido, se sumerge la cápsula en agua a temperatura ambiente, consecuentemente se produce un aumento de temperatura de más de 200 °C, y un proporcional aumento de presión, obviamente mayor que en el primer ensayo. Si se produjera una perforación sería además mayor el contenido de gas en el interior, por lo que la sensibilidad del ensayo es superior. El sellado es importante, por cuanto no se puede permitir que ingrese agua del circuito primario, usualmente activa, a la cápsula de irradiación.

Con respecto a las irradiaciones, el momento de inicio y su duración debieron planearse tomando en cuenta los ciclos de 120 horas continuas semanales de operación del reactor. Para irradiaciones en las posiciones normales del núcleo no existieron inconvenientes de programación. En cambio, los trabajos realizados en la columna térmica requirieron una modalidad diferente, puesto que el ingreso y el egreso de las muestras debe realizarse por procedimiento, con el reactor fuera de operación. Si la irradiación era del orden de la hora o menor, se solicitaba el arranque del reactor un tiempo adecuado antes del comienzo habitual, se realizaba la irradiación, luego se paraba, se extraían las muestras y el reactor se arrancaba nuevamente para su ciclo normal de operación. Si se necesitaba mayor fluencia neutrónica, el tiempo de irradiación ya debía coincidir con las 120 h de operación, debiendo en ese caso fijar la otra variable involucrada, el flujo neutrónico, a través de la posición de irradiación.

Los tiempos de inicio y duración de las irradiaciones fueron controlados por los operadores con el uso de relojes y cronómetros, con lo cual no se tuvo un control directo de su exactitud y precisión, tal como se pudo hacer en el RA-6. Este factor obviamente se tuvo en cuenta, tomando todos los recaudos posibles al respecto en cuanto a sincronizar los relojes empleados con los de las mediciones, a la vez de programar irradiaciones suficientemente largas para minimizar las incertidumbres.

Por otra parte, la llegada de la cápsula a la posición de irradiación, y luego su alejamiento, se realizan con operaciones manuales que involucran tiempos comparativamente más largos que los del RA-6, lo cual también agrega incertidumbre. Respecto de esto, está comprobado que durante los movimientos de las cápsulas, los flujos neutrónicos a los que están sometidas varían varios órdenes de magnitud, minimizando los efectos de variación en la activación.

Una vez finalizada la irradiación se procede al retiro y apertura del can. Como se adelantó, esta última se efectúa dentro de una celda blindada, empleando un dispositivo que literalmente arranca la tapa; luego se vuelca el contenido en un blindaje de transporte. Toda la operación, realizada en este caso por el usuario, se hace empleando telepinzas. Esto es así pues el aluminio del can posee alta actividad inducida por la reacción $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$. El radionucleido generado tiene un $T_{1/2} \cong 15$ h y emisión de fotones gamma de alta energía (1369 keV y 2754

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

keV), por lo que deben tomarse todas las medidas de radioprotección que corresponden. Habitualmente, las muestras irradiadas poseen mucha menos actividad y emisiones de menores energías que el aluminio del can, y se pueden llevar al laboratorio en un blindaje adecuado, previa liberación realizada por un oficial de seguridad del reactor.

4.1.5. Descripción de los reactores RA-3 y RA-6

Los reactores de investigación RA-3 y RA-6 son instalaciones nucleares relevantes Clase I (denominación propia de la Autoridad Regulatoria Nuclear) empleados básicamente para investigación, producción de radioisótopos (RA-3) y docencia (RA-6). En la figura 4.1 se muestran los principales datos técnicos de ambos reactores:

Ambos reactores son de tipo pileta, es decir, constan de un gran cilindro de acero inoxidable (11 m de profundidad en el RA-3) lleno de agua liviana desmineralizada cerca de cuyo fondo se aloja el núcleo propiamente dicho del reactor (ver figuras 4.6 y 4.8)

El núcleo está constituido por un conjunto de elementos combustibles (EECC) tipo MTR (Material Testing Reactor) dispuesto en una grilla en la que se ubican los EECC individuales constituyendo geoméricamente una determinada configuración crítica. Los EECC están rodeados con elementos de grafito grado nuclear (99,7% a 99,9% carbono) que ofician de reflectores, mejorando el balance de neutrones en el núcleo, y de moderadores, posibilitando posiciones de irradiación con neutrones termalizados en cierto grado.

Los elementos combustibles están constituidos por 19 placas de aluminio que contienen en su interior una mezcla de polvos de óxido de uranio enriquecido al 20% en ^{235}U y aluminio. Las placas están ubicadas en forma paralela dentro de una caja de aluminio, permitiendo la circulación forzada de agua a su través, con el fin de refrigerarlas.

Tabla 4.1: Características técnicas más relevantes de los reactores RA-3 y RA-6

	Reactor RA-3	Reactor RA-6
Emplazamiento	Centro Atómico Ezeiza	Centro Atómico Bariloche
Potencia Nominal	10 MW	1 MW (a partir de 2010) 500 kW (antes de 2010)
Flujo neutrónico térmico medio	$6 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$	$1 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ (2010) $1 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ (antes de 2010)
Combustible	Tipo MTR $\text{UO}_2\text{-USi}_3\text{-Al}$ uranio enriquecido al 20% en ^{235}U (antes de 2000 con uranio al 90%)	Tipo MTR $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ uranio enriquecido al 20% en ^{235}U (antes de 2010, con uranio al 90%)
Moderador	Agua liviana desmineralizada	Agua liviana desmineralizada
Refrigeración	Potencia bombeo 400 kW	Potencia bombeo 120 kW

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

Tabla 4.1 (continuación)

	Reactor RA-3	Reactor RA-6
Núcleo del Reactor en 2011 (las configuraciones cambian con cierta frecuencia)	<p>21 EECC normales + 4 de control (5,3 kg de U-235 en equilibrio, sin venenos quemables)</p> <p>4 Barras absorbedoras de Ag (80%), In (15%) y Cd (5%) envainadas en acero inoxidable.</p> <p>21 elementos reflectores de grafito rodeando al núcleo</p>	<p>15 EECC normales + 4 de control (6,35 kg de U-235 con venenos quemables)</p> <p>4 Barras absorbedoras de Ag (80%), In (15%) y Cd (5%) envainadas en acero inoxidable.</p> <p>1 Barra reguladora de acero inox.</p> <p>38 elementos reflectores de grafito rodeando al núcleo</p>
Circuito Primario	<p>Circulación forzada de agua</p> <p>3 ramas 3 bombas y</p> <p>3 intercambiadores de calor</p> <p>Caudal total 1350 m³/h</p> <p>V_{lineal}= 4,2 m/s</p>	<p>Circulación forzada de agua</p> <p>1 bomba y 1 intercambiador de calor</p> <p>Caudal total 340 m³/h</p> <p>V_{lineal}= 4,6 m/s</p>
Circuito Secundario	<p>3 bombas, 3 intercambiadores de calor y 4 torres de enfriamiento</p> <p>Caudal total 1000 m³/h</p>	<p>1 bomba, 1 intercambiador de calor y 2 torres de enfriamiento</p> <p>Caudal total 200 m³/h</p>
Facilidades de Irradiación	<p>1 trampa central de irradiación ($\Phi_{th} = 2,4 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)</p> <p>4 cajas de irradiación "in core" ($4 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} < \Phi_{th} < 1,2 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)</p> <p>1 caja de irradiación periférica ($2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} < \Phi_{th} < 4 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)</p> <p>2 sistemas de irradiación neumáticos</p> <p>Columna térmica de irradiación</p>	<p>1 caja de irradiación "in core" $\Phi_{th} = 2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$</p> <p>1 sistema de irradiación neumático</p> <p>Columna térmica de irradiación</p>
Empleo	<p>5d/semana (120 hs seguidas);</p> <p>46-48 sem/año, para producción</p>	<p>20 hs/semana para docencia e investigación</p>
Producción de radioisótopos	<p>⁹⁹Mo, ¹³¹I, ³²P, ⁵¹Cr, ¹⁵³Sm, ¹⁹²Ir, ¹⁷⁷Lu</p>	<p>⁹⁹Mo experimental</p>
Análisis por activación neutrónica	<p>Laboratorio en funciones desde 1970 aprox.</p>	<p>Laboratorio en funciones desde 1980 aprox.</p>

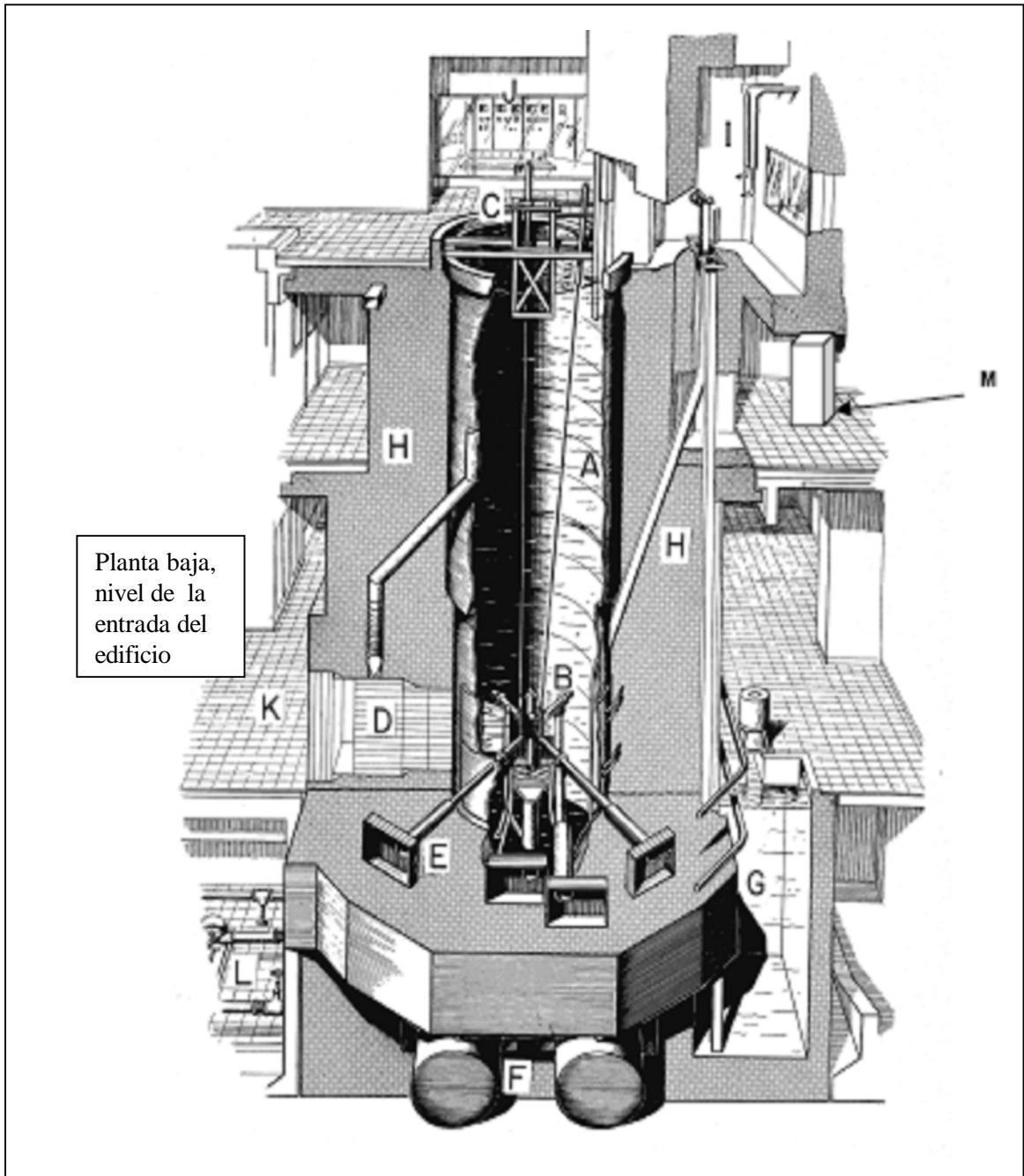
4. Determinación de constantes nucleares del germanio

Tabla 4.1 (continuación)

	Reactor RA-3	Reactor RA-6
Otras facilidades	Columna térmica, BNCT (células, tejidos, órganos)	Haz externo para BNCT (pacientes)
Hitos	Construcción 1963 Críticidad 5/7/1967 1° remodelación 1987-1990 2° remodelación 2000-2001	Construcción 1978 Críticidad 23/9/1982 1° remodelación 2007-2009

Cada EECC normal del RA-3 contiene uranio enriquecido al 20 % en ^{235}U , con unos 290 g de este isótopo inicialmente. Los EECC frescos se van cambiando por los quemados en el núcleo en equilibrio, que tiene un cierto grado de quemado. Los EECC de control contienen unos 220 g de ^{235}U inicialmente pues poseen 15 placas en lugar de 19, con dos lugares vacantes a cada lado. En esos lugares vacantes se desplazan las barras absorbedoras de Ag-In-Cd, comandadas desde arriba del tanque, para efectuar el control de potencia del reactor.

Figura 4.6.: Esquema del reactor RA-3, Centro Atómico Ezeiza [Cohen, 1982, pág. 93]



Planta baja,
nivel de la
entrada del
edificio

- | | |
|---|--------------------------------|
| A: Tanque del reactor | G: Piqueta de servicio |
| B: Núcleo | H: Blindaje de concreto |
| C: Puente de operaciones-
Mecanismo de barras de control | I: Celda caliente |
| D: Columna térmica de grafito | J: Sala de control |
| E: Haces neutrónicos externos | K: Pasillo de laboratorios |
| F: Tanques de decaimiento | L: Cuarto de bombas |
| | M: Celda de retiro de muestras |

Figura 4.7: Reactor RA-6, Centro Atómico Bariloche



Figura 4.8: Núcleo del Reactor RA-6

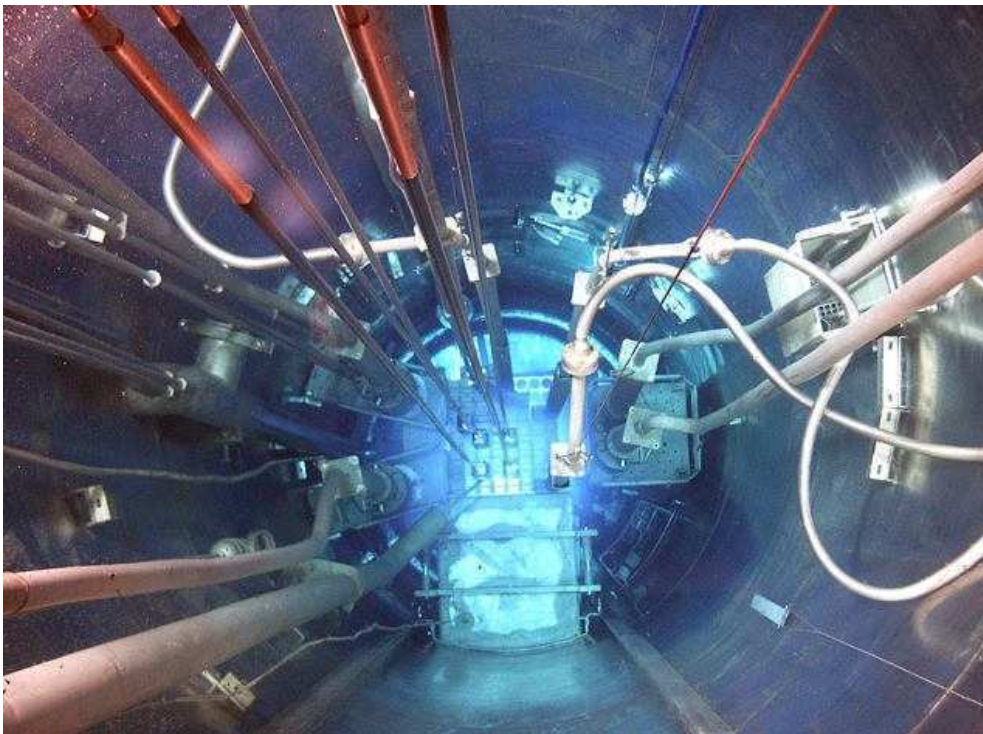
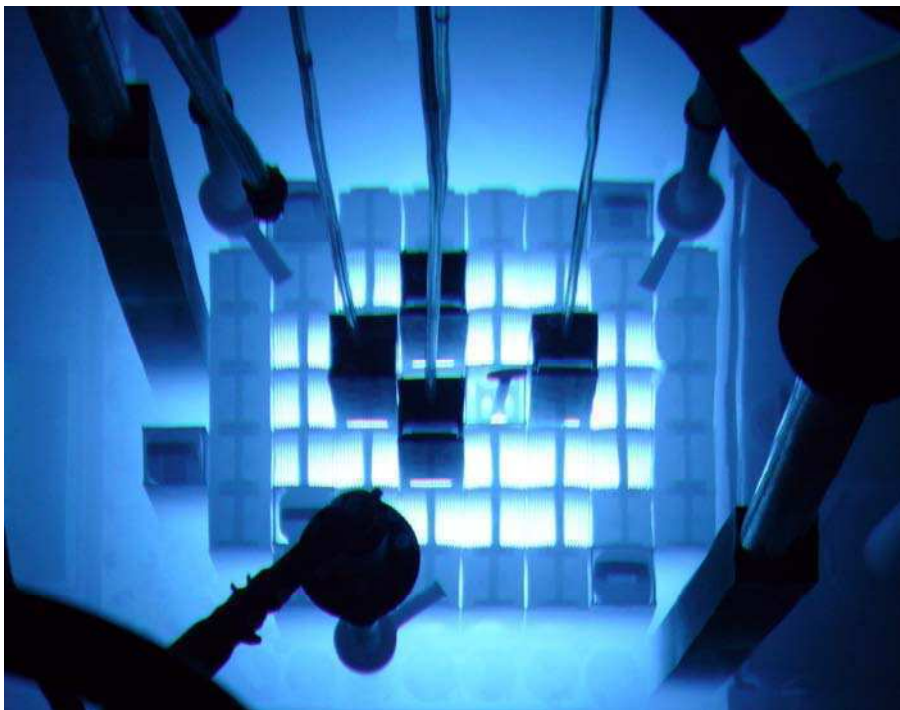


Figura 4.9: Puente de operaciones del Reactor RA-3



Figura 4.10: Núcleo del Reactor RA-3, Centro Atómico Ezeiza



Las figuras 4.7 a 4.10 muestran fotografías de los reactores RA-6 y RA-3, en las que se ven los constituyentes y dispositivos principales de sus núcleos, como los elementos combustibles (donde el brillo de la radiación Cherenkov es más intenso), las barras de control y las posiciones de irradiación, incluyendo las neumáticas. Se observan también varios de los sistemas de seguridad y control.

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

En la figura 4.11 se muestra el esquema de una configuración específica del núcleo del reactor RA-3 utilizada durante 2009 [RA-3, 2009], que corresponde a la de la fotografía 4.10. Las posiciones B5, D1, I1 e I7 están por detrás de las cajas de grafito, por lo que el espectro neutrónico está más termalizado que en D6, dentro del núcleo. La posición central G4 es la que posee el máximo flujo ($1,2 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) y se utiliza exclusivamente para la irradiación de blancos de uranio enriquecido al 20% en ^{235}U , destinados a la producción de ^{99}Mo y de ^{131}I por fisión.

Figura 4.11: Esquema del Núcleo 200 del RA-3

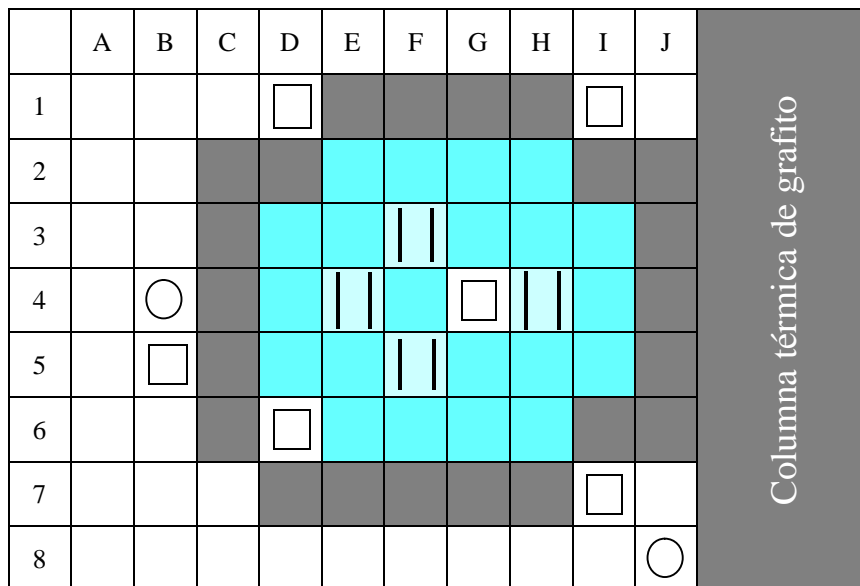
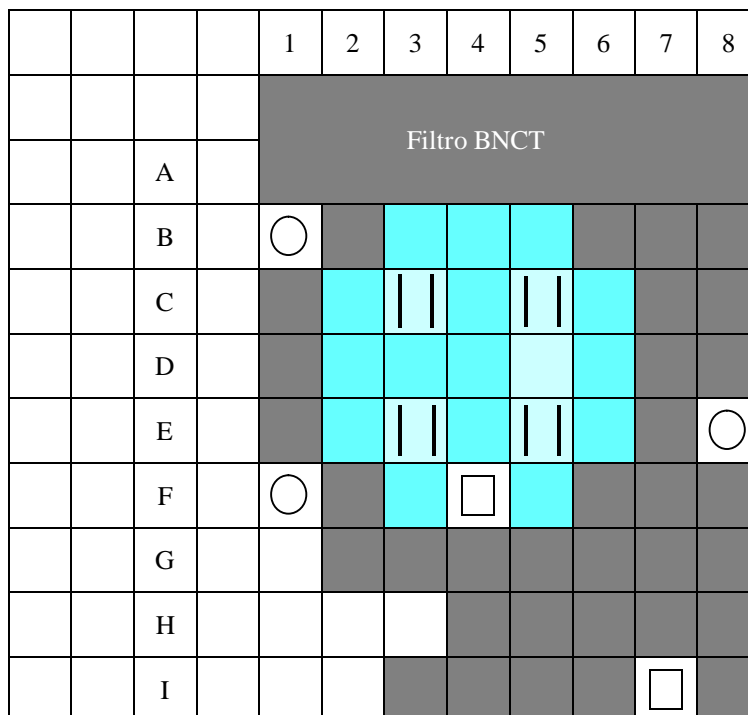







Figura 4.12: Esquema del Núcleo 15 del RA-6



4. Determinación de constantes nucleares del germanio

Referencias:

	Caja de grafito
	Elemento combustible normal
	Elemento combustible de control con “tenedor” de barras absorbedoras
	Caja de irradiación
	Detector de neutrones

La figura 4.12 representa el núcleo 15 del reactor RA-6 de Bariloche [RA-6, 2011] utilizado actualmente (julio de 2011). Las posiciones I7 y F4 son cajas de irradiación, la primera (con la facilidad neumática) en un espectro neutrónico muy termalizado y la segunda, con una contribución significativa de neutrones rápidos.



4.2. Desarrollo de la separación radioquímica de Ge y Ga

4.2.1. Antecedentes

Cuando se realizaron las primeras experiencias de caracterización de espectros e identificación de radionucleidos generados por las reacciones nucleares en estudio, se comprobó la hipótesis de que los radionucleidos formados por reacciones umbral iban a estar presentes en concentraciones al menos un par de órdenes inferior a las de aquellos producidos por captura radiante. Esto es así por sus bajas secciones eficaces en comparación con las de las reacciones (n,γ) en general.

La consecuencia inmediata de esto es la poca sensibilidad en su detección conjunta, es decir, las áreas de los picos de los espectros gamma de esos radionucleidos, son muy pequeñas frente a las de los radioisótopos de la matriz, formados por captura radiante.

Diseñando adecuadamente las series de irradiaciones y de mediciones es posible, en algunos casos, medir estos nucleidos con aceptable incertidumbre, pero es evidente que si se separan de la matriz, la calidad de sus determinaciones debería aumentar. Con esta idea, y sabiendo que las reacciones umbral de tipo (n,p) y (n,α) generan radioisótopos de otros elementos químicos, a diferencia de las (n,n') o $(n,2n)$, que producen isótopos del mismo elemento irradiado; resulta relativamente sencillo encontrar alguna vía rápida y simple de separación.

Concretamente, el método separativo motivo de esta sección fue requerido con el fin de aumentar la sensibilidad de la medición de ^{72}Ga luego de la reacción $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$, cuando se emplea al germanio como comparador y monitor integral de flujo, pero evidentemente es de aplicación también si se requiriera aislar del germanio a otros nucleidos formados por reacciones umbral, tales como $^{73}\text{Ge}(n,p)^{73}\text{Ga}$; $^{72}\text{Ge}(n,\alpha)^{69\text{m}}\text{Zn}$ y $^{74}\text{Ge}(n,\alpha)^{71\text{m}}\text{Zn}$, por lo que se prefirió exponer su desarrollo, separado de las secciones anteriores.

Como ya se explicó, si bien es factible la determinación de ^{70}Ga , ^{72}Ga o ^{74}Ga , formados por reacciones (n,p) sobre el germanio, en presencia de comparativamente mayores actividades de los radioisótopos de la matriz generados, la incertidumbre disminuye al menos un orden de magnitud si se aíslan los isótopos de galio y se miden por separado.

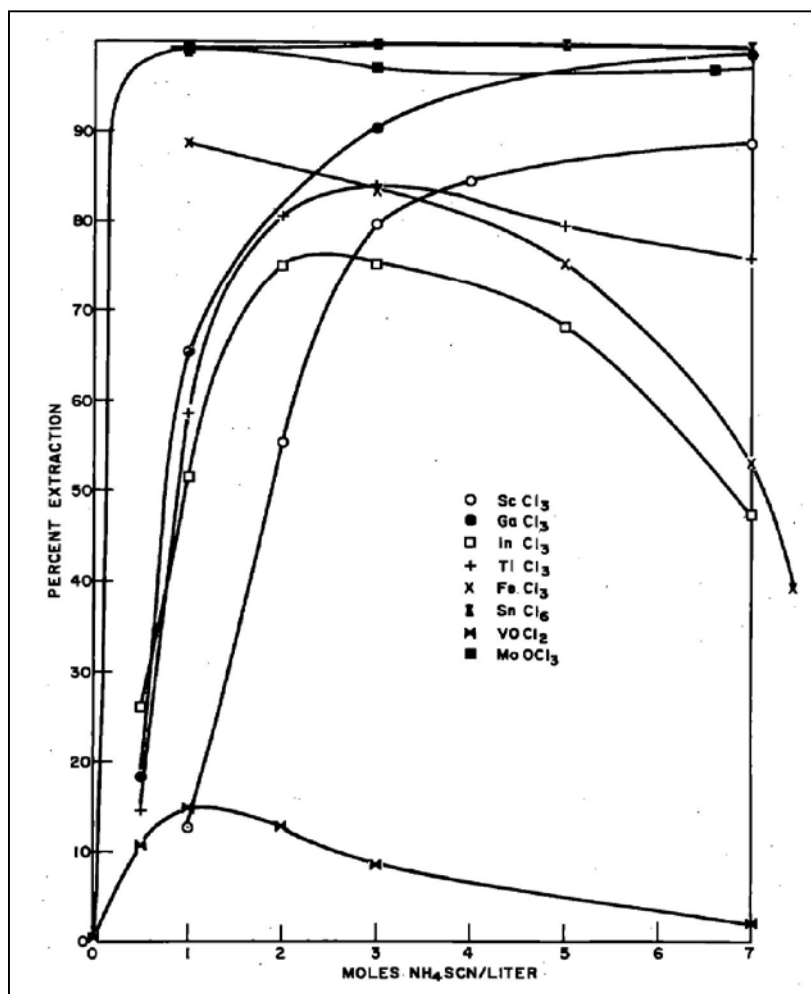
En primera instancia, se probaron separaciones estándar empleando columnas de intercambio iónico, con la intención adicional de aislar el posible cinc proveniente de las reacciones nucleares $^{72}\text{Ge}(n,\alpha)^{69}\text{Zn}$; $^{72}\text{Ge}(n,\alpha)^{69\text{m}}\text{Zn}$ y $^{74}\text{Ge}(n,\alpha)^{71\text{m}}\text{Zn}$, también buscadas. Así, se ensayó el pasaje a través de resina Dowex 1 de 50-100 mesh y de 100-200 mesh, de soluciones de Ga y Ge en proporciones adecuadas, utilizando radiotrazadores de ambos elementos para determinar los rendimientos de separación. Se probaron columnas de 8 mm de diámetro, en alturas de 20 y de 40 mm. En todos los casos, los resultados no fueron promisorios, por cuanto se desechó esta vía, a priori más atractiva por su simplicidad y seguridad operativa.

Luego pasamos a experimentar una antigua técnica encontrada en la conocida serie de procedimientos radioquímicos para diferentes elementos (Nuclear Science Series – National Academy of Sciences), en este caso “The Radiochemistry of Cobalt” [Bate et al., 1961]. La técnica, indicada para separar cobalto, fue desarrollada originalmente [Bock, 1951] para la separación de varios cationes con tiocianato en distintos medios, mencionando que en el caso

de varios cationes, entre ellos Ga(III), se emplea NH_4SCN 7 N en HCl 0,5 N y luego se extrae en éter etílico, separándose con más de 99% de rendimiento. En la publicación se señala que cationes de otros elementos, como el Ge, no se extraen, lo que dio pie a la adaptación de la técnica para esta Tesis, arribando a la separación radioquímica mencionada en la sección 4.2.3., de adecuada sencillez y con muy buenos resultados.

En la siguiente figura, extraída de otro ejemplar de la serie antes mencionada, The Radiochemistry of Vanadium [Brownlee, 1960] se grafican los porcentajes de extracción con éter etílico de distintos cationes para distintas concentraciones de tiocianato, obtenidos por Bock. Allí se muestra que el Ga(III), con $(\text{NH}_4)\text{SCN}$ 7M, se extrae casi en un 100%.

Figura 4.13: Extracción de tiocianatos con éter etílico



4.2.2. Desarrollo y resultados

Para este desarrollo se prepararon las soluciones requeridas con los radiotrazadores necesarios para medir los rendimientos de la separación. La solución de partida fue obtenida de la disolución del germanio irradiado disponiendo así de radiotrazadores de dicho elemento, básicamente ^{75}Ge y ^{77}Ge ($T_{1/2} = 82,8$ min y $T_{1/2} = 11,30$ hs), emisores de varios rayos gamma fácilmente medibles

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

En el caso del galio, se utilizó ^{67}Ga como trazador ($T_{1/2} = 3,26$ días), también emisor gamma. Si bien es importado, este radioisótopo es de relativamente fácil disponibilidad, puesto que se emplea en forma habitual en medicina nuclear para estudios de diagnóstico por imágenes. Es dable mencionar, aunque no sea información relevante para esta Tesis, que actualmente (julio de 2011) está a punto de comenzar la producción comercial de ^{67}Ga en el ciclotrón del Centro Atómico Ezeiza, con lo que se va a sustituir la importación del citado radionucleído, con un producto nacional de igual o mejor calidad, a un costo bastante menor que el importado.

Volviendo a la separación, ésta está basada en la extracción por solventes de un complejo de galio. Específicamente, se disolvieron completamente las muestras de germanio irradiadas en una mezcla de HNO_3 (c), HF (c) y H_2O_2 (c) en proporción 5:5:1, en sendos vasos de precipitado de teflón. Se llevaron a sequedad por calentamiento suave en una plancha calefactora. Se agregaron algunas gotas del HCl (c) y se volvió a llevar a sequedad. El residuo finalmente se tomó con 3 ml de HCl 0,5 N, calentando suavemente para disolverlo. Se vertió la solución sobre 2,5 g de NH_4SCN sólido en un frasco apto para la extracción, y se llevó a 5 ml con varios enjuagues al vaso de teflón con HCl 0,5 N, comprobando que no hubiese más actividad en dicho vaso. Luego, se extrajo el galio por agitación con 4 ml de éter etílico, se separaron y realizó una nueva extracción con un fracción de 1,5 ml más de éter. Ambas fracciones se unieron y se dejaron evaporar en frascos tipo penicilina, midiendo el extracto seco con un detector de GeHP. Así, se observaron fácilmente los espectros de ^{72}Ga y ^{73}Ga , así como la presencia de $^{69\text{m}}\text{Zn}$ y $^{71\text{m}}\text{Zn}$, generados por reacciones (n, α) sobre el ^{72}Ge y el ^{74}Ge respectivamente. Lamentablemente, los rendimientos para la extracción del cinc, unidos a las bajas secciones eficaces de las reacciones mencionadas, determinaron que tomáramos la decisión de no intentar nuevas determinaciones de éstas.

En los ensayos de desarrollo del método, se midieron las energías gamma del trazador ^{67}Ga : 93,3; 184,6 y 300,2 keV, utilizando un detector de GeHP Canberra de eficiencia 12% y resolución 1,9 keV y un espectrómetro multicanal Canberra Series 85, del Laboratorio de Metrología de Radioisótopos del Centro Atómico Ezeiza. Una vez probada la metodología de extracción con éter, se pasó a la realización de dos experiencias, determinándose un rendimiento de **(97,530 \pm 0,072) %**, en la recuperación del galio, resultado promedio de las dos series de mediciones, mostradas en la tabla 4.2.

Tabla 4.2. Resultados de las extracciones de Ga empleando ^{67}Ga como trazador

E_γ del ^{67}Ga (keV)	Rendimiento Exp 1 (%)	Rendimiento Exp 2 (%)
93,3	97,39	97,57
184,6	97,61	97,93
300,2	97,28	97,59
Promedios	97,427	97,697
Desv. Std.	0,092	0,117
Promedio ponderado	97,530 \pm 0,072	



4.3. Determinación de la sección eficaz de captura de la reacción $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$, promediada sobre un espectro neutrónico de reactor

4.3.1. Introducción

La necesidad de determinar en forma precisa esta sección eficaz se basa en dos aspectos: uno, académico, que se refiere a la posibilidad de mejorar los valores previos de literatura, muy discrepantes entre sí y con incertidumbres mayores en un orden de magnitud que la del valor determinado para esta Tesis. La otra, que se discutirá extensamente más adelante como uno de los puntos centrales de esta Tesis, está enfocada en el empleo simultáneo del germanio como monitor integral de flujo neutrónico y comparador empleando métodos paramétricos de análisis por activación neutrónica, como el del k_0 [Cohen y Furnari, 1999], a través de la reacción objeto de esta sección.

Con respecto a la mejora de los valores previos de la sección eficaz en literatura, se consignan estos en la tabla 4.2 para su análisis.

Tabla: 4.2. Valores publicados de la sección eficaz de captura de la reacción $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$

Sección eficaz (mb)	Cita bibliográfica	Observaciones
0,01	Rochlin, 1959	Dato experimental expresado como límite superior.
$0,044 \pm 0,07$	De Neve et al., 1966	Dato experimental
0,0218	Rau, 1967	Dato experimental consignado sin incertidumbre
0,089	Pearlstein, 1973	Valor estimado en forma teórica
0,18	Calamand, 1974	Valor estimado en forma teórica
0,0789	Horibe, 1983	Valor estimado en forma teórica

No existen hasta el presente otros valores experimentales de esta sección eficaz, promediada en un espectro de fisión [EXFOR, 2011]

Para establecer este valor se han realizado dos determinaciones independientes empleando los reactores RA-3 del Centro Atómico Ezeiza y RA-6 del Centro Atómico Bariloche y los laboratorios asociados de ambos centros, empleando además intencionalmente metodologías diferentes.

El resultado de ambas determinaciones, promediando cinco valores obtenidos en el CAE y cuatro en el CAB, fue de **(0,0959 ± 0,0049) mb** [Furnari, Cohen et al., 1994a], mejorando sustancialmente los valores preexistentes.

Para su presentación, la realización experimental se ha organizado en los siguientes tópicos:

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

- Irradiaciones
- Evaluación de impurezas de galio en el germanio
- Mediciones
- Correcciones
- Caracterización de los flujos neutrónicos
- Determinación de la sección eficaz
- Resultados y conclusiones

4.3.2. Irradiaciones

Las irradiaciones se llevaron a cabo en dos posiciones del núcleo del reactor RA-3, del Centro Atómico Ezeiza (E6-7X) y D6-2X), y en una de las posiciones cercanas al centro del núcleo del reactor RA-6, del Centro Atómico Bariloche (F5). Los flujos rápidos en dichas posiciones fueron de $2 \cdot 10^{11}$ a $7 \cdot 10^{12}$ $\text{n} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ en el RA-3; y de $8 \cdot 10^{11}$ $\text{n} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ en el RA-6.

En el RA-3 se realizaron irradiaciones de 3 a 10 horas de duración, con la metodología habitual de posicionamiento manual de las muestras en el reactor. En cambio, en el RA-6, gracias a su sistema neumático, fue posible realizar irradiaciones cortas, de 2 a 30 minutos, evaluando los radioisótopos más cortos, tanto del germanio como de los monitores de flujo.

Las muestras de germanio fueron acondicionadas según lo explicado en 4.1.1. e irradiadas en los recipientes correspondientes tal como se expuso en 4.1.3. y 4.1.4. El germanio y los monitores de flujo fueron pesados con una ultramicrobalanza Sartorius M9 ($s = 0,1 \mu\text{g}$).

4.3.3. Evaluación de impurezas de galio en el germanio

Una parte especial de las preparaciones previas a la determinación en sí de la sección eficaz, fue la evaluación de la presencia del elemento galio en la matriz de germanio, puesto que, a pesar de su altísima pureza, quisimos tener una evidencia objetiva de la ausencia de galio, pues este elemento suele ser una de las pocas impurezas probables en este material. La eventual presencia de galio aun en nivel de ultratrazas podría provocar problemas en la determinación, puesto que la existencia de ^{71}Ga , uno de los dos isótopos naturales del mencionado elemento daría lugar a la reacción $^{71}\text{Ga}(n,\gamma)^{72}\text{Ga}$ y podría causar un error sistemático en los resultados del trabajo al formarse el mismo producto central de esta determinación.

Una de las vías para detectar en forma directa la existencia de galio sería aplicando la técnica de análisis por activación neutrónica a través de la reacción planteada al final del párrafo anterior. En este caso, debería irradiarse con neutrones totalmente termalizados (condición ideal, prácticamente inalcanzable) para evitar en forma absoluta la reacción (n,p) sobre la matriz de germanio, puesto que este último elemento se halla en abrumadora mayoría y un pequeño flujo rápido ya produciría la reacción (n,p) sobre el ^{72}Ge . Para acercarse a esta condición puede emplearse la columna térmica del reactor RA-3, pero allí, el flujo térmico no

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

supera valores de $10^9 \text{ s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$, lo cual disminuiría fuertemente la sensibilidad de la determinación. Con estas consideraciones es fácil concluir que esta metodología no resultaría conveniente

En cambio, la vía que se ideó para detectar la presencia de galio es por medio de la evaluación de las cantidades de ^{72}Ga formadas por irradiación con neutrones bajo un filtro de cadmio y sin él. La fundamentación es que, si no existen cantidades significativas de galio, no se deberían observar diferencias entre las actividades del ^{72}Ga producido en la irradiación bajo cadmio, es decir sólo por la reacción $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$, con respecto al generado por irradiación sin cadmio, en la que se sumaría la contribución de la reacción $^{71}\text{Ga}(n,\gamma)^{72}\text{Ga}$. Para evaluar esto evitando pesadas y determinaciones de actividad con curvas de eficiencia, se optó por una modalidad simple y precisa tomando como referencia al ^{73}Ga , que se forma sólo con neutrones rápidos a través de la reacción (n,p) sobre el isótopo estable ^{73}Ge . De esta manera, la cantidad de ^{73}Ga formada por unidad de masa de Ge debería ser igual en ambas irradiaciones, y su relación con el ^{72}Ge formado en las mismas irradiaciones debería ser constante si no existiera galio como impureza.

Para realizar la experiencia, se irradiaron dos pequeñas porciones del germanio disponible de unos 30 mg, previo decapado, lavado y secado como ya se mencionó. Una de ellas se colocó dentro de un pequeño recipiente de cadmio de 1 mm de espesor de pared y la otra se posicionó alejada de la primera en el mismo recipiente de irradiación, sin cobertura de cadmio alguna. Se irradió durante 2 horas en la posición D2 del reactor RA-6, que posee una relación de flujos de aproximadamente 30:1 y se obtuvieron los espectros midiendo durante 1 a 2 horas, luego de 4 horas de decaimiento.

Por la naturaleza de las reacciones nucleares inducidas, los picos de los citados radionucleidos en los espectros medidos resultaron de bajo conteo, por lo que fue necesario aumentar la sensibilidad de la determinación mediante la realización de una separación radioquímica. Para esto, se aplicó la técnica cuyo desarrollo se describió en la sección 4.2., con un rendimiento superior al 97%. Con esta técnica se obtuvo una fracción donde se encontraban el ^{72}Ge y el ^{73}Ge en presencia de cantidades mucho menores de los radioisótopos de germanio. Resulta algo ocioso destacar que, más allá del excelente porcentaje de extracción, la relación entre las actividades de ambos radioisótopos de galio es, obviamente, independiente del rendimiento de la separación.

Se midieron las áreas de los picos de 630,0; 834,1; 894,3 y 1050,9 keV del ^{72}Ga y los picos de 297,3 y 325,7 keV del ^{73}Ga . Los detalles operativos de las mediciones se detallan en la sección siguiente. Se calcularon los cocientes $(A_{\text{Ga-72}}/A_{\text{Ga-73}})_S / (A_{\text{Ga-72}}/A_{\text{Ga-73}})_{\text{Cd}}$ listados en la tabla 4.3, según el concepto explicado antes, donde

)_S : irradiación sin Cd

)_{Cd} : irradiación bajo Cd

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

Tabla 4.3: Cocientes $(A_{Ga-72}/A_{Ga-73})_S / (A_{Ga-72}/A_{Ga-73})_{Cd}$

Expresiones de los cocientes	Resultados
$(A-630,0 / A-297,3)_S / (A-630,0 / A-297,3)_{Cd}$	$0,9930 \pm 0,0041$
$(A-630,0 / A-325,7)_S / (A-630,0 / A-325,7)_{Cd}$	$1,0130 \pm 0,0031$
$(A-834,1 / A-297,3)_S / (A-834,1 / A-297,3)_{Cd}$	$0,9970 \pm 0,0051$
$(A-834,1 / A-325,7)_S / (A-834,1 / A-325,7)_{Cd}$	$0,9764 \pm 0,0034$
$(A-894,3 / A-297,3)_S / (A-894,3 / A-297,3)_{Cd}$	$0,9958 \pm 0,0030$
$(A-894,3 / A-325,7)_S / (A-894,3 / A-325,7)_{Cd}$	$1,0164 \pm 0,0038$
$(A-1050,9 / A-297,3)_S / (A-1050,9 / A-297,3)_{Cd}$	$1,0027 \pm 0,0094$
$(A-1050,9 / A-325,7)_S / (A-1050,9 / A-325,7)_{Cd}$	$1,0235 \pm 0,0038$
promedio simple	$1,0020 \pm 0,0063$
promedio pesado	$0,9975 \pm 0,0021$

Tanto el promedio simple como el pesado, considerando sus incertidumbres, coinciden prácticamente con el valor nominal 1,0000. Por tal razón es posible considerar que si existieran impurezas de galio en las muestras de germanio, ellas no afectarían al valor determinado de la sección eficaz y eventualmente estarían incluidas en la incertidumbre consignada de este último. En otras palabras, se concluye que no existen impurezas de galio en el germanio que puedan causar errores sistemáticos significativos en las mediciones sucesivas que dependan de ello.

Para comprobar la fortaleza del método, y ensayando una suerte de validación del mismo, se estimó cómo variarían estos cocientes con una presencia apreciable de galio y cuánto podría influir ese nivel de impurezas en la determinación de la sección eficaz en cuestión.

En principio, puesto que la actividad de un radionucleido generado por activación es proporcional a la masa de su precursor (ec. 3.1), se observa fácilmente que si existiese una contribución de actividad de ^{72}Ga por la presencia de galio como impureza, aumentarían las áreas de sus picos en un factor igual en el que aumentarían los cocientes de prueba, y también sería el mismo que afectaría como error por exceso a los cálculos de la sección eficaz.

Como corolario de la prueba, se calculó el efecto que causaría una impureza de 1 ppm de galio en una muestra de 30 mg de germanio, resultando, para una relación de flujos térmico a epitérmico típica de 3:1, en un aumento de 8 % en la actividad de ^{72}Ga . Se estima que se puede cuantificar con certeza un aumento de 1 % en las áreas de los picos considerados, lo que representa la detección de aproximadamente 0,1 ppm de galio. Si se estableciera 1 % como límite aceptable de incertidumbre, una concentración de 0,1 ppm de galio resultaría entonces el límite de impureza para el germanio que se emplee a través de esta sección eficaz.

Por último, el hecho de obtener valores prácticamente coincidentes de la sección eficaz en diferentes posiciones de los reactores, con relaciones de flujo considerablemente distintas, es una evidencia indirecta de la “ausencia” del galio como impureza (al menos, que no es detectable con un límite de detección de 0,1 ppm).

Finalmente, se han revisado otras vías de formación de ^{72}Ga a partir de la matriz de germanio, para estimar si pueden influir en la determinación de la sección eficaz de la reacción estudiada. Por ejemplo, nuestro producto en estudio se puede formar de las siguientes maneras: $^{73}\text{Ge}(n,2n)^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$ o bien $^{73}\text{Ge}(n,d)^{72}\text{Ga}$ o, aun menos probable, $^{76}\text{Ge}(n,\alpha)^{72}\text{Zn}(\beta)^{72}\text{Ga}$, entre otras [Forrest, 2009], pero ni ninguna de ellas se genera con probabilidad suficiente para que pueda modificar el valor determinado en esta parte de la Tesis.

4.3.4. Mediciones

En el caso del RA-6, las irradiaciones llevadas a cabo involucraron radionucleidos de periodos cortos, que se emplearon también en la determinación de las secciones eficaces de las reacciones $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$ y $^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$ [Cohen, Furnari et al., 1992 y 1996], que se expone más adelante en la sección 4.4. En esta ocasión se realizaron irradiaciones de 3 a 4 minutos y mediciones de 15 a 30 minutos, luego de dejar decaer durante 5 a 6 minutos los radioisótopos cortos $^{75\text{m}}\text{Ge}$ y $^{77\text{m}}\text{Ge}$, de $T_{1/2}$: 47,7 y 52,9 segundos, respectivamente. Es de hacer notar que estos últimos radioisótopos poseen radiaciones de intensidad y/o energías inconvenientes para efectuar mediciones de ^{72}Ga buena calidad. Así, el $^{75\text{m}}\text{Ge}$ presenta un rayo gamma muy intenso de 139,5 keV y el $^{77\text{m}}\text{Ge}$ emite radiación beta de energía máxima 2,86 MeV que genera importante radiación de frenamiento (Bremsstrahlung). Ambas radiaciones provocan muy altos conteos en la región de bajas y medias energías, con pérdidas por tiempo muerto y efecto suma. En ciertos casos, para obtener espectros más limpios y mejor estadística de conteo, se realizaron mediciones de unas 6 hs. luego de decaimientos de varias horas.

En ambas series de determinaciones, las líneas de medición fueron sistemas de espectrometría gamma de alta resolución con detectores de GeHP, analizadores multicanal, componentes electrónicos asociados y sistemas de adquisición y procesamiento de datos.

En el CAB se empleó un detector coaxial de GeHP ORTEC Gamma X intrínseco-N, de 67 cm^3 y 12% de eficiencia, con resolución de 2,0 keV a 1,33 MeV, asociado a un multicanal Nuclear Data ND76. El análisis espectral y los cálculos subsiguientes fueron realizados con el programa Nuclear Data VAX/VMS Spectroscopy Applications Package, versión 15.7, corrido en la computadora VAX 11/780 del Centro Atómico.

En el CAE se utilizó un detector coaxial de GeHP marca Canberra intrínseco-N de 15% de eficiencia y un multicanal marca Canberra Series 85 con un programa propio de adquisición y análisis espectral. En este caso, para los cálculos se empleó un programa desarrollado en el laboratorio por el autor para PC, basado en el cálculo de áreas de picos según el método de Covell [Ídem, 1959].

Las mediciones fueron llevadas a cabo a distancias fuente-detector de más de 15 cm con el fin de minimizar efectos suma, y con conteos adecuadamente bajos para evitar apilamiento de pulsos.

También se tomó la precaución de disminuir efectos indeseables por la presencia de emisiones gamma de bajas energías (198,6; 211,0; 215, 5; 264,4 keV, entre otras) de ^{75}Ge y ^{77}Ge , colocando filtros sobre los detectores. Así, disminuyeron las pérdidas por tiempo muerto, se minimizaron la región de la distribución Compton y las diversas sumas en coincidencia, y las radiaciones de 834,1 keV y 2201,7 keV del ^{72}Ga se determinaron con mayor sensibilidad y

menor incertidumbre. Para tal fin, se empleó en el CAB un filtro de Pb-Cd-Cu de 6,4 mm; 1,2 mm y 1,0 mm de espesor de dichos materiales, respectivamente. Por su lado, en el CAE se usó un filtro de plomo de 5 mm de espesor.

En el caso de las irradiaciones en el RA-6 - CAB, se disponía de curvas de eficiencias absolutas del detector en condiciones sin filtro de Pb-Cu-Cd, por lo que se midió una fuente mixta de ^{60}Co , $^{110\text{m}}\text{Ag}$ y ^{182}Tl , con diversos picos gamma a lo largo de todo el espectro, y se determinaron los coeficientes de atenuación gamma para cada energía, confeccionando así nuevas curvas de eficiencia correspondientes al detector bajo el filtro. De esta manera se pudieron determinar con exactitud las actividades de los radionucleidos medidos, a partir de las áreas de los picos gamma de interés correspondientes.

En el caso de las irradiaciones en el RA-3, Centro Atómico Ezeiza, se realizaron curvas de eficiencia ad hoc con patrones calibrados, en presencia del filtro de plomo, con las cuales se calcularon las actividades de los radioisótopos medidos.

4.3.5. Correcciones

Como es habitual, cada resultado de las mediciones se corrigió por decaimiento desde el fin de la irradiación hasta el inicio de la medición; y, cuando el tiempo de medición se acercó al orden del $T_{1/2}^*$, también se corrigió por decaimiento durante la medición, a través de la ecuación ya mencionada en la sección 3.1, que permite calcular el factor correspondiente M

$$M = \frac{\lambda \cdot t_m}{1 - e^{-\lambda \cdot t_m}} \quad (\text{ec. 3.3})$$

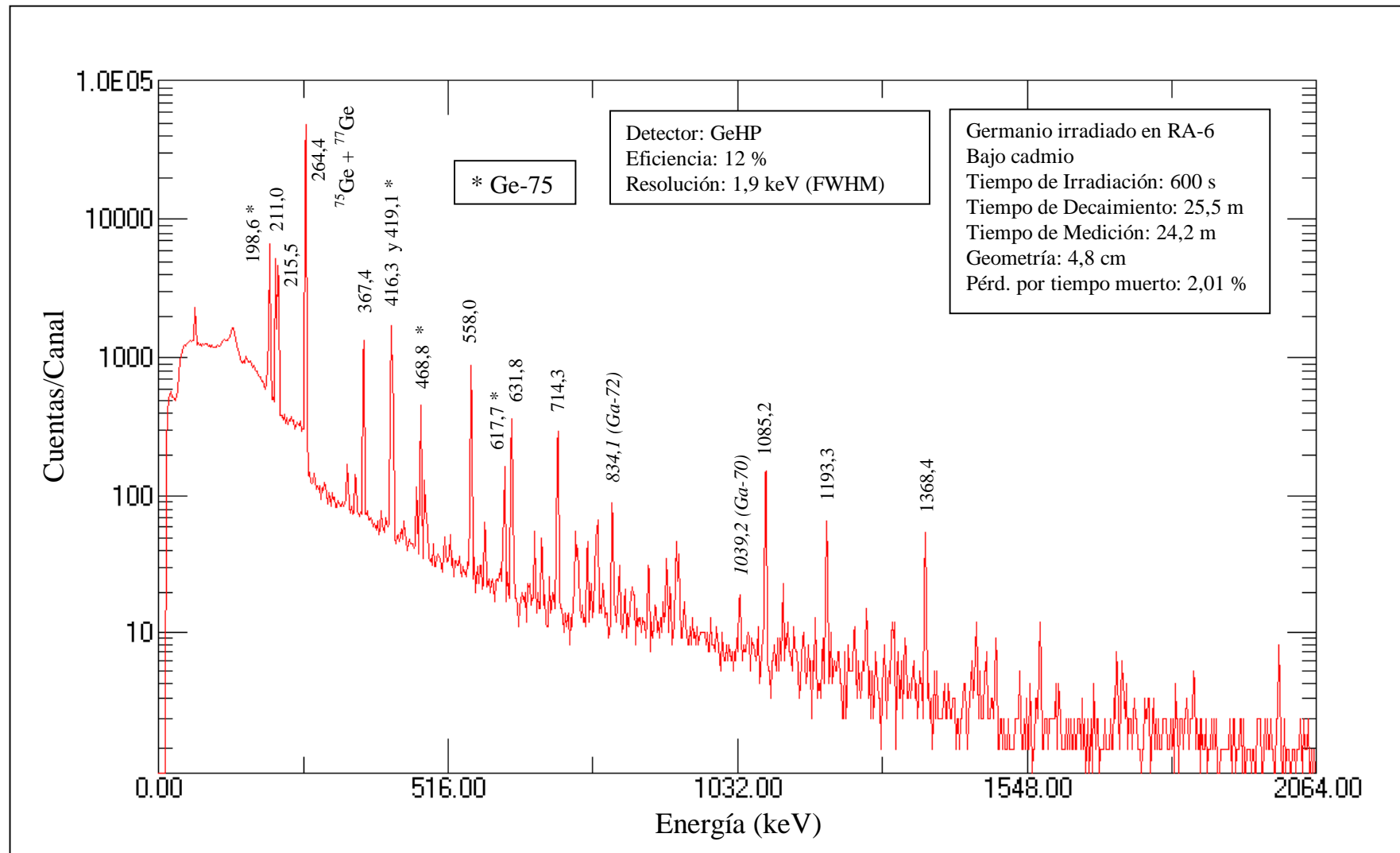
Las pérdidas por tiempo muerto son corregidas, en general, en forma automática por los analizadores multicanal. Esto se realiza alargando el tiempo de conteo (*tiempo real*) de tal manera de compensar las pérdidas por tiempo muerto que se producen durante el tiempo prefijado (*tiempo vivo*). Obviamente, en los cálculos de decaimiento se emplea el tiempo real, y en los de tasa de conteo, el tiempo vivo.

Con respecto al germanio irradiado, puesto que el flujo del reactor y los tiempos de irradiación en el RA-6 fueron mucho menores que los respectivos del RA-3, las muestras del citado elemento que se irradiaron en aquel reactor fueron bastante más gruesas y pesadas que las que se emplearon en el RA-3. En el caso del primer reactor, los cristales pesaron alrededor de 300 mg, con espesores de hasta 1,8 mm; mientras que en el RA-3 las masas de las muestras fueron de 20 a 30 mg, con espesores de 0,2 a 0,4 mm.

* En rigor, los resultados resultan siempre alterados por el decaimiento durante las mediciones, pero el efecto se hace significativo a partir de tiempos de medición unos dos órdenes de magnitud menores que el $T_{1/2}$; en ese caso exacto, el factor M resultaría 1,0035.

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

Figura 4.14: Espectro de germanio irradiado bajo cadmio, hasta 2064 keV. ^{75}Ge (*); ^{77}Ge (el resto de las energías indicadas)



4. Determinación de constantes nucleares del germanio

En la figura 4.14 se muestra, a manera de ejemplo, un espectro gamma completo de germanio irradiado bajo cadmio, para apreciar su complejidad. Se observan las líneas gamma más abundantes de ^{75}Ge y ^{77}Ge , así como los picos principales de ^{70}Ga y ^{72}Ga . Con espectros de este tipo se realizaron las determinaciones correspondientes a esta sección de la Tesis y también las de la sección siguiente, referida a los isótopos ^{70}Ge y ^{74}Ge .

En todos los casos necesarios, las mediciones se corrigieron por autoabsorción de la radiación gamma correspondiente, calculando los factores de corrección a partir de la siguiente ecuación [Debertin y Helmer, 1988, pág. 283]:

$$B = \frac{\mu \cdot x}{1 - e^{-\mu \cdot x}} \quad (\text{ec. 4.1})$$

donde,

μ : Coeficiente lineal de absorción, dependiente de la energía y del material

x : Espesor del material

En la tabla 4.4 se consignan los coeficientes de absorción μ resultantes a su vez de la interpolación de valores calculados con la ecuación 4.1, respectivos al germanio, para algunas energías de interés.

Tabla 4.4: Coeficientes de absorción lineal μ del germanio, para energías de interés

E_γ (keV)	198,6	211,0	215,5	264,5	367,4	416,3	558,0	834,1	2201,7
μ (cm^{-1})	0,8925	0,8401	0,8235	0,7285	0,5261	0,4858	0,4129	0,3353	0,2103

A modo de ejemplo, se consignan en la tabla 4.5 algunos factores de corrección calculados para las energías gamma emitidas por el ^{72}Ga contenido en las muestras irradiadas de germanio, y también para las principales emisiones gamma medidas para el ^{75}Ge y por el ^{77}Ge , para distintos espesores, medidos con micrómetro, del elemento.

Tabla 4.5: Factores de corrección B , por autoabsorción en germanio y en titanio

Nucleido	Energía (keV)	Espesores (mm)					
		0,25	0,45	0,61	1,24	1,75	1,00 (Ti)
^{72}Ga	834,1	1,0042	1,00756	1,0103	1,0209	1,0296	--
	2201,7	1,0026	1,00474	1,00643	1,0131	1,0185	--
^{75}Ge	198,6	1,0112	1,0202	1,0275	1,0564	1,0801	--
	264,6	1,00913	1,0165	1,0224	1,0458	1,0651	--

Tabla 4.5 (continuación)

Nucleido	Energía (keV)	Espesores (mm)					
		0,25	0,45	0,61	1,24	1,75	1,00 (Ti)
⁷⁷ Ge	211,0	1,0105	1,0190	1,0258	1,0530	1,0753	--
	215,5	1,0103	1,0186	1,0253	1,0519	1,0738	--
	367,4	1,0066	1,0119	1,0161	1,0330	1,0467	--
	416,3	1,0061	1,0110	1,0149	1,0304	1,0431	--
	558,0	1,0052	1,0093	1,0127	1,0258	1,0366	--
⁴⁶ Sc	889,3	--	--	--	--	--	1,0289
	983,5	--	--	--	--	--	1,0273
	1037,5	--	--	--	--	--	1,0268
	1120,5	--	--	--	--	--	1,0256
	1312,1	--	--	--	--	--	1,0235

Como se observa, en el caso las correcciones van desde 0,26% para 2201,7 keV y 0,25 mm de espesor, hasta 8 % para 198,6 keV y 1,75 mm de espesor de germanio. Se realizaron correcciones análogas para todos los monitores de flujo. Por ejemplo, para el oro empleado en hojuelas de 0,0254 mm de espesor, los rayos gamma de 411,8 keV del ¹⁹⁸Au sufren una autoabsorción que se corrige por un factor 1,00511.

4.3.6. Caracterización y cuantificación de los flujos neutrónicos

Para estas experiencias, los flujos neutrónicos fueron cuantificados en el RA-3 con monitores de hierro a través de la reacción $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$; y en el reactor RA-6 mediante monitores de titanio según las reacciones $^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$; $^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$ y $^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$, tal como se explica más adelante.

Además de su cuantificación, resulta imprescindible caracterizar los flujos en las posiciones citadas de los reactores y demostrar la similitud de sus espectros neutrónicos con uno típico de fisión. Esto es necesario con el fin de que los datos nucleares que se determinen a partir de sus irradiaciones sean compatibles y aplicables en otros lugares donde se irradian con flujos neutrónicos de conformación análoga. Esto equivale formalmente a una normalización de los datos.

Con tal fin, en el caso del reactor RA-3, se realizaron experiencias irradiando conjuntamente monitores de hierro, titanio y manganeso, que poseen diferentes energías umbral, calculando y comparando los valores de flujo obtenidos según las reacciones ya citadas. En el caso del manganeso se empleó una aleación de Mn/Cu con un contenido de 80,0% en Mn; se midió el producto de la reacción $^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$.

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

Para los cálculos, se empleó la siguiente ecuación:

$$\Phi_r = \frac{W}{\theta \cdot m \cdot N_A} \cdot \frac{R}{i_\gamma \cdot \varepsilon_\gamma} \cdot \frac{1}{\sigma \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_{irr}}) \cdot e^{-\lambda \cdot t_d}} \quad (\text{ec. 4.2})$$

donde,

Φ_r : Flujo neutrónico rápido

W y m : Masa atómica relativa y masa del elemento blanco, respectivamente.

θ : Abundancia isotópica del isótopo precursor

N_A : Número de Avogadro

R : Área del pico gamma medido

i_γ : Intensidad de la emisión gamma medida

ε_γ : Eficiencia de medición de la emisión gamma considerada

σ : Sección eficaz de la reacción correspondiente

λ : Constante de desintegración del radionucleido generado

t_{irr} : Tiempo de irradiación

t_m : Tiempo de medición

Para el RA-6, en cambio, se tomaron como referencia irradiaciones realizadas con anterioridad [Salas Bacci, 1991] en la misma posición y configuración del núcleo del reactor, en las que se emplearon monitores de magnesio, aluminio, hierro y níquel, de acuerdo a las reacciones $^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$; $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$; $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$.

Los flujos rápidos ϕ_r calculados a partir de las irradiaciones en el RA-3 con los distintos monitores, que se muestran en la tabla 4.6 resultan en una buena concordancia entre sí para cada posición de irradiación, lo que demuestra que los espectros neutrónicos de ambos reactores no difieren significativamente de un espectro típico de fisión. De esta manera, como se dijo, las secciones eficaces determinadas se pueden considerar normalizadas en los términos antes descritos, por lo tanto de uso universal y publicables.

Tabla 4.6: Resultados de la determinación de flujos neutrónicos en el RA-3

Reacción	ϕ_r [s ⁻¹ .cm ⁻²]
$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	(1,01 ± 0,02). 10 ¹³
$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	(1,03 ± 0,02). 10 ¹³
$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	(0,92 ± 0,02). 10 ¹³
$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	(1,01 ± 0,05). 10 ¹³
$^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$	(1,10 ± 0,05). 10 ¹³

Las constantes de los materiales mencionados vinculadas a los cálculos, que se consignan en las tablas 4.7 y 4.8, se obtuvieron de Calamand, 1974; Baard et al., 1989; Tuli, 1990 e IUPAC, 1994. Las energías e intensidades de las emisiones gamma fueron extraídas de la tabla de Browne et al., 1986. Posteriormente, los resultados fueron renormalizados utilizando el conjunto de valores con vigencia en 2011, como se verá en la sección 6.4.2.

Tabla 4.7: Constantes atómicas y nucleares empleadas

Elemento	W	Reacción	θ (%)	E_{ef} (MeV)	σ_F (mb)
Ge	$72,61 \pm 0,02$	$^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$	$27,66 \pm 0,03$	6,1	Objeto de la determinación
Ti	$47,88 \pm 0,03$	$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	$8,0 \pm 0,1$	5,6	$11,8 \pm 0,4$
		$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	$7,3 \pm 0,1$	3,7	$18,0 \pm 0,6$
		$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	$73,8 \pm 0,1$	8,3	$0,307 \pm 0,011$
Fe	$55,847 \pm 0,003$	$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	$5,8 \pm 0,1$	4,1	$81,7 \pm 2,2$
Mn	$54,93805 \pm 0,00007$	$^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$	100	13	$0,258 \pm 0,013$

Donde:

W : Masa atómica relativa del elemento involucrado

θ : Abundancia isotópica del isótopo precursor de la reacción señalada

E_{ef} : Energía umbral efectiva de la reacción considerada

σ_F : Sección eficaz de captura, promediada sobre un espectro de fisión

Tabla 4.8: Principales datos nucleares de los radionucleidos producidos

Radionucleido	$T_{1/2}$	E_γ (keV)	i (%)
^{72}Ga	$(14,10 \pm 0,02)$ h	834,1	95,63 (<0,1 %)
		2201,7	25,90 (0,5 %)
^{46}Sc	$(83,810 \pm 0,010)$ d	889,3	$99,9840 \pm 0,0010$
		1120,5	$99,9870 \pm 0,0010$
^{47}Sc	$(3,345 \pm 0,003)$ d	159,4	$68,3 \pm 0,4$
^{48}Sc	$(43,7 \pm 0,1)$ h	983,5	$100,0 \pm 0,3$
		1037,5	$97,5 \pm 0,5$
		1312,1	$100,0 \pm 0,5$
^{54}Mn	$(312,14 \pm 0,05)$ d	834,8	$99,975 \pm 0,001$

4.3.7. Determinación de la sección eficaz

En el Centro Atómico Ezeiza, las irradiaciones se realizaron durante 3 a 6 horas en el RA-3, dependiendo de la masa de Ge elegida; y las mediciones se realizaron como se explicó, en forma secuencial con decaimientos entre 6 y 24 horas para cada muestra.

En virtud de la coincidencia prácticamente exacta de la energía de emisión del ^{54}Mn (834,9 keV) con la primera citada del ^{72}Ga (834,1 keV), se pueden considerar iguales las eficiencias de medición para igual geometría, lo que permitió realizar comparaciones directas del conteo de las muestras de germanio y de hierro irradiadas en Ezeiza, disminuyendo sustancialmente las incertidumbres del cálculo por no necesitar de curvas de eficiencia confeccionadas a partir de varios patrones con distintas energías. Al respecto, es de observar que una diferencia de 0,7 keV (incluso puede extenderse hasta unos 2 keV) no altera el valor de la eficiencia de la medición, por lo que es válido el procedimiento.

Los cálculos se efectuaron sobre la base de la ecuación:

$$\sigma = \frac{R_{corr}^{Ga} \cdot W_{Ge}}{m_{Ge} \cdot N_A \cdot \theta_{Ge-72} \cdot i_{\gamma Ga} \cdot \varepsilon \cdot \phi \cdot (1 - e^{-\lambda_{Ga-72} \cdot t_{irr}}) \cdot e^{-\lambda_{Ga-72} \cdot t_{dGe}}} \quad (\text{ec. 4.3})$$

En la que

$$\varepsilon \cdot \phi = \frac{R_{corr}^{Fe} \cdot W_{Fe}}{m_{Fe} \cdot N_A \cdot \theta_{Fe-54} \cdot i_{\gamma Mn-54} \cdot (1 - e^{-\lambda_{Mn-54} \cdot t_{irr}}) \cdot e^{-\lambda_{Mn-54} \cdot t_{dFe}}} \quad (\text{ec. 4.4})$$

Respectivamente, en todos los casos es:

R_{corr}^{Ga} y R_{corr}^{Fe} : Áreas corregidas por autoabsorción y por decaimiento durante la medición, de los radionucleidos ^{72}Ga y ^{54}Mn .

W_{Ge} y W_{Fe} : Masas atómicas relativas de los elementos Ge y Fe.

m_{Ge} y m_{Fe} : Masas de las láminas de Ge y Fe irradiadas.

θ_{Ge-72} y θ_{Fe-54} : Abundancias isotópicas, expresadas por unidad, de los nucleidos consignados

$i_{\gamma Ga}$ e $i_{\gamma Mn-54}$: Intensidad de emisión gamma de los radioisótopos citados

λ_{Ga-72} y λ_{Fe-54} : Constantes de desintegración de los radionucleidos estipulados.

t_{dGe} y t_{dFe} : Tiempos de decaimiento del Ge y del Fe irradiados

$\varepsilon \cdot \phi$: eficiencia de medición para 834 keV, coincidente para las emisiones gamma de ^{72}Ga y ^{54}Mn ; por flujo neutrónico, común al Ge y el Fe, irradiados simultáneamente.

t_{irr} : Tiempo de irradiación, igual en ambos casos.

N_A : Número de Avogadro, que se cancela al realizar los cálculos.

Por su parte, en el Centro Atómico Bariloche se trabajó con otra metodología, de acuerdo a la modalidad de rutina del laboratorio y a sus programas de cálculo. Allí se emplearon las dos energías mencionadas del ^{72}Ga , procesando las áreas de sus picos en comparación con una curva de eficiencia relativa obtenida por medición de una fuente de referencia mixta de ^{60}Co ,

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

^{108m}Ag , ^{110m}Ag y ^{182}Ta . Esta fuente se midió con y sin el filtro de Pb-Cd-Cu con el fin de normalizar los valores y transferirlos a curvas de eficiencia absoluta previamente determinadas y controladas periódicamente con patrones metrológicos en el laboratorio, sin el filtro absorbedor. Esta metodología provoca incertidumbres mayores, pero simplifica el esquema de mediciones.

Para el detector utilizado, el Grupo de Análisis por Activación del Centro Atómico Bariloche posee una tabla de eficiencias para diferentes energías, normalizada para una distancia alejada (264,5 mm) dada por un determinado espaciador. Luego, para obtener las eficiencias para distintas energías y a otras distancias, se emplean cuatro cálculos sucesivos a), b), c) y d).

- a) Se calcula la eficiencia para la energía buscada E_x interpolando entre dos valores de energía de las tablas, mediante la siguiente ecuación:

$$\ln \varepsilon_x = \frac{\ln \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}{\ln \frac{E_1}{E_2}} \cdot \ln \frac{E_x}{E_1} + \ln \varepsilon_1 \quad (\text{ec. 4.5})$$

La eficiencia ε_x calculada, corresponde a una distancia fuente-detector de 264,5 mm, por lo que

- d) Se calcula la eficiencia para la distancia de medición d mediante la ecuación

$$\varepsilon(E_x; d) = \varepsilon(E_x; 264,5) \cdot G(E_x; d) \quad (\text{ec. 4.6})$$

Siendo

$\varepsilon(E_x; 264,5)$: eficiencia ε_x calculada en el paso anterior y

$G(E_x; d)$: factor geométrico que depende de la energía E_x y la distancia d , calculado según

$$\text{c) } G(E_x; d) = \left(\frac{264,5 + y}{d + y} \right)^2 \quad (\text{ec. 4.7})$$

Por lo que

- b) se calcula previamente el factor y (que se expresa dimensionalmente en mm), según la curva de ajuste experimental, con el conjunto de valores de la tabla:

$$y = a_0 + a_1 x + a_2 x^2 + a_3 x^3 \quad (\text{ec. 4.8})$$

en la que $x = \ln E_x$

a_0	-15,159
a_1	12,349
a_2	-0,9678
a_3	0,015101

En la tabla 4.9 se consignan los valores de las eficiencias para una distancia de 264,5 mm

Tabla 4.9: Valores de eficiencia del Detector GeHP1, a 264,5 mm (CAB)

E_γ (keV)	ε (%)	E_γ (keV)	ε (%)
50,0	0,12000	300,0	0,05560
70,0	0,12609	500,0	0,03200
96,0	0,12080	700,0	0,02270
110,0	0,11607	1100,0	0,01481
130,0	0,10700	1200,0	0,01360
150,0	0,10000	1500,0	0,01100
210,0	0,07770	2000,0	0,00820
250,0	0,06840	2500,0	0,00660

4.3.8. Resultados y conclusiones

Como se adelantó, se obtuvieron cinco valores de la sección eficaz de la reacción $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$ con las experiencias realizadas en el Centro Atómico Ezeiza, y cuatro en el Centro Atómico Bariloche, que se exponen en la tabla 4.10.

Tabla 4.10: Resultados individuales de la sección eficaz de la reacción $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$

Laboratorio	Determinación	Valores obtenidos (μb) *	Incertidumbre (%) **
CAE	1	97,017	2,59
	2	97,557	1,35
	3	98,676	3,09
	4	81,627 (**)	3,67
	5	90,340	3,06
	Promedio pesado	95,608	1,28
CAB	1	108,983	12,7
	2	97,147	3,44
	3	106,506	13,3
	4	99,125	8,39
	Promedio pesado	98,542	5,13
	Promedio pesado total	95,90	2,4
Valor final, incluyendo las incertidumbres sistemáticas: (0,0959 \pm 0,0049) mb [Furnari, Cohen et al., 1994a]			

* La aparente sobreabundancia de cifras significativas en los valores individuales responde a la metodología de efectuar el redondeo sólo al final de todas las operaciones matemáticas

** Se expresan sólo las componentes aleatorias

*** Este dato fue verificado mediante tests estadísticos y resultó no rechazable

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

La incertidumbre estimada se calculó teniendo en cuenta las sumas cuadráticas de las fuentes de errores sistemáticos ya tratadas (impurezas de galio, pesadas, correcciones por decaimientos, por autoabsorción) y las aleatorias, específicamente las debidas a las mediciones; luego, las incertidumbres de los patrones radiactivos empleados y, finalmente, las de los datos de tablas.

Como ya se dijo, las determinaciones provienen de dos series de experiencia enteramente independientes en cuanto a la metodología y las facilidades empleadas. Sólo el germanio irradiado fue el mismo, y se confía en la calidad del mismo, como se mostró antes.

Si bien se observa que los valores obtenidos en el RA-6 son sistemáticamente superiores a los propios del RA-3, la diferencia entre los promedios de ambas determinaciones es menor que 3 %, siendo la precisión de cada una también aceptable a la luz de las incertidumbres con las que se consigna habitualmente este tipo de datos (que puede superar el 5%).

Su utilización futura en determinaciones analíticas, como se presenta más adelante, es entonces admisible. En esta condiciones, se puede considerar éste un dato patrón tomando en cuenta nuestra clasificación propuesta [Furnari y Cohen, 1997].



4.4. Determinación de las secciones eficaces de captura de las reacciones $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$ y $^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$, promediadas sobre el espectro neutrónico de fisión del ^{235}U

4.4.1. Introducción

La importancia de la determinación de estas secciones eficaces es, en primera instancia, académica, puesto que constituyen los únicos valores experimentales publicados para estas reacciones [Cohen, Furnari et al., 1992 y 1996; EXFOR, 2011]. El empleo práctico de las mismas se refiere a la importancia analítica, tal como se expondrá más adelante en la sección 5.1 y a la eventual producción de radionucleidos libres de portador.

Las determinaciones se efectuaron en el Centro Atómico Bariloche, y se sustentaron en la realización de 4 experiencias, obteniéndose los siguientes valores finales:

Sección eficaz para la reacción $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$: $(3,10 \pm 0,30)$ mb

Sección eficaz para la reacción $^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$: $(9,38 \pm 0,59)$ μb

La realización experimental se describirá a través de los siguientes tópicos:

- Irradiaciones
- Caracterización de los flujos neutrónicos
- Mediciones
- Resultados y conclusiones

4.4.2. Irradiaciones

Para las determinaciones, se han empleado láminas de germanio de unos 200 mg y de 1 a 1,5 mm de espesor, que fueron tratadas usualmente, con HNO_3 (c), HF (c) y H_2O_2 (c), lavadas, secadas, medidos sus espesores y pesadas.

El diseño experimental se basó en provocar de manera predominante las reacciones en estudio, desfavoreciendo las reacciones (n,γ) . Esto se logró irradiando los cristales de germanio dentro de una cápsula de cadmio de 1 mm de espesor, junto a varios monitores de flujo, en una posición en la que, además, la relación de flujos neutrónicos térmico a rápido sea baja (aproximadamente 1:1).

Con esta premisa, las muestras fueron irradiadas en el reactor RA-6 del Centro Atómico Bariloche, en una posición con un flujo rápido de aproximadamente $8.10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$.

Los monitores de flujo empleados fueron titanio y níquel, en forma de pequeñas folias de 0,1 mm de espesor (ver sección 4.1.2).

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

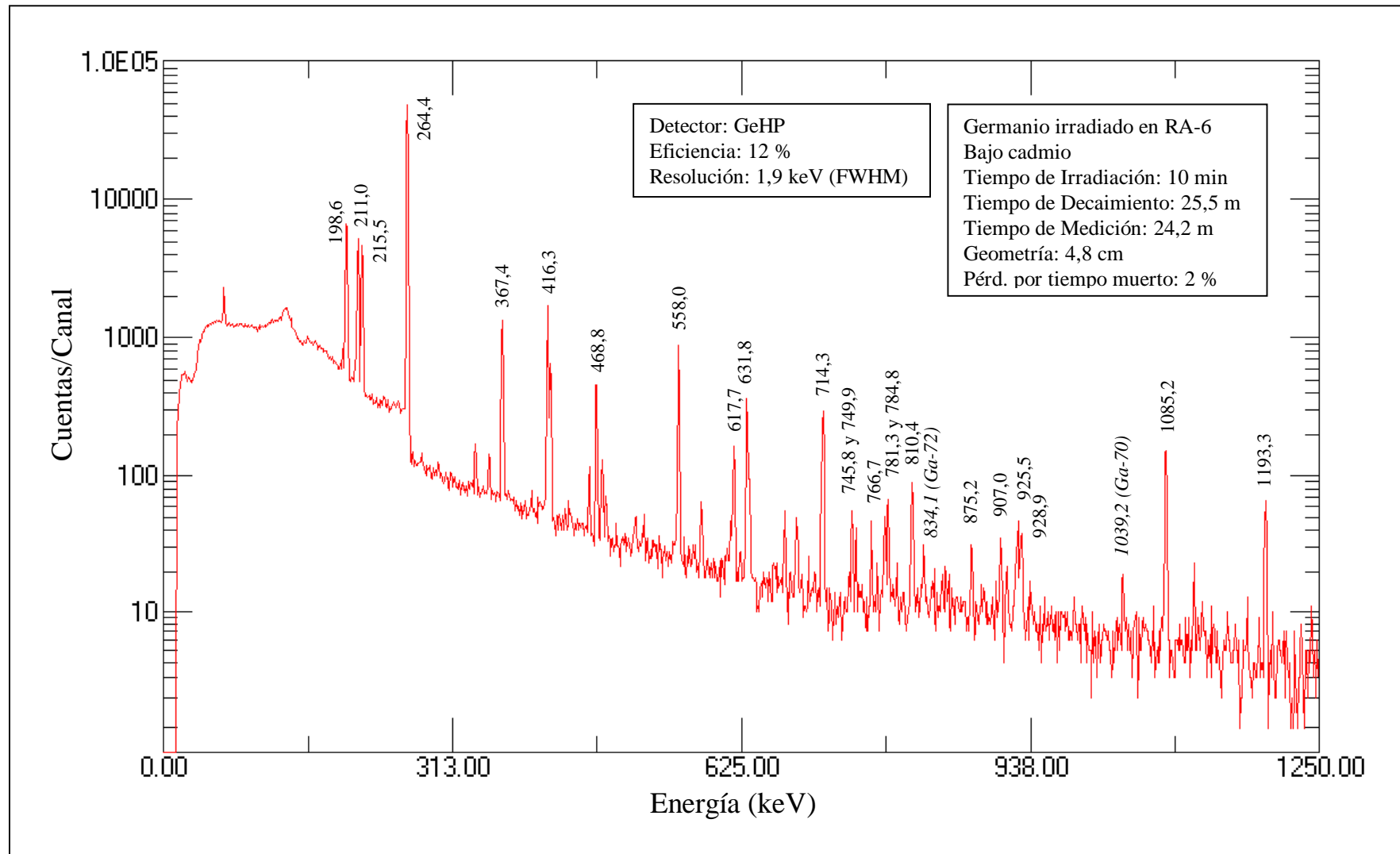


Figura 4.15: Espectro de germanio irradiado bajo cadmio, hasta 1250 keV

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

La Figura 4.15 muestra un espectro de germanio irradiado bajo cadmio, ampliado en la región de 0 a 1250 keV, que destaca en detalle los picos de ^{75}Ge , ^{77}Ge , ^{70}Ga y ^{72}Ga . Espectros similares a éste se utilizaron para la determinación de la sección eficaz motivo de esta parte de la Tesis.

Los tiempos de irradiación fueron de 3 a 5 minutos, y los tiempos de medición estuvieron comprendidos entre 15 y 30 minutos, luego de un tiempo de 5 a 6 minutos para dejar decaer convenientemente a los radioisótopos cortos de germanio $^{75\text{m}}\text{Ge}$ y $^{77\text{m}}\text{Ge}$, cuyos periodos de semidesintegración son 47,7 y 52,9 segundos, respectivamente.

4.4.3 Mediciones

Tal como se mencionó con mayor detalle en la sección 4.2, en ocasión de la determinación de la sección eficaz de la reacción $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$, se empleó en los laboratorios de Bariloche un detector coaxial ORTEC de GeHP 12% de eficiencia y un multicanal Nuclear Data ND76 con un programa de análisis espectral y cálculo Nuclear Data VAX/VMS.

Las mediciones se realizaron con una geometría fuente-detector de 4,8 cm sin observar apilamiento de pulsos ni efectos suma, dado que no existen transiciones en cascada en los esquemas de desintegración de los radioisótopos estudiados. Las eventuales pérdidas por tiempo muerto fueron corregidas automáticamente por el software del espectrómetro multicanal.

Como ya se explicó, a causa de las intensas radiaciones gamma de bajas energías de los radioisótopos ^{75}Ge y ^{77}Ge , al medir las muestras de germanio irradiadas se empleó un filtro de Pb-Cd-Cu sobre el detector. Se aumentó de esta manera la sensibilidad de las mediciones de los picos de 1039,3; 595,9 y 2353,6 keV del ^{70}Ga y del ^{74}Ge .

También fue expuesta la metodología de las mediciones cuando se emplea el filtro de Pb-Cd-Cu. Como se recordará, se midió una fuente combinada de ^{60}Co , $^{110\text{m}}\text{Ag}$ y ^{182}Ta con y sin el filtro, y se graficaron las relaciones entre las áreas de las mismas energías en las dos condiciones de medición. También se utilizó un espectro de ^{77}Ge , cuyos picos gamma permitieron extender la curva hasta la zona de altas energías. Comparando la curva obtenida sin filtro con una curva de eficiencia absoluta previamente determinada con patrones bien calibrados, se pudo establecer una curva de eficiencia absoluta de trabajo correspondiente a la condición con filtro, y efectuar las determinaciones de actividad necesarias para realizar los cálculos. La incertidumbre máxima alcanzada por esta metodología resultó de 3,5 % a 3σ de intervalo de confianza.

4.4.4 Correcciones

También se efectuaron las correcciones por autoabsorción y decaimientos pertinentes, explicadas para la experiencia de la reacción $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$ (ver sección 4.2.5), tanto para el germanio como para los monitores.

Como en aquella ocasión, también se tomó en cuenta la eventual presencia de impurezas de galio para la evaluación de las incertidumbres, puesto que, mientras que el ^{74}Ga se genera por

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

la reacción (n,p) sobre el ^{74}Ge , la formación de ^{70}Ga se debe a la reacción análoga sobre el ^{70}Ge y también por la captura radiante del ^{69}Ga , isótopo natural del galio, si éste estuviese presente como impureza.

Se realizaron además correcciones por autoapantallamiento del flujo térmico en el germanio empleando la ya referida ecuación 3.43.

$$F_a = \frac{\Phi_{(con\ muestra)}}{\Phi_{(sin\ muestra)}} = 1 - \frac{H.L}{2} \left(0,923 + \ln \frac{1}{H.L} \right)$$

El recorrido libre medio para un neutrón térmico en el germanio resulta:

$$L_{Ge} = \left[\frac{1}{n\sigma} \right]_{Ge} = \left[\frac{W}{N_A \delta \sigma} \right]_{Ge} = \frac{72,61\text{ g/mol}}{6,022 \cdot 10^{23}\text{ mol}^{-1} \cdot 5,323\text{ g/cm}^{-3} \cdot 2,2 \cdot 10^{-24}\text{ cm}^{-2}} = 10,3\text{ cm}$$

Se obtuvieron los siguientes factores de autoapantallamiento calculados para las distintas muestras de germanio irradiadas:

Tabla 4.11: Factores de corrección por autoapantallamiento del flujo térmico para el germanio (en negrita)

Espesores H (cm)	0,020	0,042	0,061	0,124	0,175
F_a	0,9930	0,9869	0,9821	0,9678	0,9575

4.4.5. Caracterización y cuantificación de los flujos neutrónicos

Los monitores de flujo ya mencionados se emplearon para la cuantificación y caracterización del flujo neutrónico. Para los cálculos, se empleó la ecuación 4.2, y los resultados son lo que se exponen en la tabla 4.12:

Tabla 4.12: Resultados de la determinación de flujos neutrónicos rápidos en el RA-6 (ejemplo de un día de operación)

Reacción	ϕ_r $\text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$
$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	$(1,027 \pm 0,028) \cdot 10^{12}$
$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	$(0,985 \pm 0,020) \cdot 10^{12}$
$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	$(1,042 \pm 0,035) \cdot 10^{12}$
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	$(0,937 \pm 0,030) \cdot 10^{12}$

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

Como se observa, los flujos concuerdan razonablemente entre sí para los distintos monitores, lo que demuestra que el espectro neutrónico es de fisión. Se hicieron determinaciones similares en cada día de irradiación, pues el reactor se ponía en marcha para cada jornada de irradiaciones y el flujo no necesariamente tenía que ser el mismo. En días subsiguientes los flujos (expresados como promedios) fueron $9,38 \cdot 10^{11}$; $1,02 \cdot 10^{12}$ y $7,38 \cdot 10^{11}$. Las experiencias se realizaron con cuatro irradiaciones en días diferentes.

4.4.6. Resultados y conclusiones

Las determinaciones individuales se basaron en el cálculo con una ecuación análoga a la 4.3, que brindó los resultados que se exponen en la tabla 4.15.

Los datos nucleares y atómicos empleados para los cálculos al momento de la publicación de 1996, se indican en las tablas 4.13 y 4.14 y fueron extraídos de Calamand, 1974; Baard et al., 1989; Tuli, 1990 e IUPAC, 1991. Se hace esta aclaración, por cuanto, a la luz de la necesaria actualización de los resultados de esta Tesis y de la aplicación de los conceptos vertidos en el capítulo 6, se realizó la renormalización de las constantes nucleares determinadas con los datos de tablas existentes en 2011 (ver sección 6.4.2).

Tabla 4.13: Constantes atómicas y nucleares empleadas a la fecha de la determinación

Elemento	W	Reacción	θ (%)	E_M (MeV)	σ_F (mb)
Ge	$72,61 \pm 0,02$	$^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$	$21,23 \pm 0,04$	6,1	Objeto de la determinación
		$^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$	$35,94 \pm 0,02$	10,0	Objeto de la determinación
Ti	$47,88 \pm 0,03$	$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	$8,0 \pm 0,1$	5,6	$11,8 \pm 0,4$
		$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	$7,3 \pm 0,1$	3,7	$18,0 \pm 0,6$
		$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	$73,8 \pm 0,1$	8,3	$0,307 \pm 0,011$
Ni	$58,6934 \pm 0,0002$	$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	$68,077 \pm 0,005$	4,0	111 ± 3

Donde:

W : Masa atómica relativa del elemento involucrado

θ : Abundancia isotópica del isótopo precursor de la reacción señalada

E_{ef} : Energía umbral efectiva de la reacción considerada

σ_F : Sección eficaz de captura, promediada sobre un espectro de fisión

Tabla 4.14: Principales datos nucleares de los radionucleidos producidos

Radionucleido	$T_{1/2}$	E_γ (keV)	i (%)
^{70}Ga	$(21,14 \pm 0,03)$ m	1039,3	$0,65 \pm 0,05$
^{74}Ga	$(8,12 \pm 0,12)$ m	595,9	$91,4 \pm 0,4$
		2353,6	$44,5 \pm 1,4$
^{46}Sc	$(83,810 \pm 0,010)$ d	889,3	$99,9840 \pm 0,0010$
		1120,5	$99,9870 \pm 0,0010$
^{47}Sc	$(3,345 \pm 0,003)$ d	159,4	$68,3 \pm 0,4$
^{48}Sc	$(43,7 \pm 0,1)$ h	983,5	$100,0 \pm 0,3$
		1037,5	$97,5 \pm 0,5$
		1312,1	$100,0 \pm 0,5$
^{58}Co	$(70,82 \pm 0,03)$ d	810,8	$99,44 \pm 0,02$

Tabla 4.15: Resultados individuales de las secciones eficaces determinadas

Determinación	Valores obtenidos para la σ de la reacción $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$ (en mb)	Valores obtenidos para la σ de la reacción $^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$ (en μb)
1	3,067	9,61
2	2,910	8,91
3	3,206	8,82
4	3,080	9,50
Promedios	$3,066 \pm 0,049$ (\pm Desv. Std. del promedio)	$9,21 \pm 0,21$ (\pm Desv. Std. del promedio)
Promedios corregidos	$(3,10 \pm 0,30)$ mb (\pm Incertidumbre total)	$(9,38 \pm 0,59)$ μb (\pm Incertidumbre total)

Los promedios de los resultados primarios fueron corregidos a la luz de nuevos datos de intensidades de emisión gamma extraídos de la literatura unos meses después de las determinaciones, y antes de publicar los valores finales. Para el cálculo de las incertidumbres totales se tomaron en cuenta las componentes aleatorias, básicamente debidas a las mediciones; las incertidumbres de las curvas de eficiencia, y las de los datos nucleares y atómicos empleados. Las incertidumbres finales ascendieron a 9,6 % para el caso del ^{70}Ge y 6,3 % para el ^{74}Ge .



4.5. Determinación de factores k_0 del germanio

4.5.1. Introducción

Tiempo después del desarrollo de la determinación simultánea de fósforo y aluminio en muestras biológicas (expuesta más adelante en la sección 5.2), se hizo evidente la necesidad de determinar en forma precisa los factores k_0 correspondientes a algunas transiciones gamma de los isótopos 75 y 77 del germanio, para poder utilizarlos con fines analíticos y desarrollar más aplicaciones. Por entonces, los únicos valores tabulados de dichas constantes agrupadas eran los de De Corte y colaboradores [Ídem, 1993] que, según sus propios autores, no son recomendados para su empleo analítico. Los valores de 1993 fueron ratificados en 2002 y 2003 por sus autores [IUPAC, 2002; De Corte et al., 2003]. Hasta el presente (2011) no existen otras publicaciones posteriores de los factores k_0 de isótopos del germanio.

Para la determinación experimental de las constantes k_0 se utilizó la ecuación 3.18:

$$k_{0,Au}(j) = \frac{C_{esp,j}}{C_{esp,c}} \frac{\varepsilon_{\gamma,c}}{\varepsilon_{\gamma,j}} \frac{F_c}{F_j} k_{0,Au}(c)$$

Que, recordando la igualdad 3.8, resulta:

$$k_{0,Ge} = \frac{C_{esp,Ge}}{C_{esp,c}} \frac{\varepsilon_{\gamma,c}}{\varepsilon_{\gamma,Ge}} \left[\frac{f + Q_{0,c}(\alpha)}{f + Q_{0,Ge}(\alpha)} \right] k_{0,c} \quad (\text{ec. 4.9})$$

Donde

$$C_{esp}: \text{Conteo específico corregido (ver ec. 3.17)} \quad C_{esp} = \frac{C M}{m t_v D S}$$

Con C , D , M , S , m y t_v tal como se definieron para las ecuaciones 3.1 y 3.2

f : Relación de flujos térmico / epitérmico

$Q_0(\alpha)$: Relación sección eficaz / integral de resonancia corregida por el factor α

Por su parte, para la determinación de los cocientes $Q_0(\alpha)$ se empleó el método de la relación de cadmio (sección 3.6.1), según la siguiente ecuación, derivada de la ecuación 3.41:

$$\frac{I_0(\alpha)}{\sigma_0} = f \cdot \frac{1}{(R_{cd} - 1)} \quad (\text{ec. 4.10})$$

Con los valores de $Q_0(\alpha)$, la determinación de los factores α se llevó a cabo a partir de la ec. 3.37, empleando un método numérico.

$$Q_0(\alpha) = \left\{ \frac{Q_0}{(\bar{E}_r)^\alpha} - 0,429 \left[\frac{1}{(\bar{E}_r)^\alpha} + \frac{1}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right] \right\} \quad (\text{ec. 3.37})$$

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

Para las determinaciones de los cocientes $Q_0(\alpha)$ y subsecuentemente de los factores α , se realizaron irradiaciones y mediciones de oro con y sin cubierta de cadmio, y de zirconio.

Finalmente, con todos los factores determinados, se arribó a las mediciones y cálculo de las constantes k_0 de los isótopos indicados del germanio.

4.5.2. Irradiaciones, mediciones y correcciones

Las experiencias se realizaron en las instalaciones del reactor RA-6 del Centro Atómico Bariloche. Se irradiaron muestras de germanio de 6, 20 y 40 mg cada una aproximadamente, durante tiempos de 1 a 2 horas. Se llevaron a cabo series de mediciones 10 a 30 min de duración, luego de decaimientos desde 15 min (para minimizar la presencia de los radioisótopos ^{75m}Ge y ^{77m}Ge , del orden de 1 min de $T_{1/2}$) hasta 6 horas, para optimizar las estadísticas de conteo.

Se realizaron las correcciones ya mencionadas en otras secciones, en las pesadas, de decaimiento durante las mediciones y de autoabsorción de las radiaciones gamma. Dado que el cálculo que lleva a la determinación de los factores k_0 implica determinaciones precisas del flujo neutrónico, se efectuaron especialmente mediciones de flujo a lo largo de la cápsula de irradiación, para poder aplicar las correcciones pertinentes.

4.5.3. Resultados y conclusiones

De los espectros medidos, y en función de la estadística de conteo de cada pico observado, decidimos elegir para la determinación de los factores k_0 , las energías de 198,6 keV, del ^{75}Ge , y 211,0; 215,5; 367,4; 416,3 y 558,0 keV, correspondientes al ^{77}Ge .

En la figura 4.16 se muestra un espectro de los adquiridos para las determinaciones. Con un decaimiento de poco más de 2 horas se pueden observar claramente las emisiones gamma de ^{75}Ge y de ^{77}Ge ($T_{1/2}$ 83 m y 11,3 h respectivamente). Los metaestables ^{75m}Ge y ^{77m}Ge ($T_{1/2}$ 47 y 53 s) ya han decaído y no se detectan. El pico de 264,4 keV tiene contribuciones de ambos radioisótopos y por ello no se utiliza.

La figura 4.17 presenta un espectro de germanio irradiado luego de un decaimiento de 30 hs, en el que prácticamente no se observan los picos de ^{75}Ge , pudiéndose determinar con mejor precisión los propios del ^{77}Ge .

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

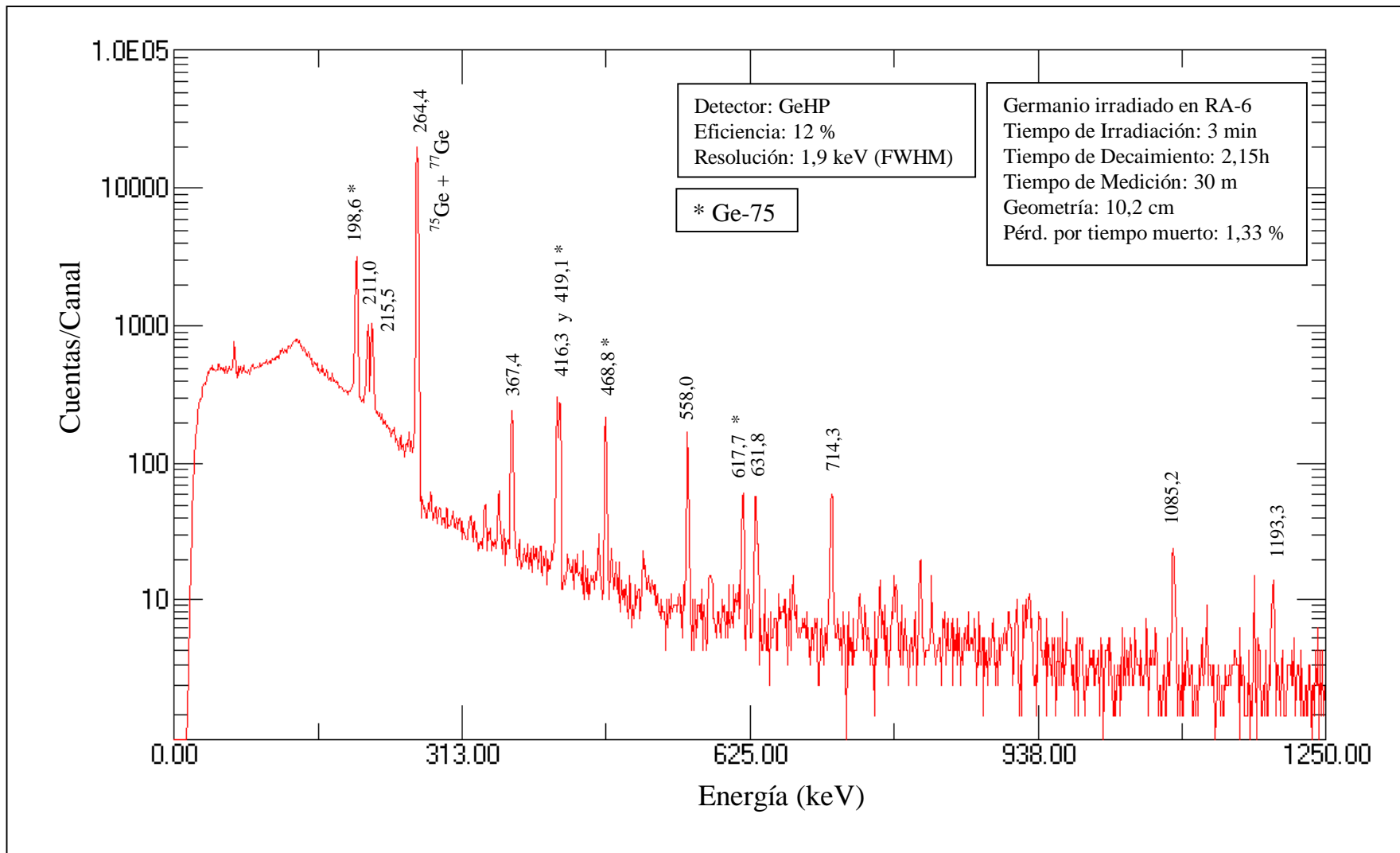


Figura 4.16: Espectro de germanio irradiado. ^{75}Ge (*) y ^{77}Ge (el resto de las energías indicadas)

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

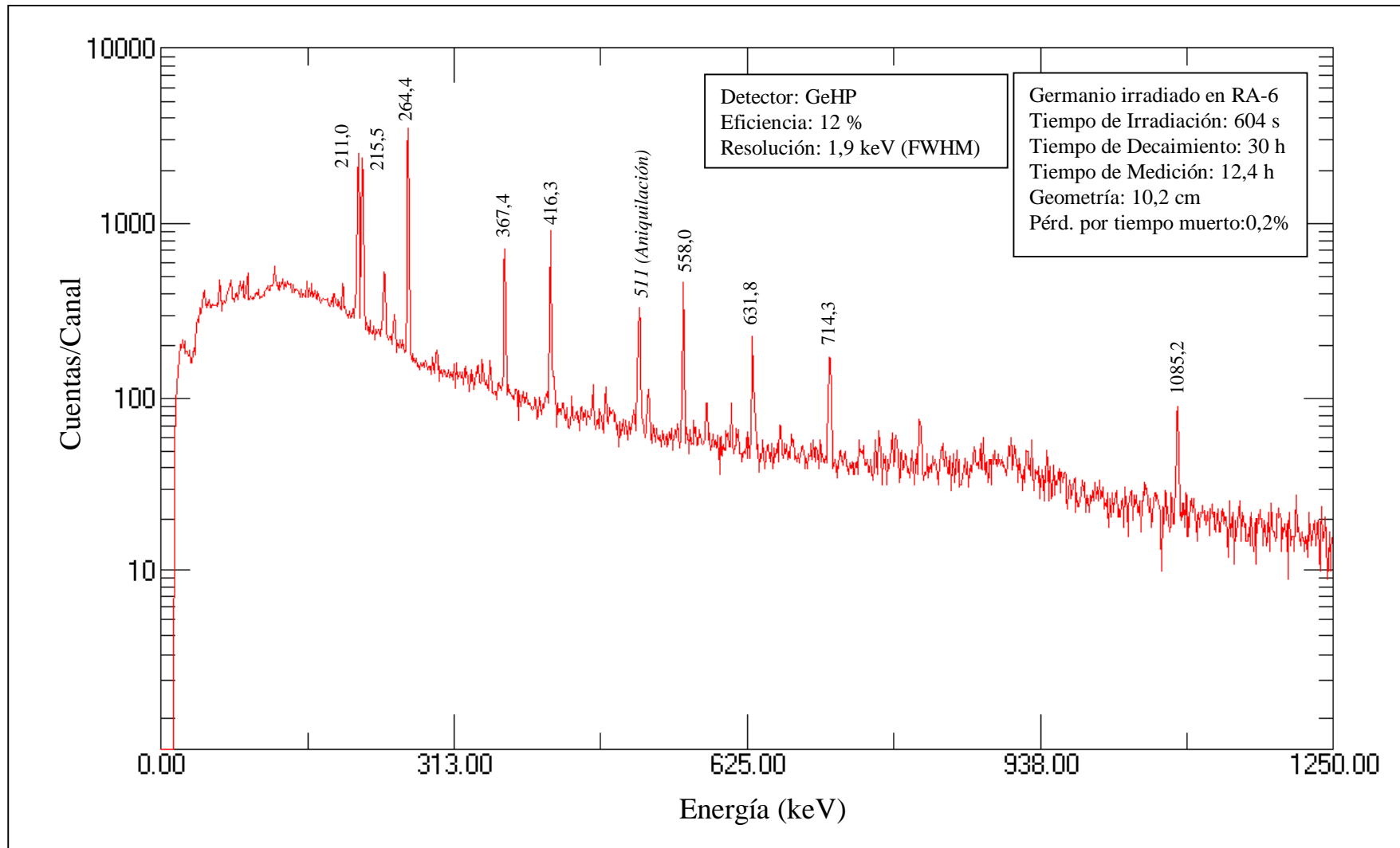


Figura 4.17: Espectro de germanio irradiado. Sólo ^{77}Ge

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

El resultado de las determinaciones se muestra en la siguiente tabla comparativa con los únicos valores tabulados en la bibliografía.

Tabla 4.16: Factores k_0 de algunos isótopos del germanio

Radioisótopo	Transición γ (keV)	k_0 “tentativos” [De Corte et al., 1993 y 2003; IUPAC, 2002]	k_0 (incert. rel. %) presente Tesis
^{75}Ge	198,6	$6,15 \cdot 10^{-5}$	$6,24 \cdot 10^{-5}$ (0,7)
^{77}Ge	211,0	$3,90 \cdot 10^{-5}$	$3,91 \cdot 10^{-5}$ (0,9)
	215,5	$3,55 \cdot 10^{-5}$	$3,66 \cdot 10^{-5}$ (1,3)
	367,4	$1,94 \cdot 10^{-5}$	$2,00 \cdot 10^{-5}$ (0,6)
	416,3	$3,06 \cdot 10^{-5}$	$3,17 \cdot 10^{-5}$ (1,1)
	558,0	$2,28 \cdot 10^{-5}$	$2,36 \cdot 10^{-5}$ (0,7)

Como puede observarse, la concordancia de los valores experimentales determinados en esta Tesis con los de De Corte y colaboradores es excelente, a pesar de que estos últimos son tentativos (expresados sin incertidumbre y no recomendados, según los propios autores).

Finalmente, los factores k_0 aquí establecidos se emplearon con éxito en la determinación analítica de la concentración de nueve elementos químicos en dos materiales de referencia, con excelente concordancia con los valores certificados (ver sección 5.1.4).



4.6. Identificación y determinación de nuevas transiciones gamma del ^{77m}Ge

4.6.1. Introducción

Como parte de los trabajos concernientes al estudio espectral de los productos de activación neutrónica del germanio, se ha revisado exhaustivamente la emisión de rayos gamma del ^{77m}Ge ($T_{1/2} = 52,9$ s), que decae en los niveles excitados del ^{77}As . La emisión gamma del ^{77m}Ge había sido examinada en forma temprana y en diversos experimentos realizados incluso antes del comienzo formal de esta Tesis, en los que se habían observado varias transiciones no informadas en la bibliografía [Kestelman et al., 1991 y 1993]

Como resultado de esta revisión experimental de los espectros, se han descubierto trece nuevos rayos gamma y tres nuevos niveles de excitación del ^{77}As , correspondientes a nuevas transformaciones β^- del ^{77m}Ge , que fueron agregados al esquema aceptado de dicho nucleido. Los resultados de las determinaciones fueron enviados en 1994 por A. J. Kestelman como comunicación privada a Nuclear Data Sheets [Farhan y Singh, 1997] y el trabajo completo fue publicado en la revista Physical Review [Kestelman, Cohen, Furnari et al, 2000].

4.6.2. Metodología

Para la determinación de los niveles gamma, se han irradiado con neutrones varias muestras de germanio de masas entre 180 y 360 mg, con espesores comprendidos entre 1,5 a 1,9 mm, lo que fue tomado en cuenta para cálculos de corrección por autoapantallamiento neutrónico y autoabsorción de los rayos gamma, especialmente de bajas energías.

Las irradiaciones fueron llevadas a cabo en el reactor RA-6 del Centro Atómico Bariloche, empleando la facilidad neumática de transporte de muestras, con un tiempo de movimiento de muestras de alrededor de 1 s. Los flujos neutrónicos rondaron los $4 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ para el flujo térmico; y $8 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ para el flujo epitérmico.

Con el fin de incrementar las capturas neutrónicas por parte del ^{76}Ge frente al ^{74}Ge , se colocaron las muestras de germanio en cápsulas de cadmio de 1 mm de espesor. Esto es así, puesto que las relaciones Q_0 entre integrales de resonancia y secciones eficaces son 13,8 y 1,68 respectivamente y por lo tanto, cuando se irradia bajo cubierta de cadmio se ve disminuida en mayor grado la reacción $^{74}\text{Ge}(n,\gamma)^{75}\text{Ge}$ frente a la propia del ^{76}Ge , que posee una activación epitérmica predominante.

Los tiempos de irradiación de cada muestra fueron de 60 segundos, evitando así la generación significativa de los radioisótopos más largos del germanio, ^{75}Ge ($T_{1/2} = 83$ m) y ^{77}Ge ($T_{1/2} = 11,3$ h) dado que los nucleidos ^{75m}Ge y ^{77m}Ge , poseen periodos de semidesintegración de 47,7 y 52,9 segundos respectivamente.

Los espectros gamma generados fueron determinados con un detector coaxial intrínseco-N de GeHP ORTEC, de eficiencia relativa de 12,3 %, con un FWHM de 2,0 keV de resolución. Las mediciones fueron llevadas a cabo a una distancia de 4,8 cm, empleando un filtro de Pb de 6,4 mm de espesor recubierto con Cd y Cu. De esta manera el intenso rayo gamma de 139,5 keV del ^{75m}Ge fue absorbido fuertemente, permitiendo obtener un espectro gamma más limpio en la zona de medianas y altas energías. Por otra parte, la radiación de frenamiento

(Bremsstrahlung) causada por la emisión β^- de altas energías del ^{77m}Ge ($E_{\beta_{\text{max}}} = 2702 \text{ keV}$; $i_{\beta} = 58\%$; entre otras β^-), también fue atenuada en gran medida.

Las mediciones se iniciaban una vez que los conteos sufrían pérdidas por tiempo muerto menores que 5%, luego de decaimientos de entre 40 a 110 segundos desde el fin de las irradiaciones. Los espectros fueron obtenidos y procesados empleando un espectrómetro multicanal ND76 de 4096 canales. De cada una de las 9 muestras de germanio irradiadas se realizaron series de 10 mediciones automáticas de 50 s de tiempo real (separados 0,38 s entre medición y medición, tiempo dado por el software de mediciones automáticas) en un total de 505 segundos.

4.6.3. Resultados y discusión

En la parte superior de la figura 4.18 se muestra la suma de los primeros 5 espectros consecutivos, de 50 s de duración cada uno, de las 9 muestras irradiadas, es decir, la suma de 45 espectros. La parte inferior de la figura muestra la suma de los segundos 5 espectros, de la misma duración. Se observa claramente la desaparición de las líneas gamma del ^{77m}Ge por decaimiento, a causa del corto período de semidesintegración. En la figura 4.19 se observa el espectro gamma completo del ^{77m}Ge .

Para el cálculo de las intensidades de los nuevos rayos gamma identificados, la parte superior de la figura 4.8 fue enriquecida con la suma de espectros provenientes de varias irradiaciones más de 50 y 300 s de duración, con tiempos de medición de 200 s. En la figura se destaca la aparición de un nuevo pico en 2006 keV.

La determinación de las energías de los nuevos picos gamma fue realizada a través de una precisa calibración del espectrómetro multicanal, usando una rutina de fiteo cuadrática provista por el software del multicanal (Nuclear Data VAX/VMS Spectroscopy Applications Package, Version 15.7)

Para la calibración en energías se empleó una fuente multigamma de ^{60}Co , ^{108m}Ag , ^{110m}Ag y ^{182}Ta , que provee una numerosa cantidad de rayos gamma de energías bien conocidas hasta 1505 keV. Puesto que se observaban picos hasta 1676 keV, se sumó una fuente de ^{28}Al ($T_{1/2} = 2,24 \text{ min}$) irradiada en el momento, con lo que se agregó un punto más en 1779 keV.

Para la determinación precisa de las intensidades se tomó como referencia el pico de 614,3 keV y su intensidad publicada [Farhan y Singh, 1989] de $(0,0452 \pm 0,0081) \%$. Se tomó en cuenta la contribución del pico de 614,39 keV del ^{77}Ge . Todas las emisiones gamma fueron corregidas por autoabsorción en las muestras de germanio como se hizo en las otras determinaciones. Se realizaron varias curvas de eficiencia del detector en las condiciones de medición y se lograron determinar las intensidades con muy bajos valores de incertidumbres, tal como se muestra en la tabla 4.17.

Para la asignación de niveles y construcción del esquema de desintegración se utilizó el programa COBAL [Achterberg, 1994], que realiza un balance preciso de las intensidades de cada nivel.

Figura 4.18: Espectro superior: suma de los primeros 5 espectros consecutivos
Espectro inferior: suma de los 5 espectros siguientes.

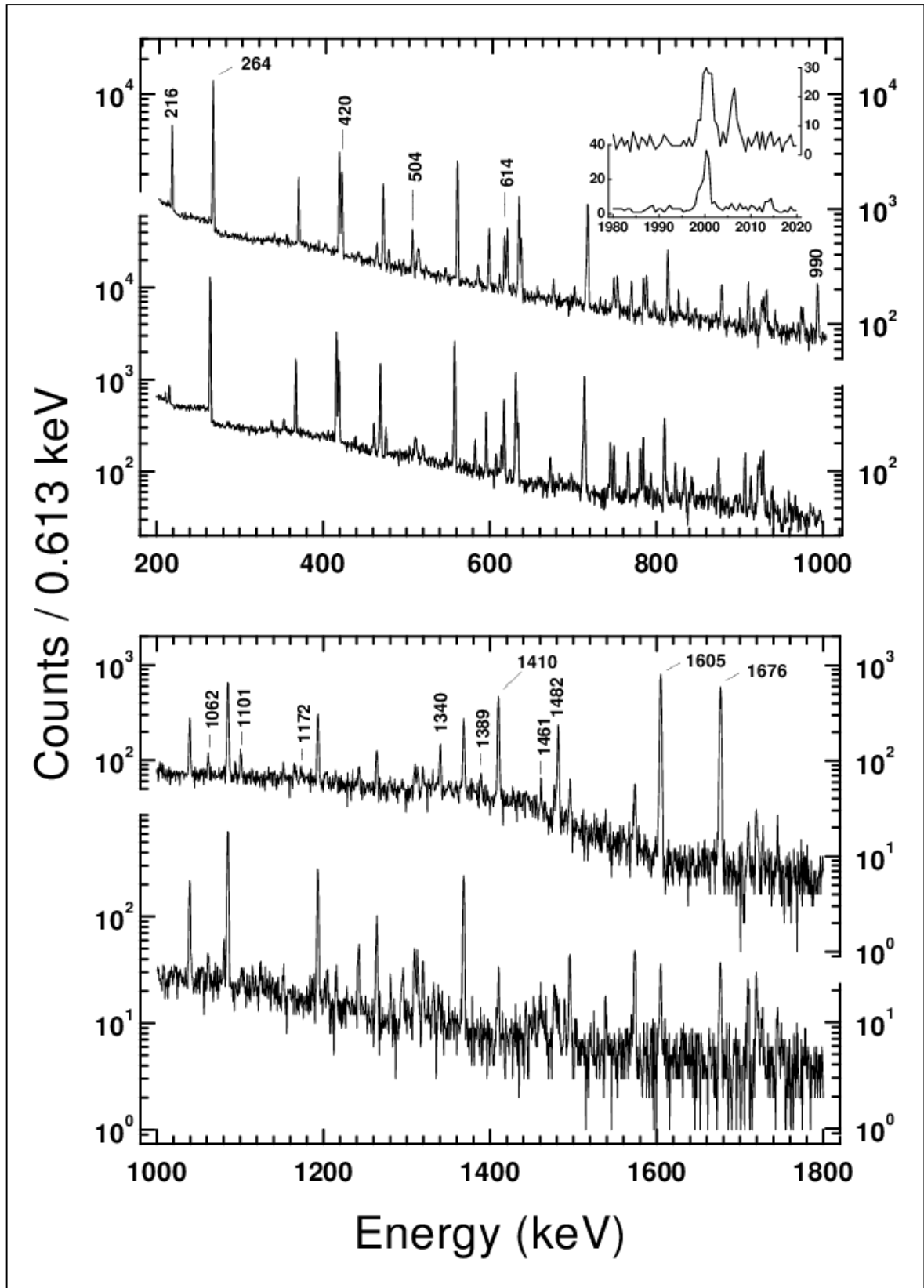
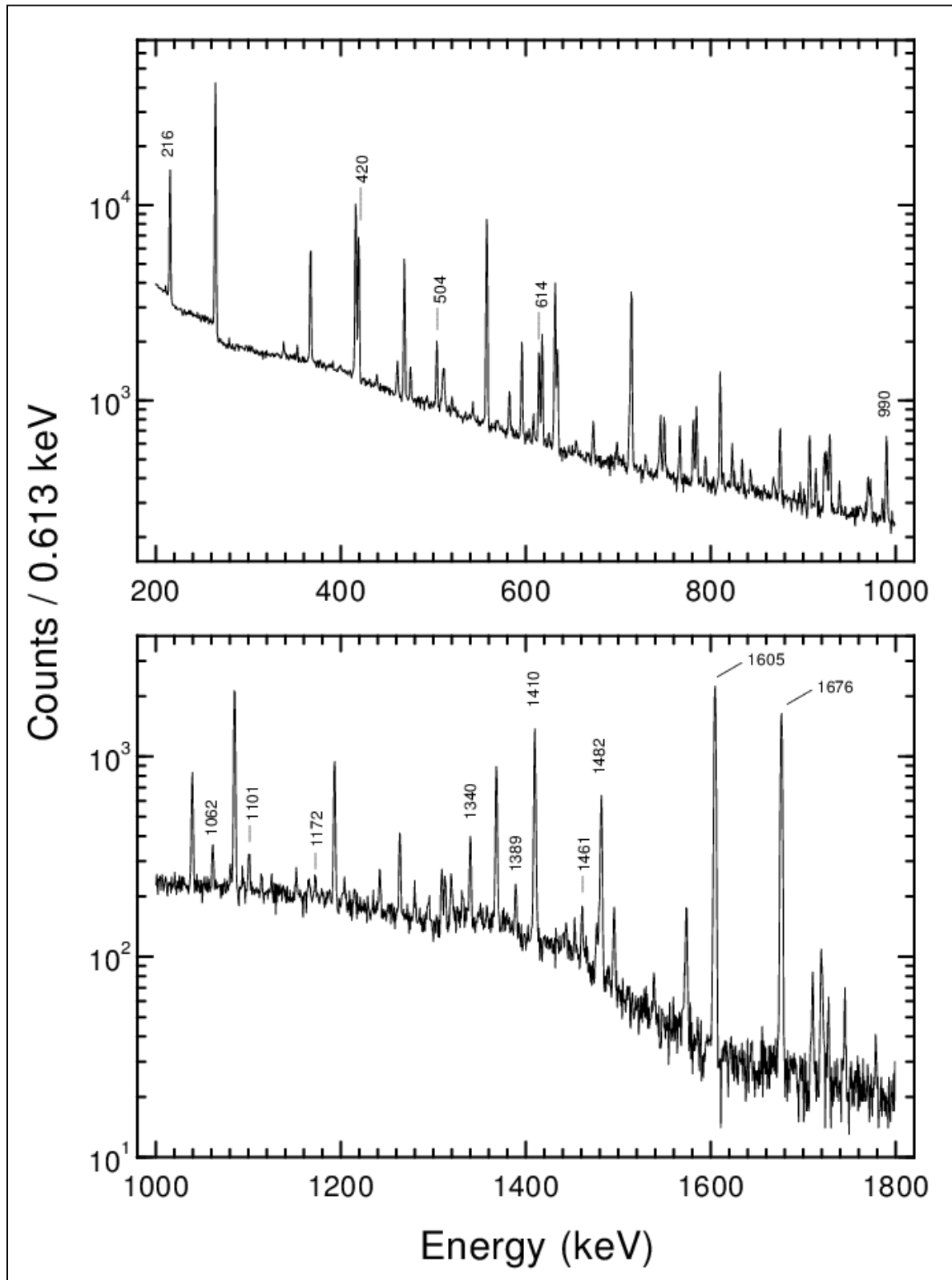


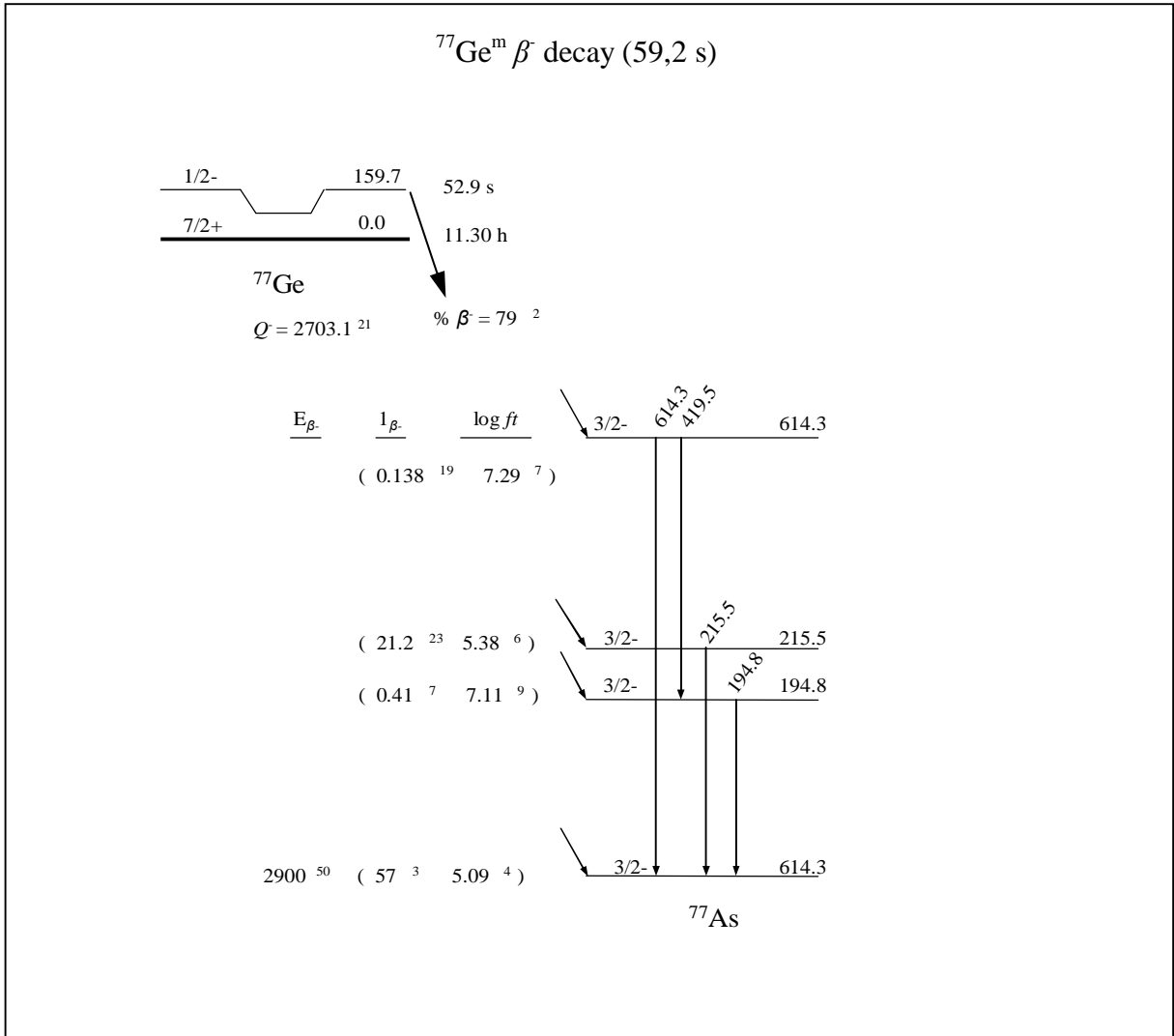
Figura 4.19: Principales picos gamma del ^{77m}Ge observados



4. Determinación de constantes nucleares del germanio

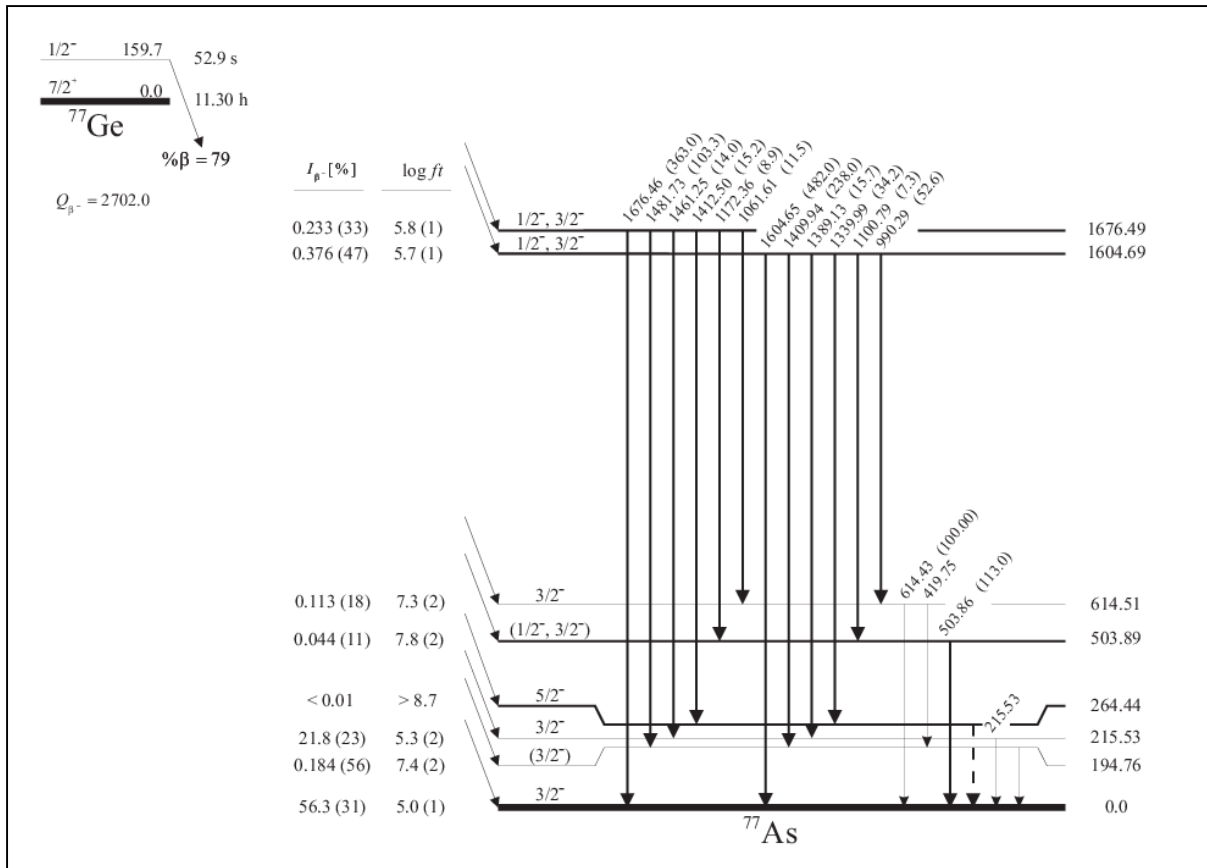
En las figuras 4.20 y 4.21 se muestran los esquemas de decaimiento del ^{77m}Ge aceptados antes y después de las determinaciones descritas en esta sección.

Figura 4.20: Esquema de desintegración del ^{77}Ge conocido con anterioridad [Farhan y Singh, 1989]



4. Determinación de constantes nucleares del germanio

Figura 4.21: Nuevo esquema de desintegración del ^{77m}Ge establecido [Kestelman, Cohen, Furnari et al, 2000]



Las líneas delgadas corresponden a las transiciones y los niveles conocidos con anterioridad. Las líneas gruesas a las nuevas transiciones propuestas por este trabajo. Se muestran los valores de energía e intensidades determinadas experimentalmente. La transición de 264 keV es mostrada con una línea de guiones, puesto que es conocida pero no fue observada realmente en este trabajo. Las intensidades y $\log f_i$ están consignados con su incertidumbre entre paréntesis, por ejemplo 56,3 (31) significa $56,3 \pm 3,1$.

Tabla 4.17. Energías e intensidades de rayos gamma por decaimiento del ^{77m}Ge . (Se indican las incertidumbres a 1σ)

Niveles inicial \rightarrow final	Energía del rayo gamma		Probabilidad de emisión de los rayos gamma	
	Experimental	Ajustado	Relativo	Absoluto %
1 \rightarrow 0	$(194,76 \pm 0,03)$	$194,756 \pm 0,029$	—	$(0,436 \pm 0,049)$
2 \rightarrow 0	$215,532 \pm 0,059$	$215,528 \pm 0,059$	—	$(21,8 \pm 2,3)$
3 \rightarrow 0	$(264,44 \pm 0,50)$	$264,44 \pm 0,32$	—	$> 0,0155 \pm 0,0035$
			—	$< 0,0224 \pm 0,0084$
5 \rightarrow 1	$(419,75 \pm 0,03)$	$419,748 \pm 0,030$	—	$(0,097 \pm 0,015)$
4 \rightarrow 0	$503,86 \pm 0,18$	$503,89 \pm 0,17$	1130 ± 97	$0,051 \pm 0,010$

4. Determinación de constantes nucleares del germanio

Tabla 4.17 (Continuación)

Niveles inicial → final	Energía del rayo gamma		Probabilidad de emisión de los rayos gamma	
	5 → 0	614,43 ± 0,18	614,504 ± 0,041	1000
6 → 5	990,29 ± 0,27	990,164 ± 0,085	526 ± 57	0,0238 ± 0,0050
7 → 5	1061,61 ± 0,50	1061,96 ± 0,12	115 ± 33	0,0052 ± 0,0018
6 → 4	1100,79 ± 0,50	1100,78 ± 0,18	73 ± 37	0,0033 ± 0,0018
7 → 4	1172,36 ± 0,50	1172,58 ± 0,19	89 ± 38	0,0040 ± 0,0019
6 → 3	1339,99 ± 0,49	1340,23 ± 0,32	342 ± 45	0,0155 ± 0,0035
6 → 2	1389,13 ± 0,50	1389,140 ± 0,098	157 ± 34	0,0071 ± 0,0020
6 → 1	1409,94 ± 0,16	1409,912 ± 0,081	2380 ± 120	0,108 ± 0,020
7 → 3	1412,50 ± 0,70	1412,02 ± 0,33	152 ± 41	0,0069 ± 0,0023
7 → 2	1461,25 ± 0,50	1460,94 ± 0,13	140 ± 33	0,0063 ± 0,0019
7 → 1	1481,73 ± 0,24	1481,71 ± 0,12	1033 ± 65	0,0467 ± 0,0089
6 → 0	1604,65 ± 0,10	1604,668 ± 0,079	4820 ± 220	0,218 ± 0,041
7 → 0	1676,46 ± 0,14	1676,47 ± 0,12	3630 ± 170	0,164 ± 0,031

No se observa el pico de 195 keV debido al filtro de plomo. Los picos de 264 y 420 keV están muy interferidos por las emisiones propias del decaimiento de los otros isótopos de germanio, como el ^{77}Ge ($T_{1/2} = 11,3$ h).

Tabla 4.18: Emisiones beta por decaimiento del ^{77m}Ge

Nivel	Energía (keV)	Intensidades (β^- %)	
		Esta Tesis	Referencia *
0	0,0	56,3 ± 3,1	57 ± 3
1	194,756 ± 0,029	0,184 ± 0,056	0,41 ± 0,07
2	215,528 ± 0,059	21,8 ± 2,3	21,2 ± 2,3
3	264,44 ± 0,32	0,0000 ± 0,0094	
4	503,89 ± 0,17	0,044 ± 0,011	
5	614,507 ± 0,041	0,113 ± 0,018	0,138 ± 0,019
6	1604,686 ± 0,079	0,376 ± 0,047	
7	1676,49 ± 0,12	0,233 ± 0,033	

* [Farhan y Singh, 1989]

4.6.4. Conclusiones

Las nuevas transiciones y niveles descubiertos vienen a actualizar los datos de decaimiento del ^{77m}Ge publicados en Nuclear Data Sheets. La precisión de los nuevos valores determinados de energía e intensidad de las emisiones gamma y beta, así como de $\log ft$ son más que adecuados para este tipo de publicación de empleo internacional.

Algunos de los nuevos rayos gamma del ^{77m}Ge fueron vistos en las numerosas experiencias de irradiación e medición del germanio. Finalmente se decidió la realización de experiencias especialmente diseñadas para determinarlos con precisión.

Los resultados de estas determinaciones fueron enviados en 1994 en una comunicación privada por A. J. Kestelman a Farhan y Singh, quienes los publicaron en la siguiente edición de Nuclear Data Sheets [Farhan y Singh, 1997].

Luego de realizar algunos ajustes, el trabajo detallado fue publicado en 2000 en Physical Review C, como se mencionó al principio. Más detalles se pueden ver en el documento electrónico AIP Document No. E-PAPS:E-PRVCAN-61-015006, del American Institute of Physics. Hasta la actualidad no existen nuevos valores de todas estas constantes en la literatura (NUDAT2, última entrada: julio de 2011)



5. Aplicaciones analíticas del germanio y de sus constantes nucleares

5.1. Empleo del germanio como monitor de flujo neutrónico y comparador, en métodos paramétricos de análisis

Esta es una de las principales contribuciones de esta Tesis [Furnari, Cohen et al. 1997; Cohen, Furnari et al., 1999], por cuanto se demuestra la posibilidad de emplear al germanio como comparador bi-isotópico en análisis por activación paramétrico en ciertos casos, con ventaja sobre a otros comparadores, y simultáneamente como monitor de flujos térmico y rápido en reactores de investigación.

5.1.1. Introducción

Ya se ha explicado que los métodos paramétricos de análisis por activación neutrónica requieren el conocimiento de la relación de flujos térmico a epitérmico; la comparación de cada analito con un elemento de referencia (comparador); y el factor α de la posición de irradiación.

Las dos primeras condiciones son propias del mismo acto de la irradiación, en contraposición con la determinación del factor α , que puede hacerse en otro momento. La posibilidad, entonces, de emplear el mismo elemento químico como comparador y simultáneamente como monitor de flujo es muy atractiva, y ofrece las siguientes ventajas:

- Minimiza el número de materiales incluidos en las irradiaciones
- Reduce el número de mediciones
- Consecuentemente disminuyen los decaimientos, lo que se traduce en mejores estadísticas de medición y menores incertidumbres
- Reduce tiempos y costos de los análisis

Esta situación ideal es obviamente buscada con buen criterio por los analistas. Existen varios excelentes comparadores y otros tantos igualmente buenos monitores de flujo, pero no hay muchos que ofrezcan ambas características logrando así una aceptable incertidumbre final de la determinación. Esto ha sido propuesto por algunos autores y demostrada su factibilidad a lo largo del desarrollo de los métodos paramétricos, principalmente el del k_0 . Así, se ha estudiado el uso de estaño [Maenhaut et al., 1971], rutenio [Van der Linden et al., 1973] y zirconio [Simonits et al., 1976]. El zirconio es aún hoy reconocido como uno de los mejores comparadores y monitores de flujo existentes.

En esta Tesis se propone la utilización de germanio como comparador a través de las reacciones $^{74}\text{Ge}(n,\gamma)^{75}\text{Ge}$ y $^{76}\text{Ge}(n,\gamma)^{77}\text{Ge}$. Además, se plantea su uso como monitor de flujos neutrónicos térmico y rápido, agregando a las reacciones mencionadas la reacción umbral $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$ y, eventualmente, las otras dos para las cuales se determinaron sus secciones eficaces: $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$ y $^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$.

A fin de evaluar la bondad de un comparador y/o de un monitor de flujos se consideraron diferentes aspectos operativos y teóricos, que se comprobaron luego experimentalmente.

5.1.2. Consideraciones operativas

En esta sección se tomaron en cuenta algunas cuestiones previas de relativamente fácil tratamiento, dejando para más adelante una argumentación teórica más compleja. Se tratan a continuación los siguientes aspectos que contribuyen a la valorización de un material como comparador y/o monitor de flujo.

- Características nucleares que influyen en la irradiación y en las mediciones subsiguientes, tales como $T_{1/2}$, factores de autoapantallamiento neutrónico, energías e intensidades de emisión, factores de autoabsorción.
- Grado de complejidad de los espectros gamma, con sus ventajas y desventajas.
- Propiedades físicas o químicas que afecten la manipulación y conservación de los especímenes, como pureza, ductilidad, dureza, degradación.
- Disponibilidad y costos.

Al respecto, ya se han mencionado a lo largo de esta Tesis las particularidades del germanio relacionados con varios de estos tópicos. Sin embargo, para un análisis exhaustivo es necesario tratar el conjunto en forma integral, a fin de arribar a las conclusiones en forma clara e indudable, por lo que se enfatizarán algunos conceptos ya tratados. A continuación, se trata cada punto individualmente

- **Factor de autoapantallamiento del flujo neutrónico**

El germanio no tiene secciones eficaces demasiado altas para presuponer un efecto de autoapantallamiento importante, de todas maneras, como los espesores de los especímenes irradiados fueron apreciables, se han realizado los cálculos pertinentes y expuesto los resultados en la sección 4.4.4, referida a las correcciones aplicadas a la determinación de las constantes k_0 del germanio. Como se podrá observar, en la tabla 4.11, recién para espesores del orden de 1,7 mm, rara vez empleados, se produce un apantallamiento que reduce el flujo neutrónico térmico en poco más del 4 %, de todas maneras, se han realizado correcciones de menos de 1%, agregando una incertidumbre del orden del 1‰.

- **Factor α de apartamiento del comportamiento $1/\nu$.**

Se ha demostrado [Montoya, 1995b], que el factor α influye en forma restringida en los resultados de los análisis, por lo que se consideró que no es necesario incluirlo en esta evaluación. Al respecto, el factor α no afecta de manera decisiva los cocientes Q_0 , sobre la base de los cuales se realiza más adelante la evaluación principal.

- **Energías e intensidades de emisión**

Se han consignado en las tablas 4.13 y 4.14 los valores correspondientes a las energías gamma y sus intensidades, emitidas por los productos de la activación del germanio que se pueden emplear como comparadores y/o monitores de flujo, es decir, ^{75}Ge , ^{77}Ge , ^{72}Ga y eventualmente ^{70}Ga y ^{74}Ga . Todos ellos emiten una gran diversidad de emisión de fotones gamma con intensidades significativas (>10%), en regiones intermedias y altas del espectro, fácilmente detectables. Esto favorece la obtención de resultados con alta estadística de medición en tiempos de medición del orden de los minutos (en el peor de los casos, del orden de la hora), muy convenientes para determinaciones relativamente rápidas.

- **Períodos de semidesintegración**

Los $T_{1/2}$ de los radioisótopos del germanio propuestos como monitores son del orden de las horas (82,78 m para el ^{75}Ge y 11,30 h para el ^{77}Ge), por lo tanto, si se emplea la metodología de irradiaciones breves con sistema neumático para llevar a cabo las determinaciones a través de radionucleidos de vida media corta, entonces los comparadores pueden medirse cómodamente después de realizar lo propio con las muestras en estudio,. Sólo en el caso del ^{75}Ge se plantea la necesidad de medirlo con menores tiempos de decaimiento.

Por otra parte, su uso podría ser no aconsejable en irradiaciones largas, debido a la posibilidad de que las altas actividades de nucleidos de corto periodo eventualmente generadas en las matrices en estudio impidan, desde el punto de vista radiológico, la manipulación temprana del conjunto muestra - comparador.

También puede el germanio ser usado repetidamente, dejando decaer convenientemente los radioisótopos mencionados.

- **Grado de complejidad de los espectros gamma**

Los espectros gamma de todos los radionucleidos involucrados revisten cierto grado de complejidad. Por ejemplo, el ^{77}Ge posee un gran número de rayos gamma en toda la extensión del espectro (ver figura 4.14). Desde un punto de vista optimista, esto es positivo puesto que muchas de las líneas pueden servir para los cálculos, obteniéndose varios valores susceptibles de incluir en un promedio pesado, reduciendo así la incertidumbre. Desde otro punto de vista, el riesgo de cometer errores sistemáticos por efecto suma es alto, lo que se puede minimizar teniendo cuidado en seleccionar una geometría de medición conveniente (con distancias fuente-detector de más de 18 cm los efectos suma son despreciables).

- **Factores de autoabsorción**

También se han evaluado en la sección 4.3.5., tabla 4.5. No son excesivamente altos y obviamente se pueden calcular y efectuar las correcciones pertinentes causando un error sistemático menor que 1 ‰.

- **Manejo y conservación de los especímenes de irradiación**

En la Introducción se enumeran las propiedades fisicoquímicas del germanio, enfatizando el altísimo grado de pureza con que se puede conseguir; su inalterabilidad en el tiempo frente a condiciones normales de laboratorio; su fácil decapado químico y limpieza; su sencillo y seguro manejo a pesar de ser algo quebradizo. Esto último, tomado en sentido positivo, es útil para obtener, a partir de una lámina mayor, pequeños trozos que por su parte son sumamente resistentes desde el punto de vista mecánico. Por último, su costo es accesible (unos 10 U\$S/g)

5.1.3. Desarrollo teórico y evaluación

En esta sección evaluaremos la calidad de la función a cumplir, ya sea comparador, monitor de flujos o ambas simultáneamente. Se realizará además un análisis de los factores de error de los resultados de los análisis o de la medición de los flujos neutrónicos, a la luz de las relaciones de flujos térmico/epitérmico (f) y de la dependencia con las constantes nucleares utilizadas en los cálculos ($I_0, \alpha, k_0, \bar{E}_r$).

5. Aplicaciones analíticas del germanio y de sus constantes nucleares

Es interesante observar que los valores de las relaciones Q_0 , para el ^{75}Ge y el ^{77}Ge (1,68 y 13,8, respectivamente) no están alejadas de las de la mayoría de los radioisótopos de los elementos determinados usualmente mediante análisis por activación, por cuya razón el germanio puede ser considerado a priori como un excelente comparador, empleando a conveniencia uno u otro de sus isótopos.

Con respecto a su eventual utilización como monitor de flujos térmico y epitérmico, la diferencia entre los valores Q_0 del ^{75}Ge y del ^{77}Ge no es muy grande, pero es similar a la correspondiente del par ^{60}Co - ^{198}Au , frecuentemente empleado para este fin (Q_0 's: 1,993 y 15,71, respectivamente).

Con respecto a los datos nucleares involucrados según la función a cumplir, es necesario plantear el análisis de errores [Van der Linden et al., 1973; Simonits et al., 1976], a través de la ecuación general

$$Z_0 = \left| \frac{\frac{df}{f}}{\frac{dR_{Cd}}{R_{Cd}}} \right| = \frac{R_{Cd} - 1}{R_{Cd}} < 1 \quad (\text{ec. 5.1.})$$

De la que se deducen

$$Z_a = \left| \frac{f \cdot (Q_{0,i} - Q_{0,c})}{(f + Q_{0,i}) \cdot (f + Q_{0,c})} \right| \quad (\text{ec. 5.2.})$$

$$Z_f = \left| \frac{(f + Q_{0,m_1}) \cdot (f + Q_{0,m_2})}{f \cdot (Q_{0,m_1} - Q_{0,m_2})} \right| \quad (\text{ec. 5.3.})$$

En las que

Z_a : factor de error para los resultados de la determinación del elemento en estudio a través de su precursor i , empleando un comparador c .

Z_f : factor de error para la determinación de la relación de flujos f , empleando los monitores m_1 y m_2

Y, por último, el factor de error conjunto, que valora el empleo simultáneo como comparador y monitor de flujo es:

$$Z = Z_a \cdot Z_f \quad (\text{ec. 5.4.})$$

Se observa inmediatamente en la ecuación 5.2 que el error de la determinación analítica disminuye a medida que se acercan los valores de Q_0 del comparador y del isótopo del elemento a determinar. Por otra parte, cuando se trata de utilizar a un elemento como monitor multi-isotópico de flujo, se desprende de la ecuación 5.3. que cuanto mayor es la diferencia entre los valores de Q_0 de los isótopos empleados, menor error relativo se comete en la

5. Aplicaciones analíticas del germanio y de sus constantes nucleares

medición de la relación de flujos térmico/rápido. Por último, de los resultados de la ecuación 5.4, surge la evaluación conjunta cuando el material cumple las dos funciones simultáneamente.

A fin de iniciar la comparación entre el germanio y los otros comparadores-monitores citados, se consignan los correspondientes valores de las constantes necesarias en la tabla 5.1. Luego, en la tabla 5.2, se lista una serie de 71 radioisótopos correspondientes a 55 elementos químicos determinables por el método del k_0 , la mayoría de ellos de fuerte interés analítico en muestras biológicas, ambientales, geológicas o industriales. En la lista figuran los productos de la activación por reacciones (n,γ) , sus $T_{1/2}$ y cocientes Q_0 , a fin de observar las bandas de predominio de los comparadores en cuestión. Para facilitar este análisis, se ordenó según los valores de Q_0 .

Los valores de los $T_{1/2}$ fueron extraídos de la Tabla de Nucleidos de Karlsruhe [Pfennig et al., 1995] y de las Nuclear Wallet Cards [Tuli, 1990]; los datos de Q_0 se obtuvieron de la publicación de Van del Linden y colaboradores [Ídem, 1973]. Si bien existen tablas más modernas de integrales de resonancia y de secciones eficaces por separado, su cociente Q_0 , determinado como parámetro independiente no ha vuelto a ser tabulado. No se han incluido en la tabla 5.2 las incertidumbres de los valores registrados pues no son relevantes a los fines de esta evaluación.

Tabla 5.1: Datos nucleares de los comparadores - monitores de flujo

Elemento	Reacción nuclear	$T_{1/2}$ del producto	Q_0
Ge	$^{74}\text{Ge}(n,\gamma)^{75}\text{Ge}$	82,78 m	$1,68 \pm 0,01$
	$^{76}\text{Ge}(n,\gamma)^{77}\text{Ge}$	11,30 h	$13,8 \pm 0,2$
Zr	$^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr}$	64,02 d	$5,05 \pm 0,10$
	$^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97}\text{Zr}$	16,90 h	248 ± 4
Sn	$^{112}\text{Sn}(n,\gamma)^{113}\text{Sn}$	115,09 d	$48,4 \pm 0,6$
	$^{122}\text{Sn}(n,\gamma)^{123\text{m}}\text{Sn}$	40,06 m	$5,41 \pm 0,27$
	$^{124}\text{Sn}(n,\gamma)^{125\text{m}}\text{Sn}$	9,52 m	$60,1 \pm 1,7$
Ru	$^{96}\text{Ru}(n,\gamma)^{97}\text{Ru}$	2,9 d	$23,1 \pm 1,0$
	$^{102}\text{Ru}(n,\gamma)^{103}\text{Ru}$	39,35 d	$3,3 \pm 0,3$
	$^{104}\text{Ru}(n,\gamma)^{105}\text{Ru}$	4,44 h	$13,0 \pm 0,6$

En primera aproximación, la mayor diferencia entre los factores Q_0 de los isótopos del mismo monitor corresponde al zirconio, resultando entonces obvio que este elemento es el mejor monitor de flujo de los presentados, lo cual no desautoriza a priori el uso de los demás. Adicionalmente, debe señalarse que el ^{96}Zr se muestra muy sensible a las variaciones de α , introduciendo una componente de incertidumbre que tendería a favorecer a los otros monitores bi-isotópicos.

Tabla 5.2: Datos nucleares de elementos de interés analítico, en orden de Q_0

Nº de orden	Elemento	Radioisótopo	$T_{1/2}$	Q_0
1	Dy	^{165}Dy	2,35 h	0,25
2	Hg	^{197}Hg	64,1 h	0,41
3	Sc	^{46}Sc	83,82 d	0,43
4	Ca	^{49}Ca	8,72 m	0,45
5	Yb	^{175}Yb	4,2 d	0,46
6	Ni	^{65}Ni	2,52 h	0,51
7	Lu	^{177}Lu	6,71 d	0,52
8	Cr	^{51}Cr	27,70 d	0,53
9	V	^{52}V	3,75 m	0,55
10	Na	^{24}Na	14,96 h	0,59
11	Mg	^{27}Mg	9,46 m	0,64
12	Ti	^{51}Ti	5,8 m	0,67
13	Eu	^{152}Eu	13,33 a	0,67
14	Cl	^{38}Cl	37,18 m	0,69
15	Al	^{28}Al	2,246 m	0,71
16	Ce	^{141}Ce	32,50 d	0,83
17	Ba	^{139}Ba	83,06 m	0,88
18	Hg	^{203}Hg	46,59 d	0,88
19	Eu	$^{152\text{m}}\text{Eu}$	9,3 h	0,92
20	K	^{42}K	12,36 h	0,97
21	Mn	^{56}Mn	2,58 h	1,053
22	Cu	^{66}Cu	5,1 m	1,06
23	Cu	^{64}Cu	12,700 h	1,14
24	La	^{140}La	40,272 h	1,24
25	Fe	^{59}Fe	44,503 d	1,28
26	Pr	^{142}Pr	19,13 h	1,8
27	Zn	^{65}Zn	244,3 d	1,908
28	Co	^{60}Co	5,273 a	1,993
29	S	^{37}S	5,0 m	2,0

5. Aplicaciones analíticas del germanio y de sus constantes nucleares

Tabla 5.2 (Continuación)

No de orden	Elemento	Radioisótopo	$T_{1/2}$	Q_0
30	Sr	^{85}Sr	64,9 d	2,0
31	Sr	^{89}Sr	50,5 d	2,0
32	Ba	^{133}Ba	10,5 a	2,0
33	Nd	^{147}Nd	10,98 d	2,0
34	Gd	^{153}Gd	239,47 d	2,0
35	Hf	^{181}Hf	42,39 d	2,52
36	Ag	^{108}Ag	2,41 m	2,9
37	Zn	$^{69\text{m}}\text{Zn}$	13,8 h	3,19
38	Eu	^{154}Eu	8,8 a	3,81
39	F	^{20}F	11,0 s	3,9
40	Er	^{171}Er	7,52 h	4,2
41	Yb	^{169}Yb	32,0 d	6,385
42	Ga	^{72}Ga	14,1 h	6,63
43	Se	^{75}Se	119,64 d	9,9
44	Ho	^{166}Ho	26,80 h	10,1
45	Cs	$^{134\text{m}}\text{Cs}$	2,90 h	11,0
46	Th	^{233}Th	22,3 m	11,53
47	Pd,	^{109}Pd	4,69 m	11,9
48	Cs	^{134}Cs	2,06 a	12,0
49	Pd	^{111}Pd	23,4 m	12,7
50	As	^{76}As	26,4 h	13,6
51	Tm	^{170}Tm	128,6 d	13,7
52	W	^{187}W	23,72 h	13,7
53	Sm	^{153}Sm	46,27 h	14,4
54	Rb	^{86}Rb	18,7 d	14,8
55	Re	^{186}Re	89,25 h	15,4
56	Tb	^{160}Tb	72,3 d	16,1
57	In	$^{116\text{m1}}\text{In}$	54,29 m	16,8
58	Ag	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	249,9 d	17,5

Tabla 5.2 (Continuación)

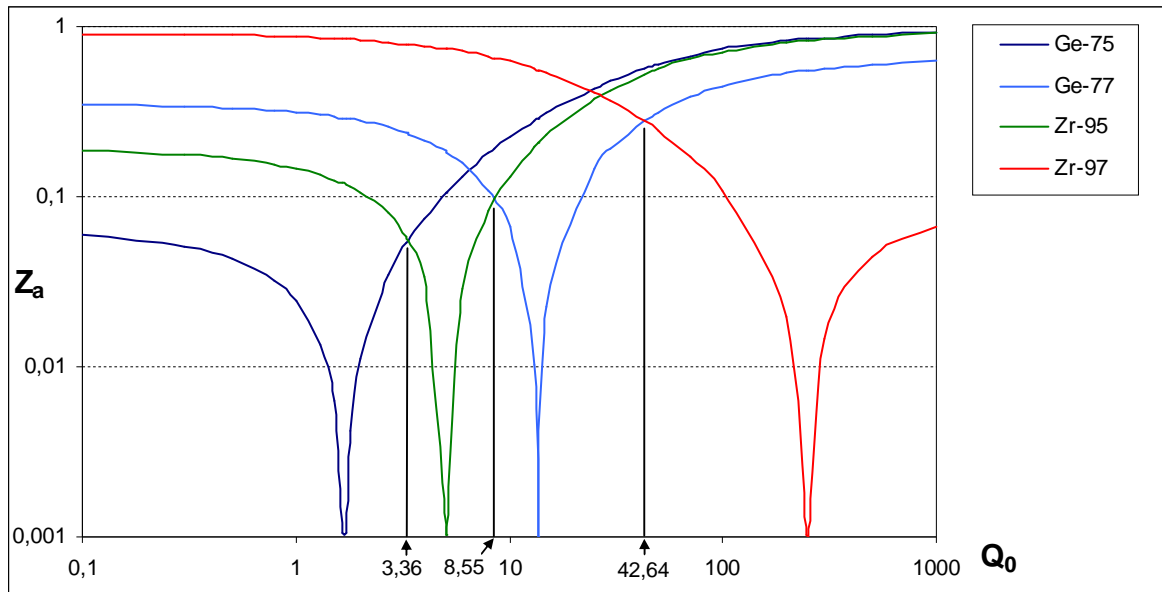
No de orden	Elemento	Radioisótopo	$T_{1/2}$	Q_0
59	Mo	^{101}Mo	14,61 m	18,84
60	Br	^{82}Br	35,34 h	19,3
61	Pd	$^{111\text{m}}\text{Pd}$	5,5 h	20,0
62	I	^{128}I	25,0 m	24,8
63	Ba	^{131}Ba	11,5 d	25,1
64	Sb	^{124}Sb	60,3 d	28,8
65	Sb	^{122}Sb	2,70 d	33,0
66	Gd	^{159}Gd	18,48 h	33,3
67	Ta	^{182}Ta	114,43 d	33,3
68	Mo	^{99}Mo	65,94 h	53,1
69	Rh	$^{104\text{m}}\text{Rh}$	4,4 m	55,0
70	U	^{239}U	23,5 m	103,4
71	Ba	$^{135\text{m}}\text{Ba}$	28,7 h	151,0

Observando los valores de Q_0 (especialmente los más bajos) de los elementos listados, y sus diferencias con los propios del germanio, se puede postular a priori que nuestro comparador brindará resultados con menor error con la mayoría de los elementos consignados, que los otros comparadores. Incluso existen algunos elementos cuya situación es especialmente favorable, como Co, Zn, As, Rb, Sm y W, cuyos Q_0 son muy cercanos o incluso casi coincidentes con alguno de los dos cocientes Q_0 del germanio.

Sin embargo, para efectuar un análisis más exhaustivo y detallado, se hace necesario definir con mayor objetividad los conjuntos de elementos químicos susceptibles de ser determinados en mejores condiciones con uno u otros de los comparadores, y tomar en cuenta posibles escenarios de diferentes relaciones f de flujos térmico/epitérmico, que también intervienen en el cálculo del factor de error. En referencia a esto último, se han considerado dos casos típicos de relaciones de flujo que se presentan en la mayoría de las posiciones de irradiación habituales de los reactores de investigación, esto es $f = 25$ y $f = 100$.

A continuación, se muestran los gráficos del factor de error Z_a en función de Q_0 , para un valor de $f = 25$, comparando Ge con Zr, Sn y Ru, respectivamente.

Figura 5.1.: Variación de Z_a en función de Q_0 para el germanio y el zirconio y $f = 25$



Los valores indicados con líneas verticales son los Q_0 para los cuales se igualan los valores de las curvas de Z_a , obtenidos numéricamente a partir del programa de cálculo escrito (Excel) para desplegar los gráficos. Estos datos establecen los límites de las bandas de predominio de los comparadores, en las cuales resulta menor el factor de error analítico para ese comparador.

Así, en la figura 5.1. se observa que el germanio presenta ventajas frente al zirconio para determinar elementos cuyos isótopos posean valores de Q_0 menores que 3,36 y aquellos con Q_0 comprendidos entre 8,55 y 42,64. Esto representa a los primeros 37 isótopos listados en la tabla 5.2. (más de la mitad del total), y además los numerados del 43 al 68 de la misma tabla, es decir, 50 de esos 55 elementos enumerados.

Figura 5.2.: Variación de Z_a en función de Q_0 para el germanio y el estaño y $f = 25$

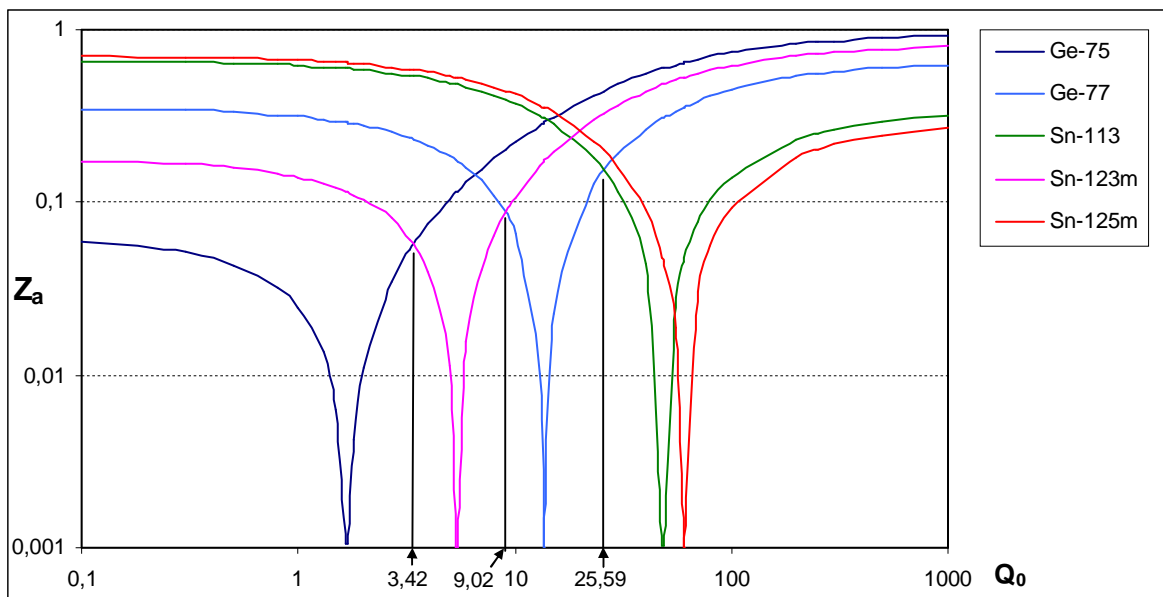
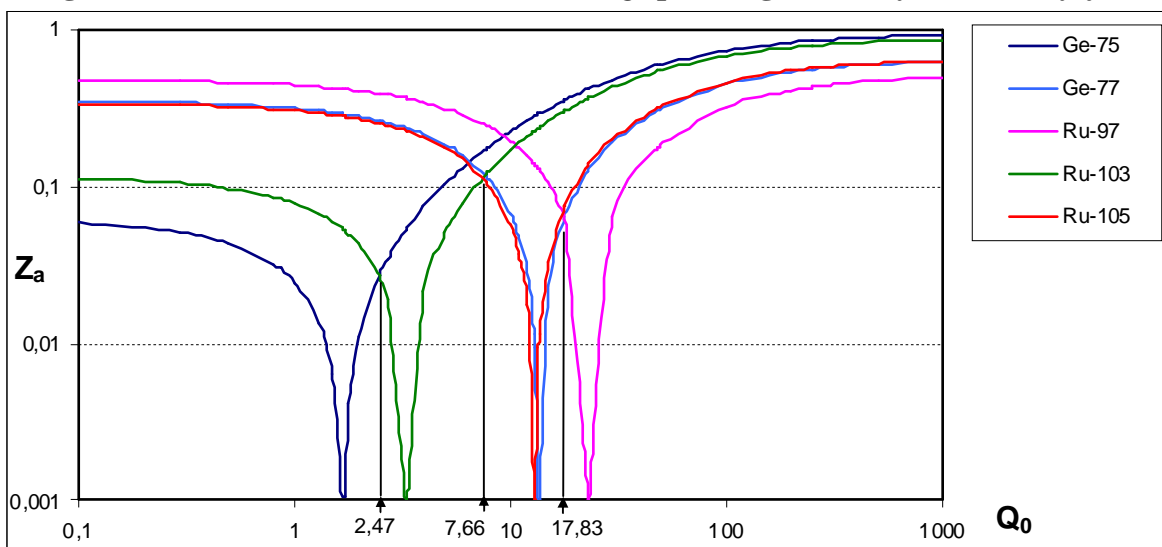


Figura 5.3.: Variación de Z_a en función de Q_0 para el germanio y el rutenio y $f = 25$



Siguiendo esta línea de razonamiento, se obtienen resultados igualmente favorables al analizar las figuras 5.2 y 5.3, correspondientes a la comparación con el estaño y el rutenio, respectivamente. Un resumen final con todos los resultados se presenta más adelante, basado en la tabla 5.3.

Ahora se presentan los gráficos de Z_a en función de Q_0 para la otra relación de flujos postulada, $f = 100$, comparando igualmente Ge con Zr, Sn y Ru.

Figura 5.4.: Variación de Z_a en función de Q_0 para el germanio y el zirconio y $f = 100$

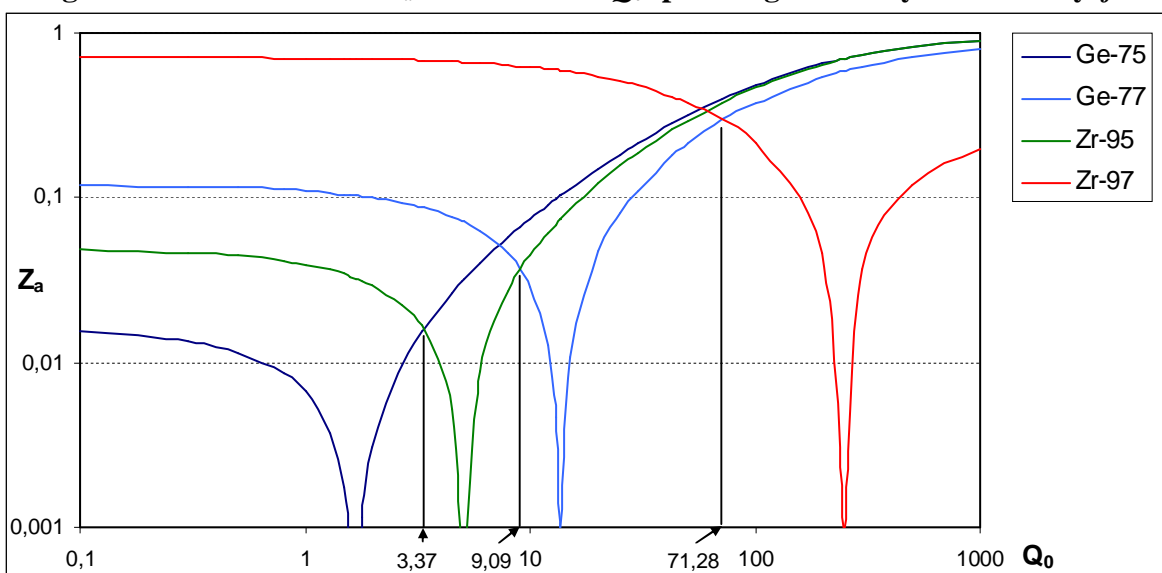


Figura 5.5.: Variación de Z_a en función de Q_0 para el germanio y el estaño y $f = 100$

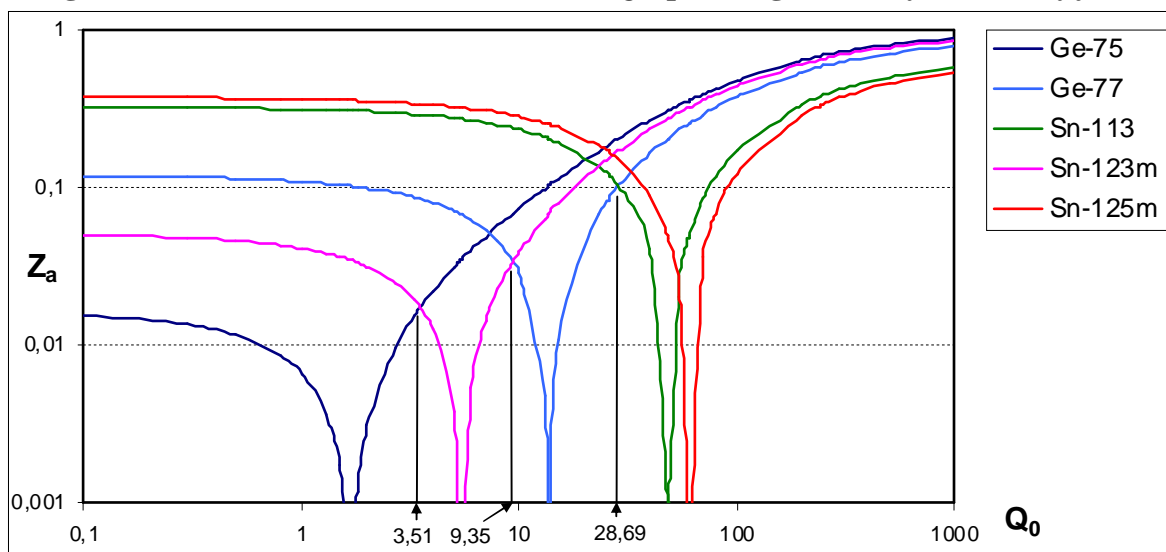
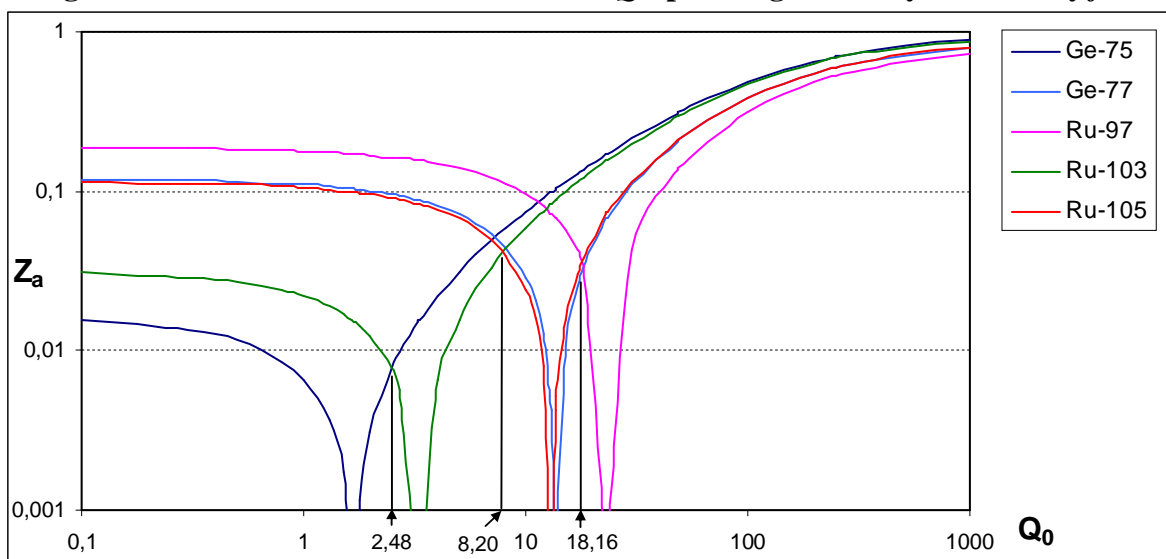


Figura 5.6.: Variación de Z_a en función de Q_0 para el germanio y el rutenio y $f = 100$



En los casos de $f = 100$ se exponen situaciones que difieren poco de aquéllas en las que se probó $f = 25$. Comparando con el zirconio (figura 5.4), el germanio presenta ventajas al determinar elementos cuyos isótopos poseen valores de Q_0 menores que 3,37 y aquellos entre 9,09 y 71,28. Esto representa los primeros 37 isótopos de la lista 5.2. y los situados entre los números 43 y 70 de tal lista.

En la figura 5.5 se observa la comparación con el estaño. En este caso, el germanio produce menores errores al trabajar con los primeros 37 isótopos de la lista y con los números 43 a 64, correspondientes a los valores de Q_0 menores que 3,51 y los comprendidos entre 9,35 y 28,69.

Haciendo lo propio para el caso del rutenio, representado en la figura 5.6., se ve que los isótopos determinados con menor error usando germanio son los 34 primeros, y los situados

5. Aplicaciones analíticas del germanio y de sus constantes nucleares

entre los números 43 y 58. Respectivamente, corresponden a los que poseen valores de Q_0 menores que 2,48 y los comprendidos entre 8,20 y 18,16.

Para una mejor visualización, se repiten los datos presentados ordenados en la tabla 5.3., en la que se mencionan además lo elementos químicos involucrados

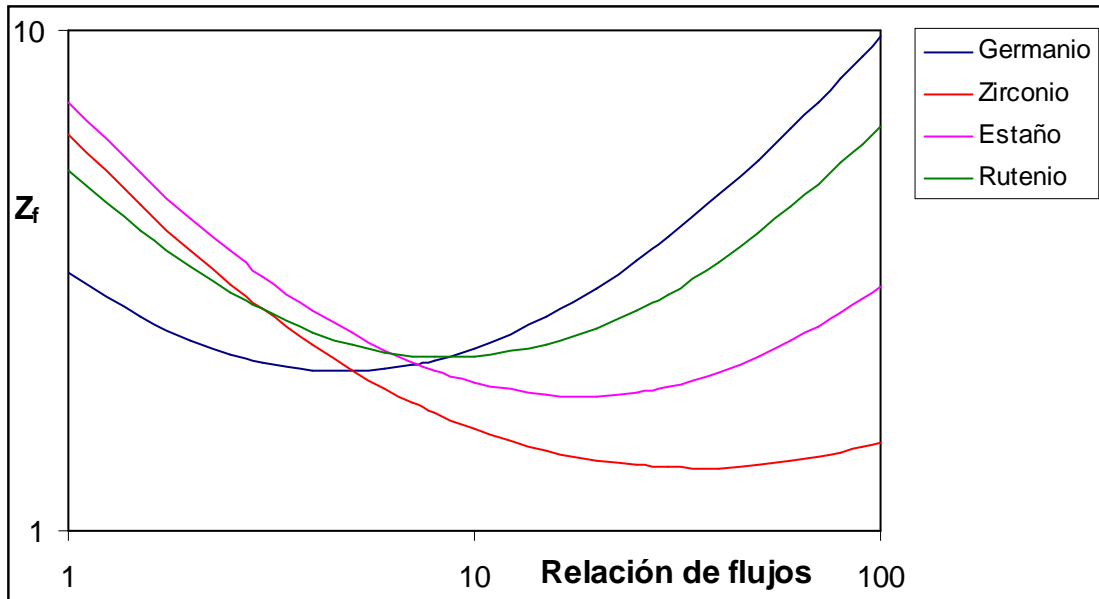
Tabla 5.3. Bandas de predominio del germanio en comparación con Zr, Sn y Ru

Caso	Bandas de Q_0 con ventaja para Ge	Isótopos listados en tabla 5.2.	Elementos químicos correspondientes (en orden alfabético)	Elementos con desventaja
Ge vs. Zr $f = 25$	< 3,36 8,55 a 42,64	1 a 37 43 a 68	Ag, Al, As, Au, Ba, Br, Ca, Ce, Cl, Co, Cs, Cu, Cr, Dy, Eu, Fe, Gd, Hf, Hg, Ho, I, In, K, La, Lu, Mg, Mn, Mo, Na, Nd, Ni, Pd, Pr, Rb, Re, S, Sb, Sc, Se, Sm, Sr, Ta, Tb, Th, Ti, Tm, V, W, Yb, Zn	F, Er, Ga, Rh, U
Ge vs. Zr $f = 100$	< 3,37 9,09 a 71,28	1 a 37 43 a 70	Ídem anterior, agregando Rh	F, Er, Ga, U
Ge vs. Sn $f = 25$	< 3,42 9,02 a 25,59	1 a 37 43 a 64	Ídem primero, excluyendo Ta	F, Er, Ga, Rh, Ta, U
Ge vs. Sn $f = 100$	< 3,51 9,35 a 28,69	1 a 37 43 a 64	Ídem anterior	Ídem anterior
Ge vs. Ru $f = 25$	< 2,47 7,66 a 17,83	1 a 36 43 a 59	Ídem primero, excluyendo Br, I, Mo, Zn	Br, Er, Ga, I, Mo, Rh, Ta, U, Zn
Ge vs. Ru $f = 100$	< 2,48 8,20 a 18,16	1 a 34 43 a 59	Ídem primero, excluyendo Br, Hf, I, Mo, Ta, Zn	Br, Er, Ga, Hf, I, Mo, Rh, Ta, U, Zn

Como se observará, el germanio está en ventaja, de alguna u otra forma, en la determinación de 51 de los 55 elementos estudiados. Sólo son desfavorables siempre los casos de F, Er, Ga y U, de los cuales solamente Ga y U pueden tener algún interés analítico importante para la aplicación de este método.

Seguidamente, se evalúa el comportamiento de los cuatro elementos en cuestión actuando exclusivamente como monitores de flujo. Se grafica entonces la ecuación 5.2 en función de la relación de flujos f , lo cual se muestra en la figura 5.7.

Figura 5.7.: Factor de propagación de error para el cálculo de la relación de flujos, empleando Ge, Zr, Sn o Ru



Como se advierte, el germanio posee el menor valor de propagación de error hasta el ámbito de relación de flujos cercano a 10, y luego se invierte, convirtiéndose en el mayor. Sin embargo, esto es sólo un aspecto parcial del problema, al igual que el análisis anterior de la actuación como comparadores. La evaluación conjunta es la que aclarará la cuestión.

Para no complicar innecesariamente el análisis empleando la ecuación 5.3 con todos los materiales en estudio, se comparará el germanio solamente con el zirconio que, como se vio, es el mejor monitor de flujos. Esto arrojará luz, acotando en forma más realista el alcance del germanio en las dos funciones. En primera instancia, se vuelcan en la tabla 5.4 algunos valores representativos de los factores Z_f , obtenidos con la ecuación 5.2.

Tabla 5.4.: Valores calculados de Z_f para el Ge y el Zr

Monitor	Z_f	
	$f = 25$	$f = 100$
Ge	3,46	9,69
Zr	1,35	1,50

Con el empleo de dichos factores, se puede calcular el factor conjunto de error $Z = Z_a \cdot Z_f$ y graficarlo en función de Q_0 , tal como se muestra en las figuras 5.8 y 5.9.

Figura 5.8.: Variación de $Z = Z_a \cdot Z_f$ en función de Q_0 para el germanio y el zirconio, correspondiente a $f = 25$

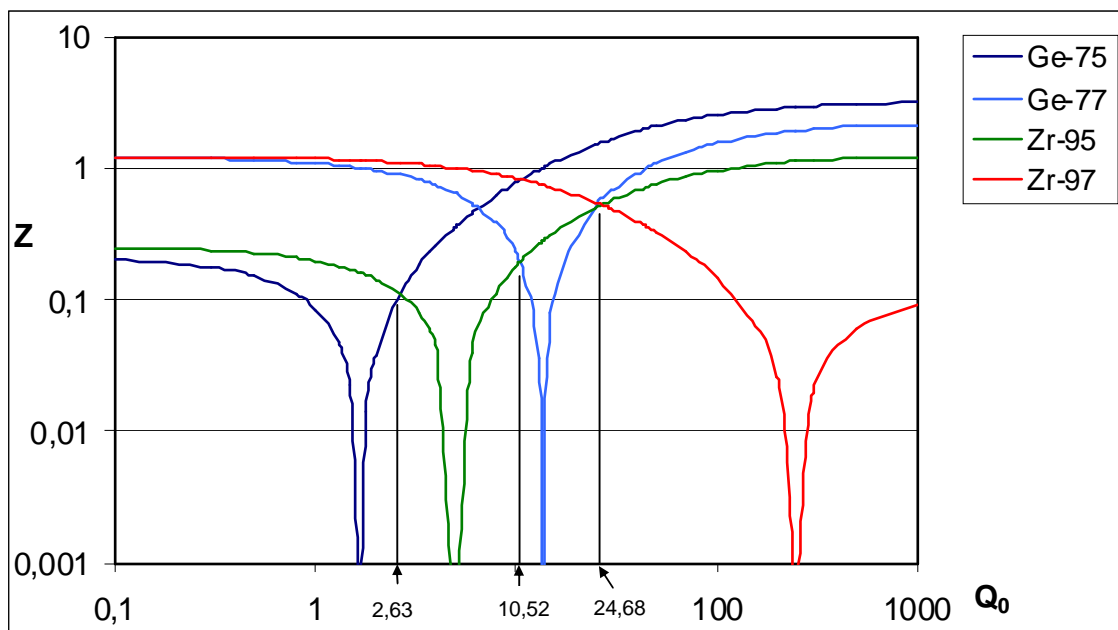
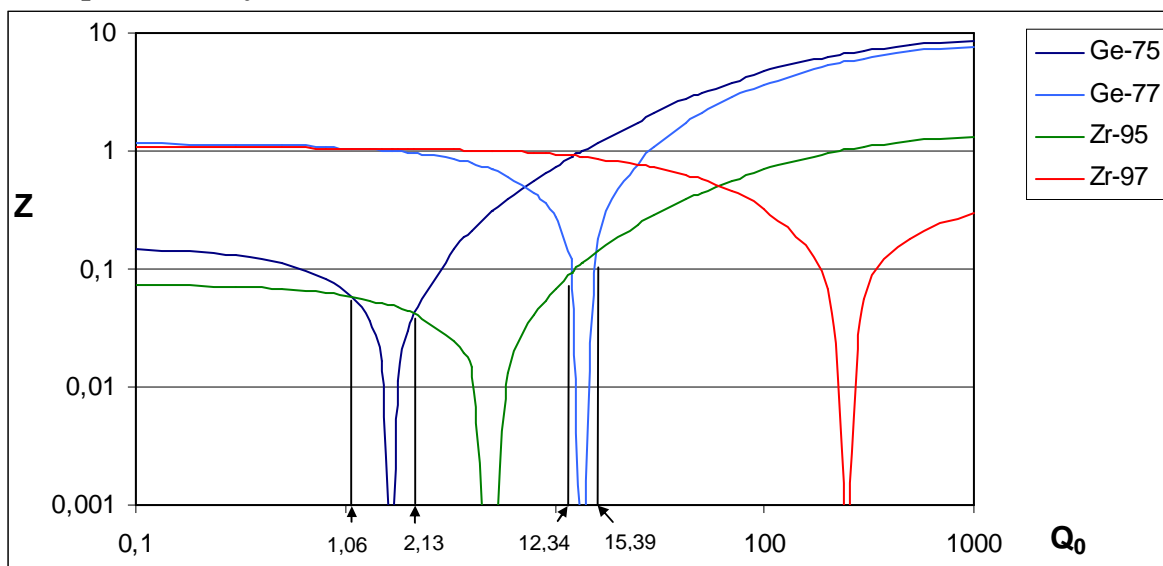


Figura 5.9.: Variación de $Z = Z_a \cdot Z_f$ en función de Q_0 para el germanio y el zirconio, correspondiente a $f = 100$



Como se observa, en el caso de $f = 25$ sigue prevaleciendo el germanio frente al zirconio, ahora en su doble función de comparador y monitor de flujo, pudiéndose determinar con menor error los primeros 35 radioisótopos que figuran en la lista 5.2 (hasta $Q_0 = 2,63$), más los 18 comprendidos entre 10,52 y 24,68.

Sin embargo, a $f = 100$, el factor Z_f es alto para nuestro elemento y hace que el error conjunto sobrepase al del zirconio en la mayoría del ámbito de aplicación, dejando sólo dos bandas en las vecindades de los valores de Q_0 del germanio, entre 1,06 y 2,13; y entre 12,34 y

5. Aplicaciones analíticas del germanio y de sus constantes nucleares

15,39. Aun así, esto corresponde a 20 radioisótopos de 18 elementos posibles de determinar con menor error (As, Ba, Cu, Cs, Fe, Gd, La, Nd, Pd, Pr, Rb, Re, S, Sm, Sr, Tm, W, Zn).

Observando las figuras 5.8 y 5.9, se torna interesante deducir cual será la relación de flujos para la que se hacen iguales los factores de propagación del error conjunto del germanio y el zirconio a un dado Q_0 al principio del gráfico, de manera tal de asegurar que desde allí hasta el primer cruce de curvas (la región que acumula a la mayoría de los analitos) se comportará el germanio como mejor comparador y monitor.

El Q_0 aludido es el menor de la tabla 5.2, es decir, el correspondiente al ^{165}Dy : 0,25. El fin perseguido se logra planteando la siguiente igualdad, adaptada de la ecuación 5.3:

$$Z_m = Z_{a,m}^{\text{Ge}} \cdot Z_{f,m}^{\text{Ge}} = Z_{a,m}^{\text{Zr}} \cdot Z_{f,m}^{\text{Zr}} \quad (\text{ec. 5.5})$$

Donde el subíndice m denota la condición postulada del menor Q_0 de la lista, ya mencionado. La ecuación 5.4. se despliega como sigue:

$$\begin{aligned} Z_m &= \left| \frac{\cancel{f_m(Q_{0,m} - Q_{0,Ge_1})}}{(\cancel{f_m + Q_{0,m}}) \cdot (\cancel{f_m + Q_{0,Ge_1}})} \right| \cdot \left| \frac{(f_m + Q_{0,Ge_2}) \cdot (\cancel{f_m + Q_{0,Ge_1}})}{\cancel{f_m}(Q_{0,Ge_2} - Q_{0,Ge_1})} \right| = \\ &= \left| \frac{\cancel{f_m}(Q_{0,m} - Q_{0,Zr_1})}{(\cancel{f_m + Q_{0,m}}) \cdot (\cancel{f_m + Q_{0,Zr_1}})} \right| \cdot \left| \frac{(f_m + Q_{0,Zr_2}) \cdot (\cancel{f_m + Q_{0,Zr_1}})}{\cancel{f_m}(Q_{0,Zr_2} - Q_{0,Zr_1})} \right| \end{aligned} \quad (\text{ec. 5.6})$$

Siendo f_m la relación de flujos buscada, y $Q_{0,m} = 0,25$. Además,

$$\begin{aligned} Q_{0,Ge_1} &= 1,68 & Q_{0,Zr_1} &= 5,05 \\ Q_{0,Ge_2} &= 13,6 & Q_{0,Zr_2} &= 248 \end{aligned}$$

Como se ve, se cancelan varios términos y, conociendo los valores Q_0 , se replantean las restas de manera tal que el resultado sea positivo. Luego, se puede despejar f_m :

$$f_m = \frac{A \cdot Q_{0,Zr_2} - B \cdot Q_{0,Ge_2}}{B - A} \quad (\text{ec. 5.7})$$

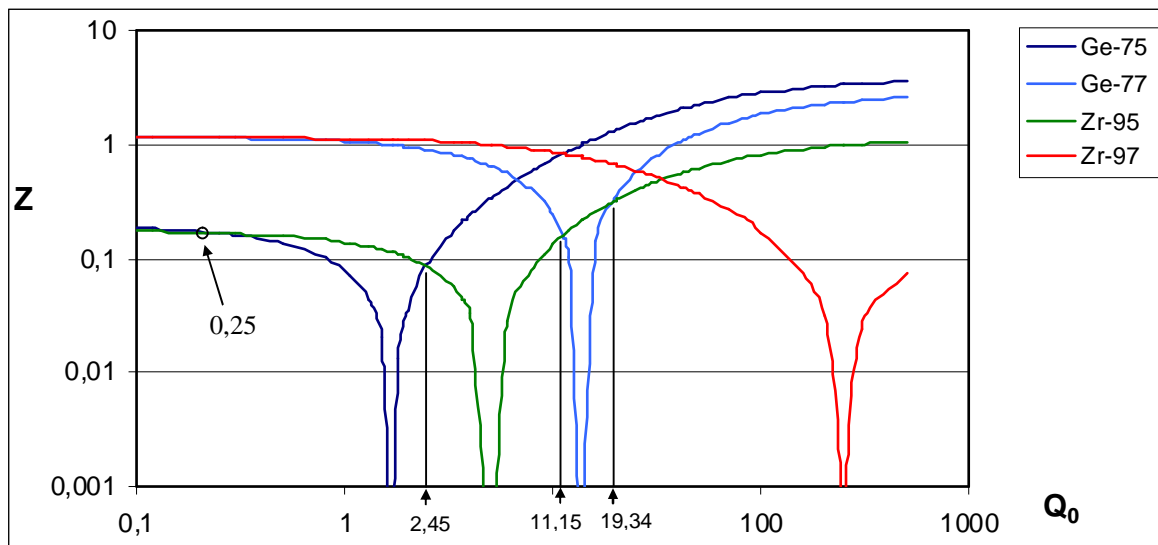
En la que

$$A = \frac{Q_{0,Zr_1} - Q_{0,m}}{Q_{0,Zr_2} - Q_{0,Zr_1}} \quad \text{y} \quad B = \frac{Q_{0,Ge_1} - Q_{0,m}}{Q_{0,Ge_2} - Q_{0,Ge_1}}$$

Finalmente, se calcula el valor de f_m , que resulta: 32,6. Por su lado, para esa relación de flujos, los factores de propagación de error Z_f actuando como monitores de flujo son 4,076 y 1,334 para el germanio y para el zirconio, respectivamente.

En el gráfico de la figura 5.10 se exponen las curvas de Z correspondientes al Ge y al Zr calculadas en las condiciones propuestas.

Figura 5.10.: Variación de $Z = Z_a \cdot Z_f$ en función de Q_0 para el germanio y el zirconio, correspondiente a $f = 32,6$



Esta situación es la de la relación de flujo mínimo para que el germanio prevalezca sobre el zirconio desde los valores más bajos de Q_0 de los analitos hasta sobrepasar su primer Q_0 ; donde, como se dijo, se concentra la mayoría de los elementos químicos listados; además de la banda rodeando su segundo Q_0 . Así, se determinan los primeros 34 isótopos más otros 16 de la segunda región, que pertenecen a los siguientes 43 elementos: Ag, Al, As, Au, Ba, Br, Ca, Ce, Cl, Co, Cs, Cu, Cr, Dy, Eu, Fe, Gd, Hg, In, K, La, Lu, Mg, Mn, Mo, Na, Nd, Ni, Pd, Pr, Rb, Re, S, Sc, Sm, Sr, Th, Ti, Tm, V, W, Yb, Zn.

Comparar ahora el germanio con el estaño y el rutenio haría innecesariamente extenso este análisis. Simonits y De Corte se encargan en su trabajo de demostrar que el zirconio es mejor comparador y monitor que el estaño y el rutenio, por lo que sería ocioso mostrar que el germanio supera al estaño y al rutenio en su empleo como comparador para la mayoría de los analitos considerados

De todas maneras, e independientemente de la comparación con el zirconio, es de hacer notar que aún en las condiciones más desfavorables para el germanio, es decir, un flujo tan termalizado como $f = 100$, el factor de propagación de error no supera la unidad hasta valores de Q_0 cercanos a 40. Esto implica que se pueden determinar con error más que aceptable todos los elementos de la lista, excepto el Rh y el U, que son los que poseen los valores más altos de Q_0 .

En el caso de disponer de un flujo con componentes epitérmica y rápida significativas, surge otro aspecto hasta ahora no presentado, que se adiciona a las capacidades de nuestro elemento. Se trata de la posibilidad de emplear la reacción $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$ ($E_m=6,1$ MeV), con el fin de determinar la componente de mayores energías del espectro neutrónico, aptitud que no poseen los otros monitores de flujo aquí tratados. De esta manera, el germanio se constituye en un excelente comparador y muy buen monitor de flujo integral; calificativos que, más allá de la estimación teórica, se afirman con las demostraciones experimentales que se presentan a continuación.

5.1.4. Comprobación experimental

Esta sección debe ser considerada también como corroboración del empleo de los factores k_0 del germanio, cuya determinación fue expuesta en la sección 4.5.

Para llevar a la práctica las inferencias surgidas del desarrollo teórico se dispuso la determinación de varios elementos químicos por análisis por activación neutrónica empleando el método paramétrico del k_0 en dos conocidos materiales de referencia: sedimento marino NRCC-PACS-1 del National Research Council, Canada [Cantillo, 1992]; y col rizada en polvo Bowen's Kale, de la University of Reading, Reino Unido [IAEA, 1990].

Las experiencias se realizaron en el reactor RA-6 del Centro Atómico Bariloche, utilizando el sistema neumático para realizar irradiaciones de corta duración. Se irradiaron las muestras y los monitores en posiciones con distintas relaciones de flujos térmico a epitérmico, comprendiendo tres de sus posiciones de irradiación: la columna térmica externa, con neutrones fuertemente termalizados; una zona periférica con relación de flujo térmico a epitérmico de 30:1 aproximadamente; y el núcleo mismo del reactor, con una componente mayoritariamente epitérmica y rápida.

Las muestras de los materiales de referencia, en polvo, fueron colocadas en los recipientes de polietileno descritos en la sección 4.1.3, figura 4.3, que permiten su pesada previa y la medición posterior sin desarmarlos. En todos los casos se irradiaron y midieron recipientes vacíos como blancos, para descontar el fondo de impurezas presentes en el polietileno. Muestras y monitores fueron pesados en una balanza microanalítica Mettler M5 ($s = 1 \mu\text{g}$).

Las mediciones se llevaron a cabo mediante un sistema de espectrometría gamma de alta resolución, constituido por un detector de GeHP Princeton Gamma Tech (FWHM:1,8 keV para el pico de 1332,5 keV de ^{60}Co) y un analizador multicanal Nuclear Data de 4096 canales, asociado a una computadora para el procesamiento de espectros y datos.

Para los análisis de los materiales de referencia se efectuaron irradiaciones de 3 minutos y varias mediciones en lapsos breves (3 a 10 minutos) y de mayor duración (5 horas) a tiempos de decaimiento apropiados.

En todos los casos, y dada la complejidad de los espectros, muestras y monitores se midieron en geometrías convenientes ($>18 \text{ cm}$) para minimizar y desprestigiar efectos suma. Los datos fueron corregidos en forma convencional por autoapantallamiento de neutrones, autoabsorción de la radiación gamma, decaimientos y pérdidas por tiempo muerto.

5.1.4.1. Resultados y conclusiones

Los valores que empleamos de los factores k_0 para el ^{75}Ge y ^{77}Ge , fueron aquellos cuya determinación fue descrita en la sección 4.5, consignados en la tabla 4.16. Tal como fuera ya mencionado, los únicos valores existentes en la bibliografía actual [Kolotov y De Corte, 2004] reproducen a los valores originales de De Corte et al. [Ídem, 1993], que son tentativos y se encuentran consignados sin incertidumbre relativa, por lo que no es correcto utilizarlos con fines analíticos.

5. Aplicaciones analíticas del germanio y de sus constantes nucleares

En las tablas 5.4 y 5.5 se presentan los resultados de los análisis efectuados en los materiales de referencia citados, junto a los valores certificados o recomendados de concentración elemental [Cantillo, 1992; IAEA, 1990]

Tabla 5.4: Resultados del Análisis de NRCC-PACS-1

Elemento	Conc. certificada	Conc. determinada en esta Tesis
Al (%)	6,48 ± 0,12	6,52 ± 0,16
Cl (%)	2,39 ± 0,09	2,55 ± 0,10
K (%)	1,25 ± 0,07	1,29 ± 0,10
Mn (ppm)	470 ± 12	489 ± 17
Na (%)	3,27 ± 0,08	3,50 ± 0,11
Sb (ppm)	171 ± 14	191 ± 30
Ti (ppm)	4215 ± 67	4058 ± 800
V (ppm)	127 ± 5	144 ± 13

Tabla 5.5: Resultados del Análisis de Bowen's Kale

Elemento	Conc. certificada	Conc. determinada
Cl (%)	0,356 ± 0,043	0,429 ± 0,045
K (%)	2,44 ± 0,15	2,26 ± 0,13
Mg (%)	0,161 ± 0,018	0,163 ± 0,013
Mn (ppm)	14,8 ± 1,6	15,2 ± 0,6
Na (%)	0,237 ± 0,028	0,190 ± 0,010

Tal como puede apreciarse, los resultados muestran un acuerdo razonable con los valores recomendados o certificados, con incertidumbres en general aceptables. Se demuestra de esta forma que ambos isótopos del germanio pueden ser empleados como comparadores, verificándose además que los factores k_0 determinados son adecuados como valores de trabajo.

Se ha discutido anteriormente la posibilidad de aplicación de los isótopos del germanio para la medición de las componentes térmica y epitérmica del espectro neutrónico. En el trabajo desarrollado para la determinación simultánea de las relaciones de flujo f y el factor α descrito en la sección 5.4 [Cohen, Furnari et. al., 1995 y 1996] el par $^{75}\text{Ge} - ^{77}\text{Ge}$ fue empleado entre otros pares de monitores de flujo, de uso corriente, con excelentes resultados.

Finalmente, la factibilidad de usar germanio como monitor de flujo integral fue demostrada en la determinación conjunta de fósforo y aluminio en muestras biológicas, presentado en la siguiente sección de esta Tesis.



5.2. Determinación de aluminio y fósforo en materiales biológicos por análisis por activación neutrónica empleando germanio como comparador y monitor integral de flujo.

5.2.1. Introducción

Con esta aplicación concreta se probó experimentalmente la potencialidad del empleo de germanio como comparador y monitor de flujos térmico, epitérmico y rápido en determinaciones analíticas por activación neutrónica utilizando métodos paramétricos, tal como fue planteado en la sección 5.1. Este trabajo fue presentado en la International Conference on Nuclear Analytical Techniques in the Life Sciences.(Praga, República Checa, 13 al 17 de septiembre de 1993) y luego publicado en la revista Biological Trace Element Research [Furnari y Cohen, 1994b].

La metodología así desarrollada viene a nutrir los no muy frecuentes empleos del análisis por activación en determinaciones realizadas de manera práctica y sencilla, en tiempos cortos, obteniendo resultados confiables con suficiente sensibilidad y especificidad

En general, cuando se busca este tipo de características, se emplean métodos instrumentales paramétricos, utilizando por ejemplo oro y cobalto como monitores de flujos térmico y epitérmico; y zirconio u otro similar como comparador. El empleo de germanio como único material para esos fines simultáneamente, plantea una mejora metodológica evidente, tal como se explicó en la sección 5.1. Adicionalmente, el germanio se puede emplear como monitor y comparador en el caso de utilizar reacciones umbral con fines analíticos, como el caso que ahora nos ocupa.

Recordando lo expuesto, el germanio muestra características ventajosas para su empleo en el análisis de materiales biológicos, puesto que:

- a) La relación integral de resonancia / sección eficaz de la reacción $^{74}\text{Ge}(n,\gamma)^{75}\text{Ge}$ es muy cercana a la de varias reacciones de activación de elementos habitualmente encontrados en muestras biológicas, como Na, Mg, Al, Cl, K; Ca y Mn, que generan radionucleidos de periodo corto, resultando así el ^{75}Ge un excelente comparador para dichos elementos.
- b) En concordancia con lo anterior, los periodos de semidesintegración del ^{75}Ge , del ^{77}Ge y del ^{72}Ga , de 1,38 h; 11,3 h y 14,1 h, respectivamente, hacen de las reacciones que dan origen a estos radionucleidos buenos monitores de flujo térmico y epitérmico en irradiaciones cortas o intermedias.
- c) Con respecto a la determinación de los flujos térmico y epitérmico, como ya se mencionó en 5.1.3, la diferencia entre las relaciones integral de resonancia / sección eficaz, que actúa como factor crítico en la incertidumbre, es, para el par $^{75}\text{Ge} - ^{77}\text{Ge}$ (13,8 - 1,68) similar a la propia del par frecuentemente utilizado $^{198}\text{Au} - ^{60}\text{Co}$ (15,71 - 1,993).

La determinación aquí desarrollada se basa en la irradiación de las muestras y del germanio bajo un filtro neutrónico de cadmio y sin él, con el fin de privilegiar la inducción de las

reacciones umbral correspondientes en el primer caso y sumar a ellas las reacciones de captura radiante en el segundo.

Con la irradiación bajo cadmio se logra maximizar las reacciones $^{31}\text{P}(n,\alpha)^{28}\text{Al}$ y $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$ en las muestras y en el germanio respectivamente, con respecto a las contribuciones de las reacciones de captura radiante sobre ambos. En la irradiación sin emplear filtro de cadmio predominan las reacciones de captura $^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$ en las muestras, y $^{74}\text{Ge}(n,\gamma)^{75}\text{Ge}$ y $^{76}\text{Ge}(n,\gamma)^{77}\text{Ge}$ en el germanio.

Dado que se genera ^{28}Al como único producto de activación emisor gamma de los analitos en estudio, se planteó una metodología de cálculo basada en la resolución de dos ecuaciones con dos incógnitas para establecer las contribuciones del fósforo y del aluminio en las actividades obtenidas de ^{28}Al en las dos condiciones de irradiación.

Otro aspecto que se evaluó detenidamente se refiere a la necesidad de contar con las constantes nucleares y atómicas correspondientes para efectuar los cálculos analíticos, con precisión y exactitud suficientes para garantizar la calidad de los mismos. Así, se han buscado y evaluado las secciones eficaces; las integrales de resonancia y las constantes k_0 de las reacciones consideradas; los periodos de semidesintegración y las intensidades de los rayos gamma de los radionucleidos formados; las abundancias isotópicas de los nucleidos precursores y las masas atómicas relativas de los elementos involucrados.

Vinculado con esto, se cumplen aquí las expectativas planteadas en las distintas secciones del capítulo 5 acerca de la posibilidad de empleo de las constantes nucleares determinadas en esta Tesis en aplicaciones analíticas, puesto que no en todos los casos los valores encontrados en la literatura cumplen con los requisitos de exactitud y precisión adecuados para esta aplicación. Al respecto, se utilizó la sección eficaz de la reacción $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$ cuya determinación se expuso en la sección 4.3; y se debió determinar, especialmente para este trabajo, la sección eficaz de la reacción $^{31}\text{P}(n,\alpha)^{28}\text{Al}$, tal como se explica en la sección siguiente, 5.3, constituyendo esta última determinación una contribución más acreditada en esta Tesis.

En ausencia de valores recomendados de las constantes k_0 del germanio al momento de desarrollar este método, empleamos los que publicaron De Corte y colaboradores en 1993, con la intención de demostrar su viabilidad. Cabe mencionar que nuestra determinación de los factores k_0 del germanio, expuesta en la sección 4.5, fue posterior a la aplicación descrita en la presente sección.

Las muestras analizadas fueron dos materiales de referencia certificados, con el fin de validar la metodología propuesta. La elección de los materiales se hizo sobre la base de un contenido adecuado de los dos elementos de interés, así, se emplearon col rizada en polvo Bowen's Kale [IAEA, 1990] e hígado bovino desecado y pulverizado Bovine Liver SMR 1577a [NBS, 1985]. Los resultados obtenidos acuerdan bien con los valores certificados de las concentraciones de fósforo y aluminio, tal como se mostrará más adelante.

5.2.2. Realización experimental

Las determinaciones se efectuaron empleando la facilidad neumática del RA-6 del Centro Atómico Bariloche, con la cual se irradiaron muestras de 100 a 200 mg de los materiales mencionados, junto a láminas de germanio de unos 200 mg, preparadas como fue usual en todas las irradiaciones realizadas para esta Tesis.

Como se adelantó, se prepararon pares de irradiaciones secuenciales con y sin cubierta de cadmio de 1 mm de espesor.

El tiempo de irradiación se fijó en 180 segundos, y la posición de irradiación empleada del RA-6 se caracterizaba por los siguientes valores de flujos neutrónicos:

$$\begin{aligned} \text{Flujo de neutrones térmicos} &= 4.10^{12} \text{ s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2} \\ \text{Flujo de neutrones epitérmicos} &= 8.10^{10} \text{ s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}; \\ \text{Flujo de neutrones rápidos} &= 7.10^{11} \text{ s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}; \end{aligned}$$

Las mediciones se realizaron con el sistema de espectrometría gamma de alta resolución que se mencionó en otras secciones de esta Tesis. Para las muestras, se adoptó un esquema de 40 a 50 s de decaimiento y 300 s de medición, determinando el área del pico de 1778,9 keV del ^{28}Al . En el caso del germanio, luego de tiempos de decaimiento de unos 6 a 7 minutos, se midió 30 minutos para determinar las áreas de los picos de los radioisótopos ^{75}Ge y ^{77}Ge empleados como monitores de flujo y comparadores. Luego de esto, se esperaron algunas horas para dejar decaer al ^{75}Ge , y se realizó una medición de 3 a 5 horas para medir al ^{72}Ga y nuevamente al ^{77}Ge . En la tabla 5.6 se consignan los períodos de semidesintegración de los radioisótopos mencionados; energías e intensidades de las emisiones gamma consideradas.

Tabla 5.6: Radionucleidos utilizados; energías e intensidades de sus emisiones gamma

Radionucleido	$T_{1/2}^{[1]}$	E_γ (keV)	i (%)
^{28}Al	2,246(2) m	1778,9	100
^{72}Ga	14,10(2) h	834,1	95,63
		2201,7	25,90
^{75}Ge	82,78(4) m	198,6	1,19
^{77}Ge	11,30(1) h	211,0 ^[2]	33,1 ^[2]
		215,5	28,6
		367,4	14,0
		416,3	21,8
		558,0	16,1

^[1] [Tuli, 1990]

^[2] [Farhan y Singh, 1989]

Todas las áreas de los picos gamma de las mediciones realizadas a partir del germanio fueron corregidas por autoabsorción en los materiales irradiados, según las fórmulas usuales y

datos de tabla extraídos de Debertin y Helmer [Ídem, 1988, pág. 342]. Acerca de las muestras, puesto que son materiales de pequeños espesores y bajos números atómicos y densidades, se realizó una estimación de los factores de corrección para las energías más bajas, llegando a la conclusión que las correcciones eran despreciables.

5.2.3. Tratamiento de datos

Como ya se explicó, las actividades del ^{28}Al en las irradiaciones son el resultado de la activación del fósforo y del aluminio, según las condiciones de irradiación, por lo que se planteó el par de ecuaciones que se expresa seguidamente.

La ecuación 5.8 está referida a la actividad de ^{28}Al formada por irradiación con el filtro neutrónico de cadmio, en la que ocurren sólo las reacciones umbral (n, α) sobre el ^{31}P (único isótopo estable del elemento fósforo); y la (n,p) sobre el ^{72}Ge (otras reacciones umbral sobre el resto de los isótopos estables del germanio no participan en la formación de ^{28}Al). La última reacción se emplea como monitor de flujo rápido. Por su parte, la ecuación 5.8 responde a la irradiación sin el filtro de Cd, en la que se suman a las anteriores las reacciones (n, γ) sobre el aluminio y el germanio y se emplean las reacciones sobre el germanio como monitores integrales de flujo.

$$\frac{Csp_{(Al-28)}}{[S D M^{-1}]_{(Al-28)}} = \frac{Csp_{(Ga-72)}}{[S D M^{-1}]_{(Ga-72)}} \cdot \frac{[\sigma_{(n,\alpha)} \theta]_{(P-31)}}{[\sigma_{(n,p)} \theta]_{(Ge-72)}} \cdot \frac{[i \varepsilon]_{(Al-28)}}{[i \varepsilon]_{(Ga-72)}} \cdot \frac{W_{(P)}}{W_{(Ge)}} \cdot [P] \quad (\text{ec. 5.8})$$

$$\begin{aligned} \frac{Csp_{(Al-28)}}{[S D M^{-1}]_{(Al-28)}} &= \frac{Csp_{(Ge-75)}}{[S D M^{-1}]_{(Ge-75)}} \cdot \frac{[k_0 \varepsilon]_{(Al-28)}}{[k_0 \varepsilon]_{(Ge-75)}} \cdot \frac{f + Q_{(\alpha)(Al-28)}}{f + Q_{(\alpha)(Ge-75)}} \cdot [Al] + \\ &+ \frac{Csp_{(Ga-72)}}{[S D M^{-1}]_{(Ga-72)}} \cdot \frac{[\sigma_{(n,\alpha)} \theta]_{(P-31)}}{[\sigma_{(n,p)} \theta]_{(Ge-72)}} \cdot \frac{[i \varepsilon]_{(Al-28)}}{[i \varepsilon]_{(Ga-72)}} \cdot \frac{W_{(P)}}{W_{(Ge)}} \cdot [P] \end{aligned} \quad (\text{ec. 5.9})$$

Donde:

Los subíndices con los nucleidos indican que las cantidades que los preceden corresponden a dicho nucleido.

Csp : Conteo específico (conteo/masa de material irradiado; observar que es distinto del definido en la ec 3.17)

$S = 1 - e^{-\lambda \cdot t_i}$ Factor de saturación; t_i : tiempo de irradiación

$D = e^{-\lambda \cdot t_d}$ Factor de decaimiento; t_d : tiempo de decaimiento desde el fin de la irradiación hasta el comienzo de la medición.

$M = \frac{\lambda t_m}{1 - e^{-\lambda t_m}}$ Factor de corrección por decaimiento durante el tiempo de medición t_m .

W : Peso atómico (Masa atómica relativa) del elemento correspondiente

σ : Sección eficaz de la reacción indicada.

θ : Abundancia isotópica de nucleido consignado.

5. Aplicaciones analíticas del germanio y de sus constantes nucleares

- k_0 : Factor k_0 del nucleido, reacción, producto y energía considerados, según la definición de Simonits y De Corte, 1975.
 i : Intensidad de la emisión gamma medida.
 ε : Eficiencia de detección para la emisión gamma medida.
 f : Relación de flujos subcádmico / epicádmico

La relación de flujos f fue calculada según:

$$f = \frac{\frac{Csp_{(Ge-75)}}{[SDM^{-1}]_{(Ge-75)}} \cdot [k_0 \varepsilon Q_{(\alpha)}]_{(Ge-77)} - \frac{Csp_{(Ge-77)}}{[SDM^{-1}]_{(Ge-77)}} \cdot [k_0 \varepsilon Q_{(\alpha)}]_{(Ge-75)}}{Csp_{(Ge-77)} \cdot [k_0 \varepsilon]_{(Ge-75)} - Csp_{(Ge-75)} \cdot [k_0 \varepsilon]_{(Ge-77)}} \quad (\text{ec. 5.10})$$

- $Q_{(\alpha)}$: Cociente integral de resonancia / sección eficaz $Q_{(\alpha)} = \frac{I_{(\alpha)}}{\sigma}$; con $I_{(\alpha)}$: Integral de resonancia corregida por la influencia del factor α correspondiente a la posición de irradiación elegida del reactor.
 $[Al], [P]$: Concentraciones de los elementos aluminio y fósforo, expresadas en g/g

5.2.4. Resultados y conclusiones

De la resolución de las ecuaciones anteriores y del cálculo de las concentraciones, surgen los resultados consignados en la siguiente tabla:

Tabla 5.7: Comparación entre los valores determinados y los certificados

Material	Elemento	Concentraciones determinadas en esta Tesis	Concentraciones certificadas
Bowen's kale	Aluminio	(38,8 ± 2,1) (µg/g)	(39,9 ± 9,9) (µg/g)
	Fósforo	(0,415 ± 0,025) (%)	(0,448 ± 0,016) (%)
SMR 1577a, Bovine liver	Aluminio	(1,50 ± 0,30) (µg/g)	2 ^(*) (µg/g)
	Fósforo	(1,06 ± 0,13) (%)	(1,11 ± 0,04) (%)

(*) Este valor figura como "indicativo" en el certificado

Se observa un acuerdo razonable entre los valores determinados y los consignados en los certificados de los materiales, tomando en cuenta además que existen diferentes relaciones aluminio / fósforo en las muestras.

Se han evaluado algunos factores que pueden interferir en esta determinación. Al respecto, se ha considerado la reacción $^{28}\text{Si}(n,p)^{28}\text{Al}$ ($\sigma = 6,4 \pm 0,8$ mb [Calamand, 1974]), que podría aumentar la actividad medida de ^{28}Al si hubiese cantidades no despreciables de silicio en las muestras. Afortunadamente, el contenido de este elemento es muy bajo en materiales biológicos, como ocurre en este caso, pero se debería considerar al analizar otro tipo de

5. Aplicaciones analíticas del germanio y de sus constantes nucleares

muestras. De todas maneras, esta interferencia se podría controlar a través de la reacción $^{29}\text{Si}(n,p)^{29}\text{Al}$, midiendo la actividad del ^{29}Al eventualmente producido.

Tomando en cuenta, como ya se expuso, que la incertidumbre de los datos de tablas es bastante buena, la incertidumbre de los resultados depende principalmente de la precisión de las mediciones. En este sentido, la presencia de cantidades importantes de cloro y sodio podría perturbar las mediciones de los espectros obtenidos luego de la irradiación sin cadmio, a causa de las actividades inducidas por las reacciones $^{37}\text{Cl}(n,\gamma)^{38}\text{Cl}$ y $^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$, pero tampoco es el caso de las experiencias de esta Tesis, puesto que los materiales empleados poseen bajo contenido de estos elementos.

Con relación a la precisión de las mediciones, las bajas actividades de ^{72}Ga inducidas pueden dificultar su medición, sobre todo si se producen fondos altos causados por la presencia de otros radionucleidos y/o por altas relaciones de flujos térmicos a epitérmicos. En esos casos, la separación radioquímica desarrollada en esta Tesis (sección 4.2) puede ser aplicada para aumentar la sensibilidad y por ende la precisión de la determinación.

La posibilidad del uso del germanio como monitor integral de flujos neutrónicos y comparador en métodos paramétricos queda así demostrada. Esta metodología se puede extender a otros elementos que posean datos nucleares adecuados, como ya se explicó, por ejemplo calcio, cloro, magnesio, sodio, potasio y manganeso, la mayoría de ellos de gran importancia en muestras biológicas.

A manera de consideración final, puede mencionarse que la buena concordancia entre los conjuntos de factores k_0 publicados por De Corte y colaboradores en 1993 y los que determinamos posteriormente, incluidos en esta Tesis, es consistente con la validez del desarrollo de este método.



5.3. Determinación de la sección eficaz de captura de la reacción $^{31}\text{P}(n,\alpha)^{28}\text{Al}$, promediada sobre un espectro neutrónico de reactor

5.3.1. Introducción

Como se expuso en la sección anterior, se decidió determinar esta sección eficaz como consecuencia de la evaluación de los datos nucleares y atómicos de bibliografía a ser aplicados en la determinación simultánea de aluminio y fósforo en materiales biológicos empleando germanio como monitor de flujos y comparador.

Recordando lo expuesto en la sección 5.2, el fundamento de esta determinación simultánea es la posibilidad de medir la radiación gamma de 1778,7 keV emitido por el ^{28}Al generado a través de las reacciones $^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$ y $^{31}\text{P}(n,\alpha)^{28}\text{Al}$; la primera por captura radiante con neutrones térmicos y epitérmicos, y la segunda con neutrones predominantemente rápidos.

Puesto que el periodo de semidesintegración del ^{28}Al (2,24 min) es muy corto, no resulta factible utilizar el método clásico de análisis por activación neutrónica con patrones de comparación de los elementos citados, debiéndose realizar la determinación por cálculos basados en sus constantes nucleares, de aquí la necesidad de determinar con mayor precisión la sección eficaz motivo de estudio.

Los valores encontrados en la literatura para esta sección eficaz son $(1,9 \pm 0,6)$ mb [Calamand, 1974; Gryntakis, 1979], que surge de un promedio de dos determinaciones experimentales bastante discrepantes, previamente renormalizadas (2,29 y 1,44 mb). En vista de la alta incertidumbre, se decidió realizar una nueva determinación en el Centro Atómico Bariloche. Posteriormente tuvimos conocimiento de una determinación más [Pfrepper et al., 1976] cuyo valor es $(2,73 \pm 0,07)$ mb.

5.3.2. Irradiaciones, resultados y conclusiones

Cinco muestras de K_2HPO_4 de alta pureza, fueron irradiadas en una posición de flujo rápido del reactor RA-6 utilizando el sistema neumático. En esa posición el espectro neutrónico es similar al de un espectro de fisión, tal como había sido demostrado en experiencias previas.

Se irradiaron en forma conjunta con las muestras de K_2HPO_4 , monitores de níquel para la determinación del flujo rápido a través de la reacción $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$. El flujo rápido determinado fue de $7 \cdot 10^{11}$ n.cm⁻².s⁻¹

Respecto de las mediciones, la secuencia operativa fue:

- a) irradiación, (t_{irr} : 3 min)
- b) transferencia de las muestras a las cápsulas de medición (t_d : 1 a 1,5 min)
- c) medición (t_m : 5 min) con sistema de espectrometría gamma de alta resolución.

Para prácticamente eliminar la presencia de productos de la activación generados por neutrones térmicos en la medición del ^{28}Al , las irradiaciones se realizaron con muestras y patrones dentro de una cápsula de cadmio de 1 mm de espesor como la descrita en la sección

5. Aplicaciones analíticas del germanio y de sus constantes nucleares

4.1.3 (Fig. 4.4). Se estudió en forma específica la eventual presencia de aluminio en las muestras de K_2HPO_4 , puesto que hubieran interferido directamente en la determinación, al producir ^{28}Al por reacción n,γ . Para tal fin, se realizó una experiencia de irradiación con muestras sin cobertura de cadmio, en un flujo predominantemente térmico (en la columna térmica del reactor).

Se demostró de esta forma que la presencia de aluminio puede llegar a introducir un error estimado en un máximo de 0,05% .

Como en las otras determinaciones realizadas en el Centro Atómico Bariloche, los espectros fueron analizados empleando el software Nuclear Data VAX/VMS y los valores de conteo de cada pico gamma considerado fueron convertidos a actividades a través de curvas de eficiencia previamente determinadas por medición de patrones certificados.

Para el cálculo de la incertidumbre se tomaron en cuenta la dispersión estadística de las determinaciones individuales; los errores de la curva de eficiencia, los errores de pesada (casi despreciables) y las incertidumbres de las constantes nucleares involucradas: sección eficaz de la reacción estándar, masas atómicas relativas, abundancia isotópica del ^{58}Ni e intensidad del rayo gamma de 810,8 keV del ^{58}Co . Las abundancias isotópicas del ^{31}P y del ^{28}Al son 100%, (el fósforo y el aluminio son elementos monoisotópicos). La intensidad del pico de 1778,9 keV del ^{28}Al es también 100%. En estos tres casos no se computó incertidumbre alguna.

Los valores de las constantes fueron tomados de diferentes fuentes [Calamand, 1974; Sher, 1974; Mughabghab et al., 1981] vigentes en la actualidad [Mughabghab, 2003]:

Tabla 5.8: Secciones eficaces de las reacciones de referencia

Reacción	σ
$^{27}Al(n,\gamma)^{28}Al$	0.231 ± 0.003 b
$^{58}Ni(n,p)^{58}Co$	113 ± 7 mb

Tabla 5.9: Valores de constantes empleadas en los cálculos

Radionucleido	$T_{1/2}$	E_γ (keV)	i (%)
^{28}Al	$(2,246 \pm 0,002)$ m	1778,9	100
^{58}Co	$(70,82 \pm 0,03)$ d	810,8	$99,44 \pm 0,02$

El resultado de las determinaciones, promedio de cinco mediciones independientes, fue **(1,652 ± 0,071) mb**, cercano a los valores publicados. Los trabajos de esta sección de la Tesis fueron presentados en un congreso nacional [Cohen, Furnari et. al., 1993].

Cuando esta sección eficaz se utilizó en el cálculo de la concentración de fósforo determinada en dos materiales de referencia (sección 5.2), los resultados de tales análisis

5. Aplicaciones analíticas del germanio y de sus constantes nucleares

mostraron muy buen acuerdo con los valores certificados, lo que confirma la exactitud de su valor (ver tabla 5.7).



5.4. Nuevo método para la determinación de los factores f y α

5.4.1. Desarrollo teórico

Esta parte de la Tesis, ya adelantada en la sección 3.7, fue desarrollada como resultado de la experiencia acumulada en la determinación experimental de los parámetros f y α en el reactor RA-6 del Centro Atómico Bariloche, que generó además un trabajo presentado en un taller regional y en un congreso internacional [Cohen, Furnari et al., 1995 y 1996b], a raíz de una colaboración con investigadores del reactor RP-10, del Centro Nuclear “Oscar Miró Quesada de la Guerra (Racso)” ex Huarangal, del Instituto Peruano de Energía Nuclear.

Tal como se presentó, este método viene a simplificar la diversidad de métodos encontrados en la literatura, alcanzando valores de exactitud y precisión similares a las de estos. Surge entonces un método para la determinación simultánea de f y α , basado en la irradiación de pares de monitores (o monitores bi-isotópicos), sin necesidad de irradiar bajo cadmio. El fundamento es el siguiente:

Utilizando las ecuaciones 3.34 y 3.35,

$$f(\alpha) = \frac{\frac{C_{sp,2}}{k_{0,2} \cdot \epsilon_2} Q_{0,1}(\alpha) - \frac{C_{sp,1}}{k_{0,1} \cdot \epsilon_1} Q_{0,2}(\alpha)}{\frac{C_{sp,1}}{k_{0,1} \cdot \epsilon_1} - \frac{C_{sp,2}}{k_{0,2} \cdot \epsilon_2}} \quad (\text{ver ec. 3.35})$$

con

$$Q_0(\alpha) = \left[\frac{Q_0 - 0,429}{(\bar{E}_r)^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right] \quad (\text{ver ec. 3.34})$$

y contando con los valores experimentales de relaciones de flujos Q_0 y los conteos específicos C_{esp} de dos monitores 1 y 2, es posible asignar diferentes valores numéricos al factor α , y graficar así una curva de $f(\alpha)$ en función de α . Acto seguido se realiza otra curva equivalente con un par de monitores 3 y 4.

Resulta evidente que la ecuación 3.35 tiene una solución única de f y α , que corresponde en este caso a la intersección de ambas curvas, arribando así a la determinación simultánea de ambos factores.

Las ventajas comparativas de este método pueden resumirse en que no es necesaria la irradiación de monitores bajo cadmio, evitando así problemas operativos vinculados a este tipo de irradiaciones y la depresión de flujo producida por este elemento en las vecindades de la cápsula de irradiación. Además, por tratarse de un método gráfico, permite la observación directa de las pendientes de las curvas involucradas y, en consecuencia, la elección de los pares de monitores más adecuados.

Al utilizar más de dos pares de monitores, se debería producir el cruce en el mismo punto, mejorando la exactitud de los resultados. En rigor, y tomando en cuenta las incertidumbres

5. Aplicaciones analíticas del germanio y de sus constantes nucleares

experimentales, se genera una zona de cruces que define intervalos de confianza para los valores obtenidos.

El método combina sencillez, rapidez y elegancia con adecuadas exactitud y precisión de los parámetros f y α obtenidos, similares como se mencionó, a las de otros métodos.

5.4.2. Irradiaciones y resultados

Experimentalmente se ha demostrado el método en el reactor RA-6, del Centro Atómico Bariloche y en el reactor RP-10, del Centro Nuclear Racsó, del Perú.

En las experiencias realizadas en el RA-6, hemos irradiado monitores de Au, Sc y Zr para una experiencia, y luego Au, Sc, Sn, Mo y Ge para otra experiencia, obteniendo los radioisótopos cuyos datos principales se consignan en la tabla 5.10.

Para ambas experiencias en el RA-6 se han irradiado pequeños especímenes de los monitores mencionados de masas comprendidas entre 1 y 5 mg en la posición D8 (termalizada) del reactor, por tiempos de 2 a 10 min, midiendo luego durante 1 a 2 hs. cada muestra en el detector mencionado en la sección 4.3.4.

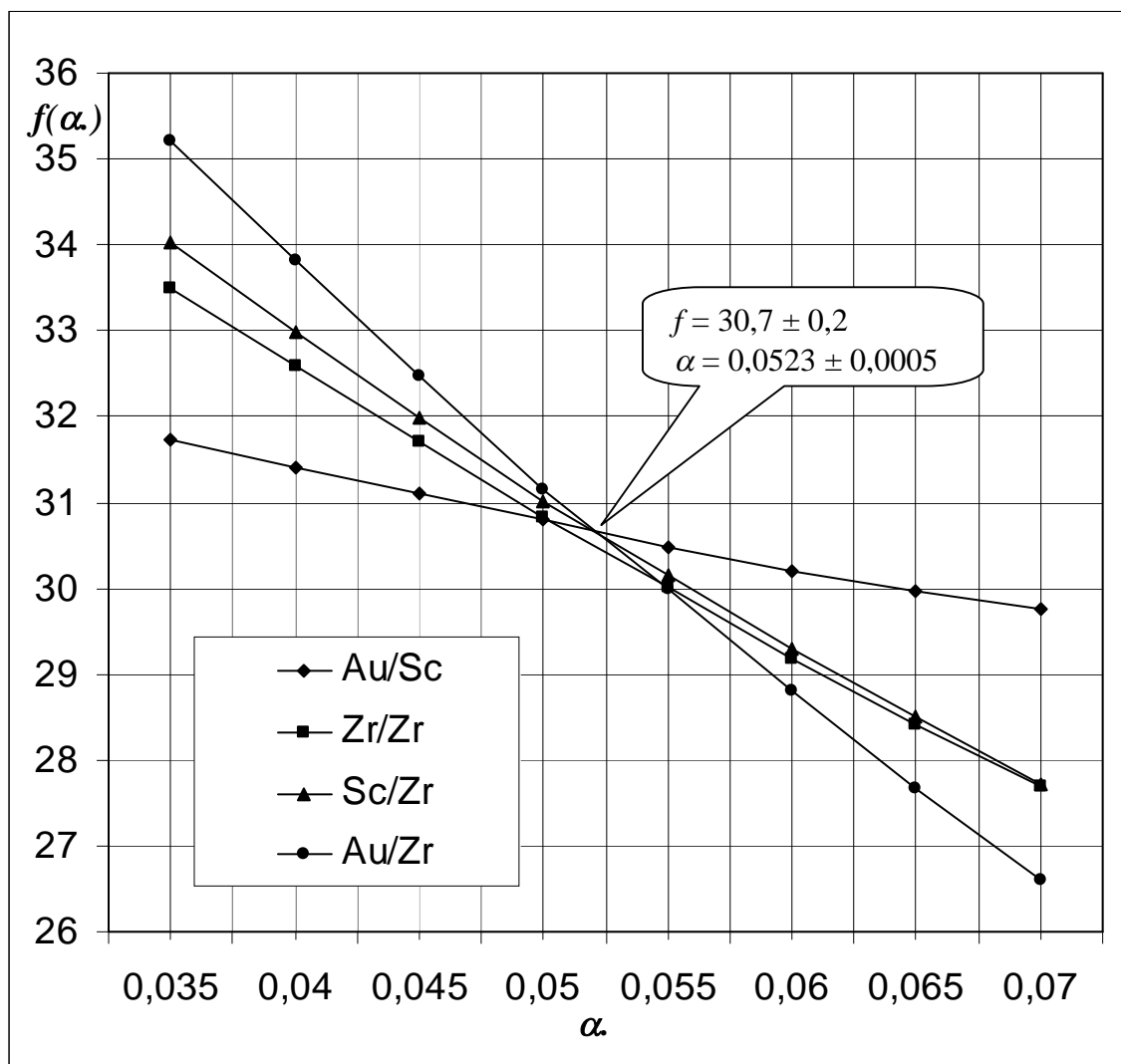
Para los cálculos, se han elegido los pares convenientes de manera tal de maximizar la diferencia de la relación Q_0 respecto del factor α , buscando obtener los dos parámetros con la mejor exactitud y precisión. Como se observa en la tabla 5.10, los pares elegidos poseen diferencia significativas entre sus Q_0 's.

Tabla 5.10: Datos de los monitores empleados en el reactor RA-6

Elemento	Reacción nuclear	$T_{1/2}$ del producto	Q_0
Au	$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	2,69517 d	15,71
Sc	$^{45}\text{Sc}(n,\gamma)^{46}\text{Sc}$	83,82 d	0,43
Zr	$^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr}$	64,02 d	5,05
	$^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97}\text{Zr}$	16,90 h	248
Sn	$^{122}\text{Sn}(n,\gamma)^{123\text{m}}\text{Sn}$	40,06 m	5,41
	$^{124}\text{Sn}(n,\gamma)^{125\text{m}}\text{Sn}$	9,52 m	60,1
Mo	$^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$	65,94 h	53,1
	$^{100}\text{Mo}(n,\gamma)^{101}\text{Mo}$	14,61 m	18,84
Ge	$^{74}\text{Ge}(n,\gamma)^{75}\text{Ge}$	82,78 m	1,68
	$^{76}\text{Ge}(n,\gamma)^{77}\text{Ge}$	11,30 h	13,8

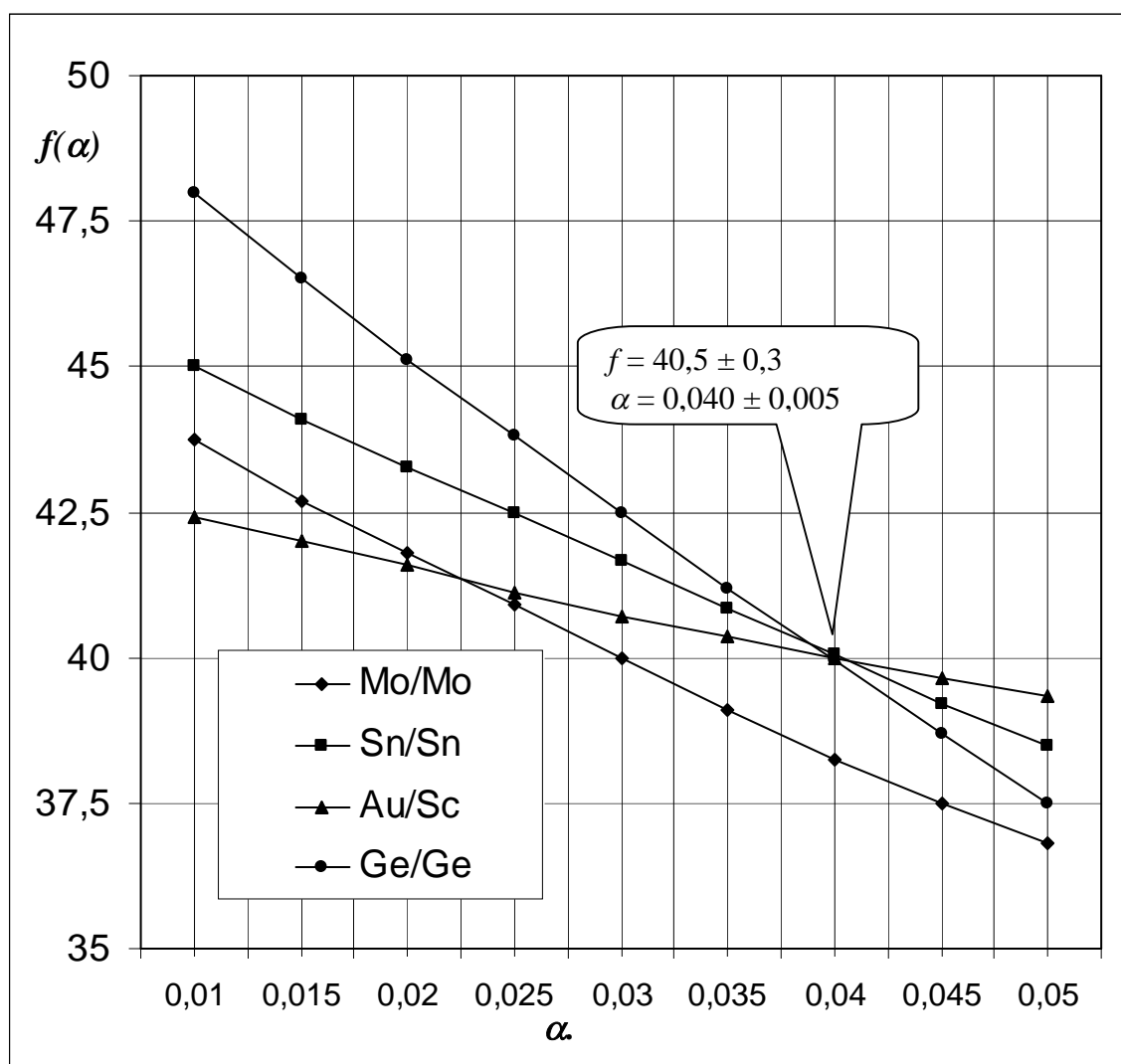
En la figura 5.11 se muestran los resultados obtenidos en el reactor RA-6 con el preciso cruce entre tres de las cuatro curvas graficadas, correspondientes a los pares ^{198}Au - ^{46}Sc ; ^{46}Sc - ^{97}Zr y ^{198}Au - ^{97}Zr . Dicho cruce establece los valores de $f = 30,7 \pm 0,2$ y $\alpha = 0,0523 \pm 0,0005$. Las incertidumbres consignadas surgen de los errores de las mediciones. La curva correspondiente al par ^{95}Zr - ^{97}Zr resultó desplazada y decidimos descartarla.

Figura 5.11: Gráfico de $f(\alpha)$ vs. α para 4 pares de isótopos de Au, Zr y Sc, en el reactor RA-6



En la segunda experiencia, además de emplear otros monitores como el Sn y el Mo, se incorporó germanio como un nuevo monitor, para probar las bondades de nuestro material de estudio en esta aplicación. Los resultados se muestran en la figura 5.12

Figura 5.12: Gráfico de $f(\alpha)$ vs. α para 4 pares de isótopos de Au, Sc, Mo, Sn y Ge en el reactor RA-6



En este caso también se produce un cruce preciso entre tres de las cuatro curvas graficadas, constituidas por los pares $^{75}\text{Ge}-^{77}\text{Ge}$; $^{123\text{m}}\text{Sn}-^{125\text{m}}\text{Sn}$ y $^{198}\text{Au}-^{46}\text{Sc}$, estableciendo los valores de $f = 40,5 \pm 0,3$ y $\alpha = 0,040 \pm 0,005$, luego de realizar los cálculos correspondientes. Se descartó la curva del par $^{99}\text{Mo}-^{101}\text{Mo}$.

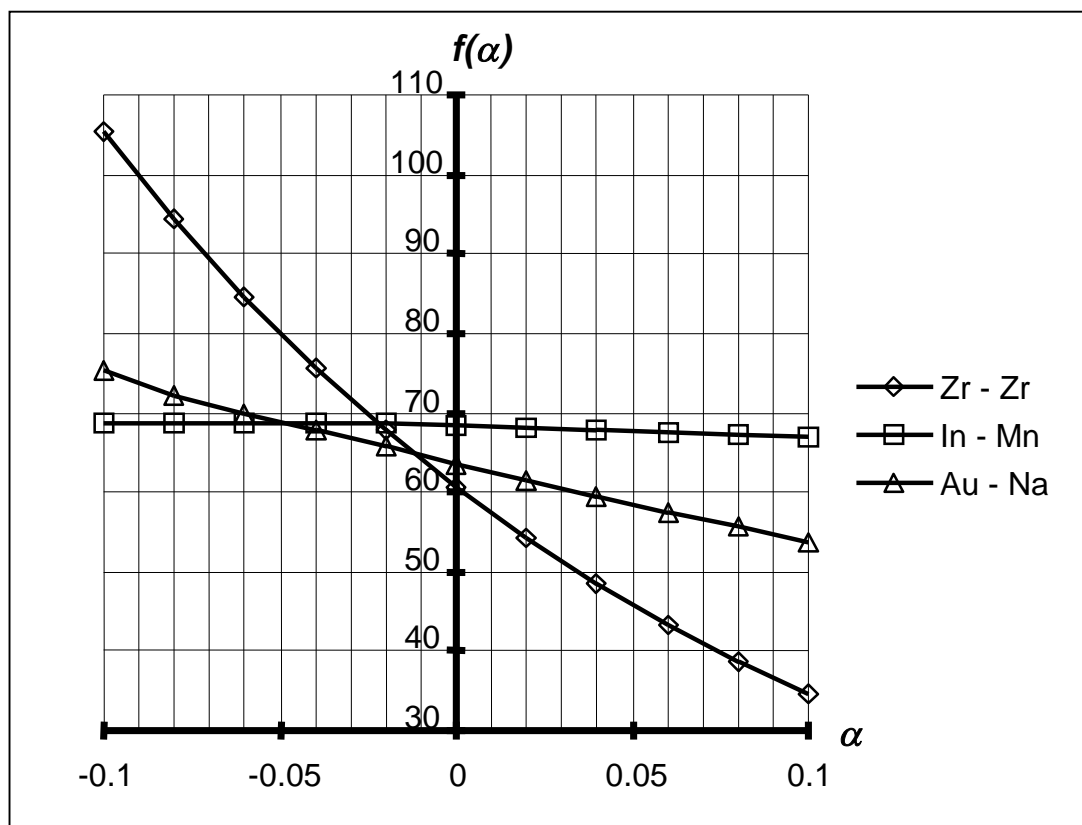
Un análisis más refinado del tratamiento de datos podría incluir a todos los pares de monitores sin descartar ninguna curva, realizando por ejemplo un promedio ponderado asignando más peso a los cruces múltiples.

En el caso de Perú, los investigadores Montoya, Torres y Mendoza irradiaron monitores de In, Mn, Zr y Na (Na_2SO_4), cuyos datos se consignan en la tabla 5.11, con masas y tiempos similares a los de las experiencias del RA-6. Se eligieron los pares $^{116\text{m}}\text{In}-^{56}\text{Mn}$, $^{95}\text{Zr}-^{97}\text{Zr}$ y $^{198}\text{Au}-^{24}\text{Na}$.

Tabla 5.11: Datos de los monitores empleados en el reactor RP-10

Elemento	Reacción nuclear	$T_{1/2}$ del producto	Q_0
In	$^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116\text{m}}\text{In}$	54,29 m	16,8
Mn	$^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$	2,58 h	1,053
Zr	$^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr}$	64,02 d	5,05
	$^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97}\text{Zr}$	16,90 h	248
Na	$^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$	14,96 h	0,59

La figura 5.13 muestra los gráficos obtenidos en las experiencias realizadas en el reactor nuclear RP-10. Es interesante observar que la pendiente de la curva de $f(\alpha)$ para el par ^{95}Zr - ^{97}Zr es mucho mayor que para el par ^{116}In - ^{56}Mn , es decir, para el primer par, $f(\alpha)$ es fuertemente dependiente del valor de α , y para el segundo, el mismo factor resulta casi independiente de α .

Figura 5.13: Gráficos de $f(\alpha)$ vs. α para tres pares de monitores, reactor RP-10, Perú

Con el cruce entre las curvas Zr-Zr e In-Mn se obtienen valores de $f = 69$ y $\alpha = -0.02$. El cruce de las curvas Zr-Zr y Au-Na da valores de $f = 65$ y $\alpha = -0.013$. Finalmente el cruce entre las curvas Au-Na e In-Mn es muy inseguro, por la pequeña diferencia relativa de sus pendientes, y se decidió descartar. Utilizando los valores promedio de estas cantidades se

adoptaron los valores de $f = 67 \pm 2$ y $\alpha = -0,016 \pm 0,004$. Las incertidumbres de tales valores son totalmente aceptables para el caso del análisis por activación según el método del k_0 .

5.4.3. Conclusiones

Las bondades del método se evidencian cuando se eligen pares de monitores que muestren comportamientos bien diferentes en cuanto a la dependencia de $f(\alpha)$ vs. α , por cuanto el o los cruces resultan bien definidos, con baja incertidumbre. Si las pendientes son similares, pequeñas desviaciones pueden desplazar fuertemente el punto de cruce, como en el caso de los pares Zr/Zr y Sc/Zr de la figura 5.11.

Respecto de esto último, y puesto que el germanio mostró una fuerte dependencia de f respecto de α , si se combina con otros monitores de menor dependencia, las zonas de cruce estarán bien definidas, con baja incertidumbre. En este sentido, los pares ^{75}Ge - ^{77}Ge y ^{198}Au - ^{97}Zr poseen las mayores pendientes de $f(\alpha)$. Esto, sumado a que el par de isótopos está presente obviamente en un solo material a irradiar, constituye al germanio en un excelente material para esta aplicación.

Utilizando monitores con masas conocidas con buena exactitud y detectores cuidadosamente calibrados en eficiencia, la diferente posición de los puntos de cruce podría reflejar inconsistencias sistemáticas entre los valores de las constantes nucleares de los isótopos utilizados, por ejemplo, en el caso del par $^{99}\text{Mo}/^{101}\text{Mo}$.

Finalmente, es de destacar que la metodología de emplear intersecciones entre representaciones gráficas de $f(\alpha)$ vs. α ya fue adoptada por otros investigadores que citan nuestro trabajo [Koster-Ammerlaan et al., 2008], mostrando no solamente su practicidad y elegancia, sino su precisión. En este caso, los autores han probado otra manera de tratar los datos del cruce, a través del procesamiento del área circunscripta entre las líneas en esa zona.



Tercera parte

Datos Nucleares

6. Evaluación y manejo de datos nucleares

6.1. Consideraciones generales sobre los datos de tabla

Como ya se adelantó en la introducción general de la Tesis, se ha cuidado una serie de detalles acerca de los datos de tabla empleados, puesto que la calidad de estos influye en forma directa y sustantiva en la calidad de los resultados. Esto se torna crucial especialmente cuando estos resultados contribuyen a la generación de nuevos datos de tabla.

Es bien sabido que los buenos investigadores dedican un gran esfuerzo en extremar los cuidados en las condiciones experimentales de sus prácticas, que pueden desembocar incluso en una detallada validación de la metodología. Todo esto implica costos y tiempos, por ejemplo, verificación de la calibración de los equipos de medición; verificación de la trazabilidad de los patrones de medida empleados; control de la humedad y estabilidad de la temperatura ambiente durante ciertas determinaciones como las pesadas; repetición de lecturas o de procedimientos completos en algunas mediciones; ensayos de linealidad, exactitud, precisión, repetitividad y fortaleza de los procedimientos; revisión de las transcripciones de datos y de los cálculos; incluso verificación de la correcta conexión y descarga a tierra de los instrumentos de medición, etcétera.

Acto seguido efectúa los cálculos correspondientes, para lo cual casi indefectiblemente emplea algún dato extraído de una tabla. Es obvio que el resultado final estará afectado al menos por la incertidumbre del o los datos de tabla. Tal inversión de tiempo en extremar los cuidados experimentales, realizada con la única intención de obtener resultados más exactos y precisos, se puede malgastar totalmente si los datos extraídos de tablas no poseen una calidad acorde con aquellas condiciones experimentales que el científico se empeñó en alcanzar, es decir, pueden poseer una incertidumbre mal evaluada o, lo que es peor, no ser exactos.

En reconocida literatura científica se han detectado demasiados errores, malas evaluaciones o, por lo menos, datos con insuficiente calidad en cuanto a su consistencia, la metodología de su determinación o la expresión de su incertidumbre, amén de los conocidos casos de discrepancias que hacen dudoso sino inválido el empleo de dichos valores.

En esta Tesis y en los trabajos publicados que han surgido de ella se ha pretendido cuidar en forma extrema la obtención, evaluación y finalmente el empleo de los datos de tabla, a fin de garantizar la calidad y la trazabilidad de los resultados, y por ende salvaguardar el trabajo mismo realizado.

Consideramos este capítulo parte fundamental de esta Tesis y, como tal, hemos publicado y presentado en congresos varios trabajos relacionados con este tema, tendientes a advertir al usuario de datos de tablas y ofrecer criterios adecuados para la publicación de nuevos datos, su evaluación y compilación posterior [Cohen y Furnari, 1994; 1995; 1999; Cohen, Fornaciari Ijadica y Furnari, 2010; Furnari y Cohen, 1994c; 1995a; 1995b; 1998 y 2005].

En este contexto, hemos desarrollado, propuesto y publicado una serie de reglas para un considerado correcto manejo de los datos de tablas, considerando las etapas de determinación, evaluación, publicación, compilación y renormalización. Se han considerado varios aspectos primordiales que apuntan a una *gestión de la calidad de los datos* de excelencia. Así, existen indicadores clásicos, como la exactitud y precisión de los datos individuales y la consistencia de las bases de datos, y además se han desarrollado nuevos conceptos como la trazabilidad de los datos de tablas, mostrando la repercusión que estos desarrollos han tenido en la comunidad científica.

6.2. Análisis de selección de datos nucleares

6.2.1. Introducción

Someramente, el principio de los métodos paramétricos de análisis por activación (incluyendo al ya establecido método del k_0) se basa en la relación primaria entre la velocidad de conteo de un radionucleido vinculado al analito, producido por irradiación y la del nucleido (en general diferente) que actúa como comparador; esto se establece a través de parámetros experimentales y otras constantes usualmente no determinadas por el analista.

A los fines de las determinaciones multielementales, es razonable esperar que la elección del valor de las constantes provenga de tablas específicas, puesto que la búsqueda y la evaluación de los datos originales, además de ser una labor tediosa y complicada, no debería ser parte de las tareas del analista.

Se ha visto precisamente en esta Tesis que cuando la técnica analítica se realiza empleando reactores nucleares, son parámetros experimentales los tiempos de irradiación, medición y decaimiento, la propia velocidad de conteo, la eficiencia del detector y los flujos térmico y epitérmico del reactor (derivados a su vez de mediciones y cálculos en los que se emplean constantes de tablas). El análisis completo debería incluir la determinación de la componente rápida del espectro neutrónico. Son datos de tablas el periodo de semidesintegración del radionucleido y la energía efectiva de resonancia. Dependiendo del método utilizado, lo son también la masa atómica relativa del elemento y la abundancia isotópica del precursor, las secciones eficaces e integrales de resonancia, las intensidades de las radiaciones medidas o bien el k_0 y la relación integral de resonancia / sección eficaz. Se agregan factores de corrección, en general de menor importancia en el cálculo final. En forma común a todos los métodos, cuando existen interferencias o determinaciones por reacciones umbral, es necesario conocer las correspondientes secciones eficaces promediadas sobre un espectro de fisión.

Esta sección, cuyo contenido ha sido presentado en un congreso y también publicado [Cohen y Furnari, 1995a y 1999], tiene por objeto reseñar críticamente los problemas involucrados en la selección de constantes nucleares para su aplicación en el análisis por activación paramétrico, y proponer vías posibles para su solución. La presentación de los ejemplos que serán discutidos obedece en forma exclusiva a la necesidad de ilustrar adecuadamente tales dificultades, y advertir al usuario acerca de ellas. No constituye, en ese sentido, intento alguno de desacreditar la labor de otros investigadores.

6.2.2. Compilaciones de datos nucleares

En forma estricta, tanto las masas atómicas relativas como las abundancias isotópicas son datos atómicos asociados a las constantes verdaderamente nucleares. Al respecto, las tablas disponibles no presentan mayores discrepancias o inconsistencias puesto que reciben un tratamiento unificado por IUPAC (véase, por ejemplo, IUPAC, 1991 y 1994) y son aceptadas por consenso internacionalmente. No obstante, pueden formularse algunas objeciones en relación con los criterios adoptados para el tratamiento de los datos experimentales de abundancias isotópicas y en consecuencia de sus valores recomendados y sus incertidumbres [Furnari y Cohen, 1995b].

El conocimiento del valor de algunas constantes nucleares puede considerarse en excelente estado. Tales son los casos, en forma general, de los periodos de semidesintegración de los radionucleidos y de las intensidades de emisión de rayos X y gamma. Las energías efectivas de resonancia, calculadas a través de los parámetros característicos, se pueden considerar aceptablemente determinadas a los fines prácticos.

Por su lado, desde la propuesta del método del k_0 , el grupo de De Corte ha trabajado intensamente en la determinación de esta constante agrupada para la gran mayoría de los elementos de interés analítico, y se han generado bases de datos de ella [De Corte, 2001a; Kolotov y De Corte, 2003 y 2004]

Continúan todavía apareciendo incertidumbres relativamente grandes para los valores de algunas secciones eficaces de importancia analítica, mientras que en relación a las integrales de resonancia y, en menor medida, para los cocientes I/σ , el estado de las compilaciones refleja mucha dispersión en los datos.

6.2.3. Tipos de tablas

La literatura científica abunda en compilaciones donde tanto el modo de presentación como el tratamiento de los datos asume diferentes formas. Una clasificación muy esquemática de los tipos de tablas existentes se resumiría en:

Recopilaciones simples: se consignan solamente valores originales.

Tablas con intervención del compilador: se realizan evaluaciones, renormalizaciones (actualizaciones de datos experimentales previos), promedios, valores recomendados.

Tablas derivadas de tablas: contienen datos extraídos de tablas previas y eventualmente otros datos originales.

Mezclas de datos: se consignan en la tabulación datos experimentales junto con valores calculados, estimaciones y valores recomendados provenientes de otras tablas.

Se observan además combinaciones entre todos estos casos.

La impresión errónea de que un dato adquiere categoría de incuestionable por el sólo hecho de figurar en una tabla, conduce muchas veces a su aceptación inmediata por el usuario, sin

mayores consideraciones. El análisis más profundo de los problemas que los diferentes tipos de tablas pueden representar lleva a las siguientes observaciones:

Las *recopilaciones simples*, aunque aparecen como un método aséptico, dejan librado al usuario, sin información orientadora, la elección del valor de trabajo. Podría caerse en este caso, en la tentación de suponer como “mejores valores” a los últimos publicados o a lo que consignen menor incertidumbre. Ambas prácticas, como se verá más adelante, llevan a errores muchas veces significativos.

Las *tablas con intervención del compilador* reflejan una actitud más comprometida, que puede resultar de mayor utilidad para el usuario. Frecuentemente se presentan problemas que radican en la elección de criterios inadecuados (o en la falta de explicitación de los mismos) para evaluación, aceptación o rechazo de datos, renormalización y recomendación.

Las *tablas de tablas* son quizás el caso más aberrante. Se mezclan los criterios, si existieran, empleados por el compilador actual y los anteriores. Adicionalmente, se pierde la historia de los datos y las referencias de las fuentes originales. En consecuencia, el usuario no podría juzgar críticamente la confiabilidad de los valores ofrecidos.

Finalmente, las *mezclas de datos* en las tablas, al referir a valores no directamente comparables, como los experimentales en relación a los estimados, calculados y más aún a los recomendados, conducen a confusiones en la elección del dato de trabajo.

6.2.4. ¿Son verdaderamente evaluados los datos nucleares?

La presencia de un dato recomendado en tablas supone la realización de una tarea previa de evaluación de valores originales. Sobre la base de tal suposición, el usuario extrae ese dato, casi siempre sin posterior verificación, para su empleo en la operación analítica. Frecuentemente, la existencia de datos discrepantes en tablas reconocidas genera un estado de inseguridad, sobre todo en los casos en los cuales ni los datos de partida, ni los mecanismos de evaluación, son comunicados al lector. A continuación, se exponen ejemplos detallados:

De Corte y colaboradores [Ídem, 1971] hacen sus mediciones a partir de un trabajo de análisis por activación empleando el método del triple comparador. Los comparadores usados son ^{114m}In ($\sigma = 9,45 \text{ b}$; $I_0 = 258 \text{ b}$); ^{60}Co ($\sigma = 37 \text{ b}$; $I_0 = 75 \text{ b}$); ^{198}Au ($\sigma = 98,8 \text{ b}$; $I_0 = 1550 \text{ b}$). Las relaciones de flujo medidas con los pares Co-Au, Co-In y Au-In muestran diferencias sistemáticas en tres posiciones del reactor, donde se utilizan promedios. Esto se aprecia con claridad en la siguiente tabla:

Tabla 6.1.: Relaciones de flujo determinadas por De Corte et al. (1971)

Posición	Relación de flujos	Relación de flujos	Relación de flujos	Promedios
	Co - Au	Co - In	Au - In	
1	36,0	34,0	30,9	33,6
2	30,9	28,9	25,6	28,5
3	19,2	18,1	15,4	17,6

En la publicación no se efectúan correcciones por desviaciones del comportamiento I/E para el flujo epitérmico, que eventualmente podrían explicar las razones de los distintos valores de la relación flujo térmico / flujo epitérmico para los tres juegos de monitores. Sin embargo se determinan con este método las integrales de resonancia para ^{51}Cr , ^{59}Fe , $^{152\text{m}}\text{Eu}$, ^{140}La , $^{69\text{m}}\text{Zn}$, ^{187}W , $^{99\text{m}}\text{Mo}$ y $^{117\text{m}}\text{Sn}$. Para el ^{59}Fe . Los autores sostienen que no había datos previos en la literatura, lo cual es incorrecto, puesto que ya existía el valor de Brune y Jirlow [Ídem, 1963], citado y renormalizado en las conocidas tablas de Drake [Ídem, 1966]. No se consignan errores para las constantes extraídas de tablas, ni para las determinadas en ese trabajo.

El grupo de Van der Linden [Ídem, 1972] determinó experimentalmente una variedad de integrales de resonancia sobre la base de la determinación experimental de las relaciones de cadmio, usando oro como estándar ($\sigma = 98,8$ b; $I_0 = 1551$ b). No se consideran posibles desviaciones del comportamiento I/E del flujo epitérmico. La expresión de la incertidumbre surge de las relaciones de cadmio y de las relaciones entre flujos térmico y epitérmico. Las secciones eficaces se consideran exactas. No hay menciones acerca de mediciones previas de la integral de resonancia para ^{59}Fe , ni siquiera del valor 0,66 b medido en el mismo laboratorio un año antes [De Corte et al., 1971].

La tabla 6.2., en la siguiente página, cita un ejemplo acerca de una reacción muy empleada en análisis por activación, donde valores experimentales originales para la integral de resonancia, junto con otros provenientes de compilaciones, son consignados y discutidos en esta Tesis. Se muestra aquí una serie de fallas metodológicas así como en la presentación y tratamiento de datos. Brune y Jirlow publican el primer valor experimental para la integral de resonancia reducida de la reacción $^{58}\text{Fe}(n,\gamma)^{59}\text{Fe}$, es decir, sin incluir la parte I/v . El método se basa en la medición de las relaciones de cadmio, empleando oro como estándar. No hay menciones acerca de las posibles desviaciones del comportamiento I/E para el flujo epitérmico. El valor de la sección eficaz de la misma reacción corresponde a un valor antiguo, modificado en recopilaciones posteriores.

Tabla 6.2.: Datos experimentales para la integral de resonancia de la reacción $^{58}\text{Fe}(n,\gamma)^{59}\text{Fe}$ (expresados en barns)

Autor	Valor publicado	Sección eficaz *
Brune y Jirlow, 1963	$0,58 \pm 0,16$ **	$0,98 \pm 0,10$
De Corte et al., 1971	0,66	1,2
Steinnes, 1972	$1,27 \pm 0,07$	$1,23 \pm 0,05$
Van der Linden et al., 1972	$1,7 \pm 0,1$	1,2
Alian et al., 1973	1,17	---
Sage y Furr, 1976	$5,06 \pm 5,06$	no informada
Ahmad et al., 1983	$I/\sigma = 1,000 \pm 0,070$	
Simonits et al., 1989	$1,28 \pm 0,05$	$1,31 \pm 0,05$ ***

* Datos de tablas, seleccionados por cada autor cuando el método experimental consistió en la determinación de I/σ .

** Valor de la integral de resonancia reducida, sin considerar la parte I/v y con una energía de corte de cadmio igual a 0,6 eV. El cálculo, a partir de la sección eficaz consignada y para una energía de corte de cadmio de 0,5 eV, resultaría $1,01 \pm 0,28$.

*** Valor experimental, determinado por los autores del trabajo de referencia.

Tabla 6.3.: Datos extraídos de tablas para la integral de resonancia de la reacción $^{58}\text{Fe}(n,\gamma)^{59}\text{Fe}$ (expresados en barns)

Autor	Integral de resonancia	Sección eficaz
Drake, 1966	1,15	
Albinsson, 1974	1,2	$1,14 \pm 0,05$ *
Mughabghab et al., 1981	$1,7 \pm 0,1$	$1,28 \pm 0,05$
Gryntakis et al., 1987	$1,4 \pm 0,1$	$1,28 \pm 0,05$

* Corresponden a los datos de R. Sher, publicados en la página 1 de la misma referencia, que Albinsson usa para renormalizar en algunos casos.

Steinnes [Ídem, 1972] determina las integrales de resonancia de una serie de nucleidos por comparación de sus relaciones de cadmio con la de oro, utilizado como estándar ($\sigma = 98,8$ b; $I_0 = 1550$ b). Considera que no hay desviaciones apreciables del comportamiento I/E para el flujo epitérmico, puesto que su valor experimental para la integral de resonancia correspondiente a la reacción de captura sobre ^{59}Co es muy cercano a los valores antes determinados por varios otros autores. Compara su valor para la reacción sobre ^{58}Fe con el consignado en la tabla de Drake (1966).

Alian y colaboradores [Ídem, 1973] efectúan la medición de la sección eficaz y la integral de resonancia para la formación de ^{59}Fe como parte de un trabajo de análisis por activación

usando el método del monoestándar. Las integrales de resonancia se determinan por irradiación bajo cadmio del elemento y un estándar de cobalto ($I_0 = 75,0$ b). No se efectúan correcciones por eventuales desviaciones de la forma I/E para el flujo epitérmico. El valor 1,17 para la integral de resonancia de la reacción $^{58}\text{Fe}(n,\gamma)^{59}\text{Fe}$, consignado sin incertidumbre, no es comparado con valores previos, que tampoco se mencionan.

Sage y Furr [Ídem, 1976] comunican los resultados de una serie de mediciones de integrales de resonancia por comparación de relaciones de cadmio, con oro como estándar. Estos autores sostienen que no existían determinaciones previas a las de su artículo referidas a ^{50}Ti , ^{50}Cr , ^{58}Fe , ^{110}Cd , ^{114}Cd , ^{116}Cd , ^{112}Sn , ^{181}Ta (para la formación de $^{182\text{m}}\text{Ta}$). Con las excepciones de ^{116}Cd y ^{181}Ta , todas las demás se encontraban por entonces, entre otras fuentes, en el Handbook of Nuclear Activation Cross-Sections, editado por el OIEA (compilación de Albinsson, 1974). El valor $5,06 \pm 5,06$ es transcripción fiel del artículo original. Difícilmente puedan hacerse comentarios diferentes a la necesidad de una adecuada presentación y revisión de un artículo por los autores del trabajo y la responsabilidad del posterior referato y el control editorial de la publicación correspondiente.

El valor de Ahmad y colaboradores [Ídem, 1983] surge de la evaluación previa de los datos hasta allí publicados, para un conjunto que incluye 20 reacciones nucleares, entre las que se encuentra la de captura sobre ^{58}Fe . Sobre la base de los datos experimentales de actividad para el conjunto de los nucleidos producidos, se determinan parámetros del reactor y datos de salida de los cocientes I/σ .

El dato de la tabla de Drake [Ídem, 1966] surge de considerar el valor original de Brune y Jirlow [Ídem, 1963] para la integral reducida de la reacción, a la que se le suma la parte I/v , renormalizando el valor de la integral de resonancia del oro, tomado como estándar.

Albinsson [Ídem, 1974] recomienda el valor citado, consignando en sus referencias valores experimentales junto con otro de tablas. En un caso el valor aparece renormalizado, mientras que en otros se reproduce el valor original. No hay aclaración acerca de la elaboración del valor recomendado.

Mughabghab y colaboradores [Ídem, 1981] recomiendan un valor sin aportar mayores datos acerca de su elección. Se puede observar que numéricamente el dato coincide con el del grupo de Van Der Linden [Ídem, 1972], que consideran para la sección eficaz 1,2 b, sin incertidumbre. Si efectivamente hubiera sido elegido el valor de Van Der Linden y colaboradores, habría inconsistencia en el par sección eficaz - integral de resonancia, además de la no inclusión como error sistemático de la incertidumbre que afecta a la sección eficaz.

Gryntakis y colaboradores [Ídem, 1987] expresan en la introducción de su tabla que los valores recomendados surgen de efectuar, en la mayoría de los casos, el promedio de los valores experimentales, o bien de elegir una medición simple, cuando hay pocos datos y discrepantes. Es difícil efectuar conjeturas sobre la forma en que surge el valor $1,4 \pm 0,4$, recomendado por los autores. Todos los valores experimentales previos están citados como referencia en las tablas, pero se podría suponer que alguno fue descartado o eventualmente renormalizado. No hay aclaraciones a ese respecto.

Se pueden extraer algunas conclusiones preliminares de lo anteriormente expuesto: en primer lugar, la directa vinculación entre las determinaciones de estas constantes nucleares y la necesidad analítica es tal que dos de los trabajos referidos tratan, en forma general, del análisis

por activación empleando un método paramétrico. En relación a los valores, es necesario observar que la calidad del dato informado (integral de resonancia) queda seriamente deteriorada cuando en la determinación original el autor no consigna el dato de tablas que emplea como base para el cálculo (la sección eficaz) o bien lo considera sin incertidumbre. Mientras que en el primer caso no es posible siquiera intentar la renormalización del valor original, en el segundo se genera la impresión engañosa de contar con un dato cuya incertidumbre es menor que la real. Se sostiene que no hay mediciones previas en muchos casos donde ellas son fácilmente accesibles, enmascarando la posibilidad de emitir juicios de situación por comparación con lo anteriormente desarrollado. En algunas tabulaciones se reproducen incorrectamente, en ocasiones, los valores originales. Adicionalmente, el usuario no puede acceder a los criterios, si los hay, para la elección del valor recomendado, las eventuales renormalizaciones o el descarte de datos, ni a la forma de cálculo de la expresión final de la incertidumbre asociada.

El grupo de De Corte [De Corte et al., 1989] ha efectuado un estudio acerca de mediciones por ellos realizadas y de datos extraídos de tablas (según los autores, evaluados críticamente) de relaciones integral de resonancia / sección eficaz para 107 reacciones de captura de interés en análisis por activación, entre las que se encuentra $^{58}\text{Fe}(n,\gamma)^{59}\text{Fe}$. Para esta reacción se citan los valores consignados en cuatro tabulaciones y otros siete experimentales, muchos de ellos (si no todos) incluidos en esas tablas. El valor experimental citado como propio del trabajo ($0,975 \pm 0,010$), que es reiteración de aquél del cual se deriva la integral de resonancia en el artículo de los mismos autores [Simonits et al., 1987], se encuentra entre los más bajos, aunque sin diferencias demasiado grandes con el resto. Este es el adoptado como recomendado, con la consideración de que su determinación fue realizada en dos laboratorios diferentes y en distintas condiciones. Más allá del indudable hecho de que los autores demuestran haber realizado esa determinación en forma muy cuidadosa, la exclusión de la totalidad de los valores restantes pareciera un tanto arbitraria y lo mismo podría decirse en relación a la sección eficaz elegida para el cálculo, donde sólo se consideró el dato propio. Tampoco en este caso existe una elección surgida de una evaluación con fundamentos válidos para el usuario.

El ejemplo global discutido, con todas las observaciones anteriores, no es aislado; por el contrario, la mayor parte de las reacciones que se utilizan frecuentemente en análisis por activación adolecen de problemas semejantes, donde la adecuada selección resulta una tarea harto engorrosa y su transferencia al compilador se acerca bastante a un acto de fe.

6.2.5. Ejemplo de información conflictiva

La tabla 6.4. reproduce un fragmento de la compilación de Gryntakis (1979) acerca de secciones eficaces promediadas sobre un espectro de fisión, para reacciones (n,α) . Se muestra aquí una buena parte de los vicios existentes en algunas compilaciones.

Tabla 6.4.: Datos para la sección eficaz, promediada sobre un espectro de fisión, de la reacción $^{31}\text{P}(n,\alpha)^{28}\text{Al}$ (Gryntakis, 1979)

Autor, año de publicación	Valor original (mb)	Valor renormalizado	Tipo de dato
Hughes, 1953	1,43	2,29	medido
Saeland, 1954	0,75	1,44	medido
Roy, 1960	1,3	-	evaluado
Nasyrov, 1968	1,4	-	calculado
Calamand, 1974	1,1	-	evaluado
Calamand, 1974	$1,9 \pm 0,6$	-	recomendado

Además de la mezcla de datos experimentales con los de otro tipo, no es muy clara la distinción entre evaluado y calculado. Al respecto, la inspección de los trabajos originales permite comprobar que ambas categorías remiten a estimaciones del valor de la sección eficaz mediante una función representativa y un cálculo numérico.

En relación a los valores experimentales, cabe destacar que su conversión en nuevos valores renormalizados es obra de Calamand [Ídem, 1974] y no del compilador. El último valor, recomendado también por Calamand en su tabla, es el promedio de esos datos experimentales normalizados. Su inclusión como dato independiente en la tabla de Gryntakis, lleva por consiguiente a confusiones.

6.2.6. Distorsión de la información

Es interesante observar la evolución de algunos datos experimentales (que en el caso que será comentado es ausencia de evolución) cuando son volcados a compilaciones. Un ejemplo de esta situación se indica en la tabla 6.5.

Steinnes [Ídem, 1972] obtiene el valor de la integral de resonancia para la reacción $^{46}\text{Ca}(n,\gamma)^{47}\text{Ca}$ sobre la base de la determinación experimental del cociente integral de resonancia / sección eficaz a través de la relación de cadmio. Considerando para la sección eficaz el valor $(0,25 \pm 0,10)$ b, extraído por el autor de las tablas de Goldman y colaboradores [Goldman et al., 1968], el dato de la integral de resonancia publicado es $(0,32 \pm 0,12)$ b. Recopilaciones posteriores [Sher, 1974; Mughabghab et al., 1981] consideran nuevos valores, muy diferentes, para la sección eficaz. Curiosamente, y aún a pesar de que en sus tablas de integrales de resonancia [Albinsson, 1974; Gryntakis y Kim, 1983 y Gryntakis et al., 1987] toman como base para las secciones eficaces a estas últimas compilaciones, el valor de la integral de resonancia sigue sin modificaciones para la citada reacción, tornando inconsistente al conjunto.

Tabla 6.5.: Datos acerca de la integral de resonancia de la reacción $^{46}\text{Ca}(n,\gamma)^{47}\text{Ca}$: valor original y su tratamiento en diferentes compilaciones

Autor	Sección eficaz	Integral de resonancia
Steinnes , 1972	$0,25 \pm 0,10$ *	$0,32 \pm 0,12$
IAEA TRS No. 156, 1974	$0,7 \pm 0,2$ **	$0,32 \pm 0,12$ **
Mughabghab et al., 1981	$0,74 \pm 0,07$	$0,96 \pm 0,10$
Gryntakis y Kim., 1983	$0,7 \pm 0,2$	$0,32 \pm 0,12$
Gryntakis et al., 1987	$0,74 \pm 0,07$	$0,32 \pm 0,12$

(La magnitud determinada experimentalmente por Steinnes es el cociente I/σ)

* Dato extraído por Steinnes de la tabla de Goldman y colaboradores [Ídem, 1968]

** Datos provenientes de las compilaciones de Sher y Albinsson, citadas en las referencias.

El valor de Mughabghab y colaboradores [Ídem, 1981] para la integral de resonancia, que no proviene de una determinación experimental y del cual no se indica la procedencia, parecería ser el resultado de una renormalización.

Obsérvese que, si en este caso se aceptara el criterio: “los mejores datos son los últimos publicados”, el usuario cometería un error (cociente I/σ distorsionado), del cual no es responsable el autor del dato original.

6.2.7. Los criterios de los compiladores

A menos que en una tabla se vuelquen los datos originales de los autores, sin ninguna otra consideración o intervención, acceder a su información tiene analogías con el mecanismo de una traducción, donde el usuario tendrá una visión del valor primitivo a través de la propia óptica del compilador. Desde este punto de vista, la tarea del mismo implica consecuentemente una responsabilidad en la selección de los contenidos accesorios (material que ilustra adicionalmente el trabajo del experimentador original), en la evaluación, en las eventuales renormalizaciones y en el valor finalmente recomendado. Esta labor debería estar acompañada de la explicitación de los criterios aplicados para cada una de estas operaciones, con el obvio requerimiento de que ellos sean objetivos y adecuados.

Es interesante observar que, en el estado actual de las compilaciones de los k_0 y las constantes asociadas, la posibilidad de que exista algún tipo de distorsión entre la generación del dato original y su posterior tratamiento en tablas desaparece, debido a que en este particular caso se trata de tabulaciones efectuadas por los mismos experimentadores. Este factor, que elimina un riesgo potencial, da origen en cambio a otro tipo de problemas, puesto que en aquellos datos donde existen determinaciones previas, efectuadas por otros autores, tiende a aparecer un sesgo preferencial hacia la elección de los valores propios.

Se han comentado ya algunos ejemplos donde los criterios empleados por el autor de una tabla no resultan suficientemente claros para facilitar la comprensión del usuario. Existen

también otros ejemplos donde la enunciación de tales criterios resulta de difícil aceptación, planteándose el interrogante acerca de si se trata de decisiones ecuanímes o juicios certeros. Se transcribirán a continuación, en forma textual y preservando el idioma original de su publicación, algunos comentarios extraídos de las explicaciones de utilización de tablas conocidas:

“The following table of thermal cross-sections is based primarily on recent compilations by N. Holden and D. T. Goldman et al.

.... In many cases, Holden’s values differ somewhat from those of Goldman et al., partly because of the inclusion of later data, and partly because of different judgements as to best values of the mean and error spread of several measurements. As a general rule, when later data made the values of Goldman et al. obsolete, Holden’s values were given greater weight; when differences between the two sets were due to different evaluations of the same data, those of Goldman et al. were used for the most part. This simply reflects the present author’s greater familiarity with the latter.” (Sher, 1974).

“... Hughes’ old data set could not be ignored since some of his measurements are still unique or among the few. It was then necessary to perform an empirical renormalization. This was done by comparing Hughes’ values with well established ones whenever possible. Hughes’ data were found to be consistently too low by an average factor of 1.6”

“... The calculation was performed whenever it was possible to choose σ_{eff} among experimental or evaluated data. When no other data are available, Nasyrov’s calculated data become our recommended values with an arbitrary relative error of 30%.”

“Value calculated from an empirical formula valid for $8 \leq Z \leq 42$. This value becomes our recommended value for which we estimate a 30% relative error.”

Las dos citas anteriores corresponden a criterios adoptados por Calamand [Ídem, 1974] para renormalizar antiguos valores de secciones eficaces de reacciones umbral. El primero de ellos es tal vez el más discutible, puesto que refiere a un valor empírico promedio el factor de corrección de todo un juego de valores.

No es nuestro propósito insistir en la reproducción de citas de esta naturaleza, si bien es oportuno destacar la sorprendente frecuencia de aparición de estos casos, en obras que deberían distinguirse por su claridad y rigor científico.

6.2.8. Compilaciones, evaluaciones y renormalizaciones: realidades y esperanzas

Una descripción de los problemas antes comentados y de la metodología propuesta en esta Tesis de un procedimiento correcto se presentan en forma esquemática en las figuras 6.1. y 6.2. Se supondrá para ello la existencia de cuatro valores experimentales de una magnitud dada, que son recopilados y evaluados en más de una ocasión: la primera, reuniendo los datos hasta allí dispersos; las otras, en función de nuevos datos experimentales y de datos de referencia actualizados.

Figura 6.1.: Errores que se cometen al renormalizar, evaluar o tabular datos

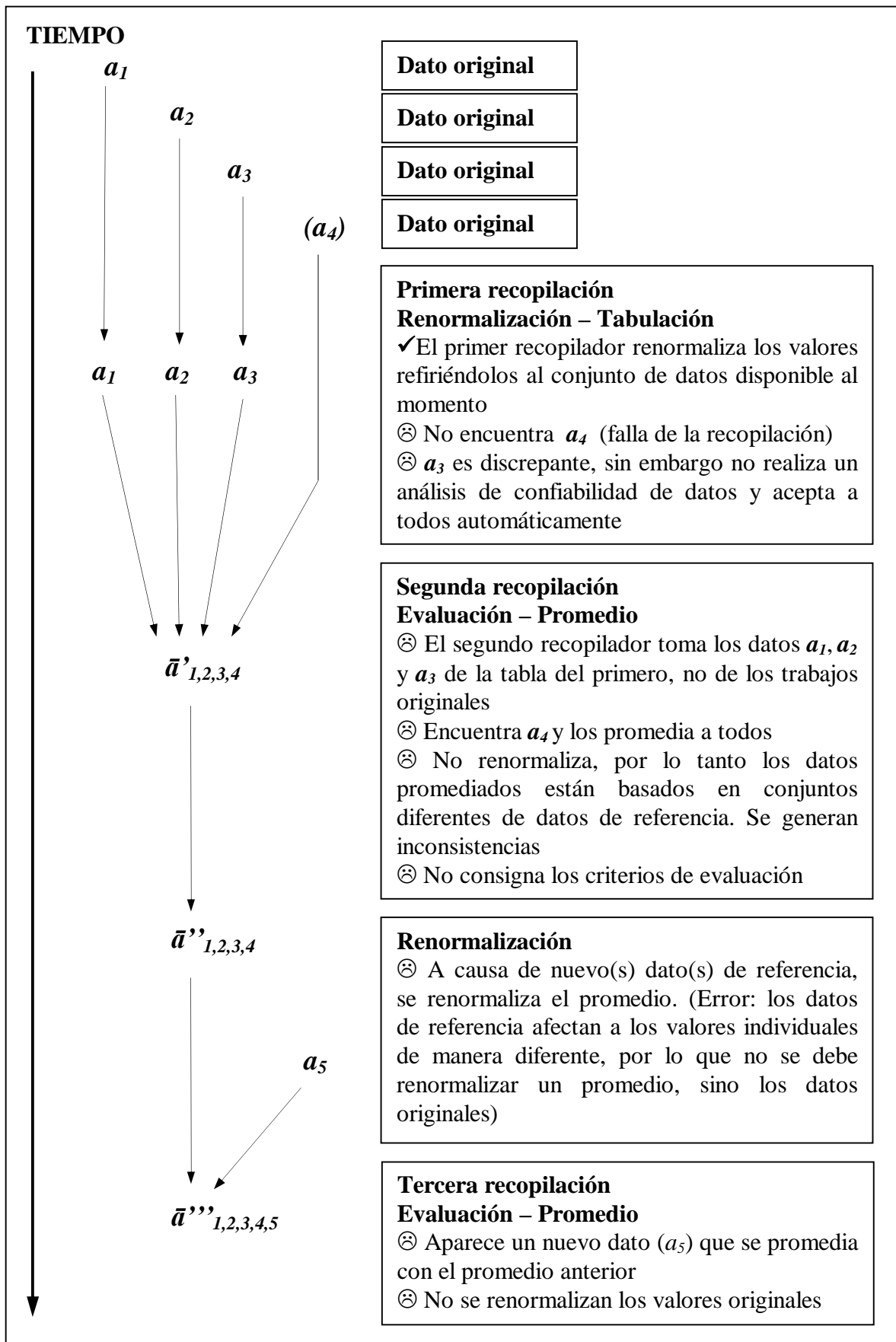
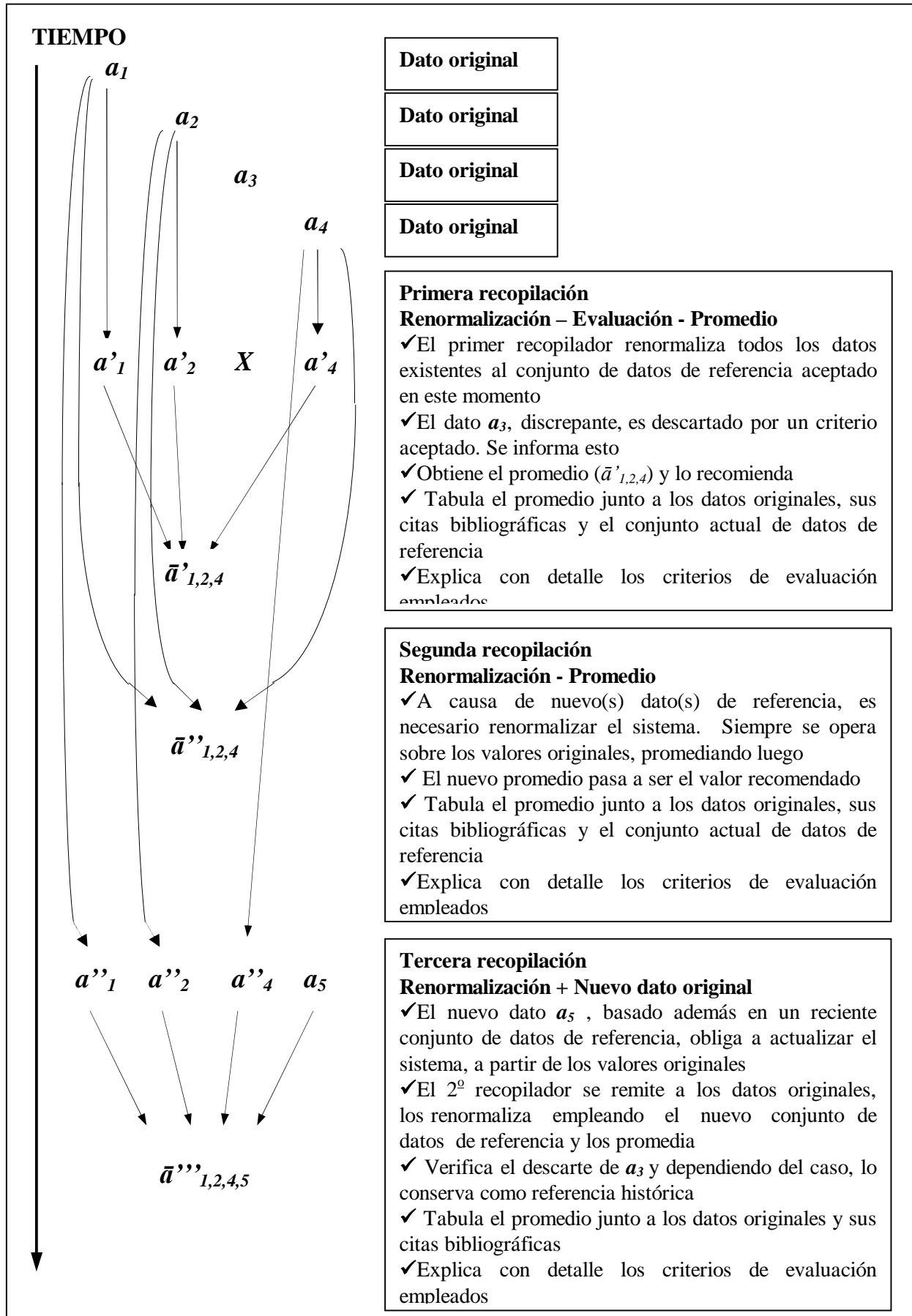


Figura 6.2.: Procedimientos correctos de renormalización, evaluación y tabulación



Puede destacarse que, en el primer esquema, se distorsiona de tal manera la información por falta de rigurosidad de los recopiladores que pierden validez los trabajos de los primitivos autores. En cambio, en el segundo planteo, las experiencias realizadas se preservan y ponderan a través de correctas renormalizaciones y evaluaciones; aún un valor descartado se conserva como dato histórico y eventualmente rescatable en el futuro. Lamentablemente, y salvo en algunos casos excepcionales como los trabajos descriptos en IAEA-TECDOC-619 [IAEA, 1991] o la Monographie-5 del BIPM [Ídem, 2011], esta segunda situación se encuentra más en el terreno de las utopías que en el de la existencia real.

6.2.9. Fuentes de datos bibliográficos de secciones eficaces

Según nuestro conocimiento, la compilación de Calamand [Ídem, 1974] es la última tabla específicamente dedicada a recopilar y evaluar datos primarios relacionados con la determinación de secciones eficaces de reacciones inducidas por neutrones, promediadas sobre espectros de fisión. La moderna base de datos EXFOR, del OIEA, no realiza evaluaciones, renormalizaciones ni recomendaciones.

A pesar de la indudable utilidad de las tablas de Calamand como referencia inicial, cuando es necesario adoptar un valor de una sección eficaz promediada, hay que señalar algunos de los inconvenientes que pueden hacer desaconsejable el uso de tales valores:

- 1) Muchos de los valores modernos para una variedad de las reacciones han aparecido en la literatura después de la publicación de las tablas de Calamand
- 2) La renormalización sólo se basa en los valores de la sección eficaz de la reacción estándar, dejando de lado otros posibles factores de inconsistencia entre los valores publicados
- 3) Tal como es expresado por el mismo Calamand, cuando existe sólo un valor para una sección eficaz, ese valor resulta el recomendado, incluso cuando es de dudosa calidad. Por lo tanto, la asignación de factores arbitrarios o empíricos de renormalización para algunas secciones eficaces afecta la calidad de estos valores y, en consecuencia, la calidad de los valores recomendados calculados a partir de un promedio ponderado de los datos individuales.

Mientras que el primero de estos hechos está relacionado con la necesidad de incluir a todos los valores publicados en la evaluación, los últimos están relacionados con la coherencia del conjunto general de valores.

A raíz de lo desarrollado en esta Tesis respecto de las renormalizaciones, debemos afirmar que la política de "rescate" de valores a través de renormalizaciones sobre la base de criterios no debidamente aclarados o justificados resulta sumamente perjudicial, puesto que constituye una fuente de errores que no pueden ser controlados por el usuario.

Hoy en día, las bases de datos de secciones eficaces más completas y accesibles son CINDA y EXFOR.

CINDA (Computer Index of Neutron Data) contiene referencias bibliográficas de secciones eficaces de reacciones inducidas por neutrones y otros datos neutrónicos, en relación con las mediciones, cálculos, valoraciones y evaluaciones.

EXFOR (Exchange Format - Experimental Nuclear Reaction Data - IAEA) se dedica a almacenar datos experimentales sobre reacciones inducidas por neutrones, partículas cargadas y fotones. La característica más relevante de EXFOR es que se incluyen los datos pertinentes que permiten realizar una renormalización de las secciones eficaces, exceptuando los pesos atómicos y las abundancias isotópicas, siempre que los autores hayan consignado esa información. Por lo tanto, el usuario puede realizar directamente la renormalización sin consultar las fuentes originales de los datos publicados.

6.2.10. Conclusiones

El estado actual de los conjuntos de datos existentes, del cual se presentaron algunos ejemplos aislados, muestra una cierta desprotección del usuario. En los casos particularmente conflictivos, se debe verificar la confiabilidad de los valores de tablas, investigando en las fuentes bibliográficas originales los detalles de su generación. Adicionalmente, la consistencia de los datos que por su naturaleza están asociados en las fórmulas, debe ser objeto de un control específico, esto es, comprobar que todos los valores estén basados en el mismo conjunto de datos de referencia. La aplicación de los conceptos de trazabilidad propuestos en esta Tesis y publicados [Furnari y Cohen, 1995 y 1998], contribuiría a la solución definitiva de estas cuestiones.

Para la aplicación de análisis por activación paramétrico a través de reacciones (n,γ), el empleo de los k_0 brinda un grupo de datos aceptablemente consistentes. Es posible obtener también otros conjuntos de consistencia equivalente, mediante la selección cuidadosa de las constantes nucleares independientes. En este segundo caso, la expresión de la incertidumbre asociada al dato final, podría estar casi siempre sobreestimada. Si la determinación de la sección eficaz se deriva de los otros parámetros (intensidad de la radiación, abundancia isotópica, masa atómica relativa), la recomposición de los datos para el cálculo de actividad conduce a la doble consideración de los errores sistemáticos asociados. Por otra parte, y tal como fue mencionado anteriormente, es probable que las incertidumbres de los k_0 estén subestimadas. Los inconvenientes en la selección de datos nucleares se hacen particularmente graves en el análisis por activación con neutrones epitérmicos, puesto que la mayoría de los problemas presentados surgen de tablas de integrales de resonancia o de cocientes I/σ . Puesto que también existen dificultades asociadas a la energía efectiva de corte de cadmio y a las desviaciones del comportamiento $1/E$ de la componente epitérmica en los reactores, la aplicación de los métodos paramétricos requeriría en este caso una minuciosa consideración de los factores mencionados.

Más allá de los criterios que adopte para la selección de los datos nucleares, el usuario deberá, en todos los casos, verificar periódicamente sus prácticas sobre la base de los procedimientos recomendados de garantía de calidad, e intervenir frecuentemente en ejercicios de intercomparación.



6.3. Aplicación del concepto de trazabilidad a los datos nucleares

6.3.1. Introducción

Tal como se expuso en 6.1., la generación de un resultado numérico en la investigación científica implica, además de la utilización de eventuales datos experimentales, la de otros provenientes de la bibliografía. Usualmente se emplean para arribar a la expresión final, constantes, parámetros, factores de corrección, como herramientas de cálculo.

Muy a menudo se observa, a través de la literatura, el cuidado que el investigador dedica al control de las variables experimentales, las condiciones de trabajo, la calibración y estabilidad de sus instrumentos. En cambio, no somete a los mismos controles los datos bibliográficos, cuya calidad pareciera transferirse a las fuentes de publicación. Esta actitud de confianza implica en ocasiones ignorar en ellos discrepancias, inconsistencias, diferentes modos de presentación y hasta de expresión, que no es raro encontrar. Estos factores se constituyen frecuentemente en serias dificultades que afectan la exactitud y la precisión del resultado obtenido por el investigador. Intentos para resolver aspectos parciales del problema global han sido descritos en varias publicaciones [Ahmad, 1983; Woods y Munster, 1988; Rajput et al., 1992; Kafala et al., 1994].

La calidad del resultado es reflejada, entre otros factores, por la calidad del valor de tablas. Muchas veces, experimentos únicos de impecable realización pueden concluir en resultados erróneos o inválidos, donde la falla del investigador se produjo solamente en la adopción del dato de tablas empleado. Por otra parte, y en el terreno de la operación rutinaria en el análisis químico, la confiabilidad del laboratorio se manifiesta a través de sus resultados.

Estas reflexiones adquieren máxima relevancia en el caso del análisis por activación paramétrico. A diferencia del análisis por activación comparativo convencional, donde se emplea un patrón que contiene todos los elementos a ser analizados, el análisis paramétrico emplea un número substancialmente menor de comparadores (o ninguno, para el método absoluto). Por contraste, esta metodología trae aparejada la necesidad de utilizar muchos más datos de tablas.

6.3.2. Requerimiento de datos nucleares en el análisis por activación neutrónica

La aplicación de la modalidad de análisis paramétrico implica el uso de datos nucleares en las siguientes operaciones:

- a) Mediciones de las diferentes componentes del flujo neutrónico.
- b) Determinación de la curva de eficiencia del detector.
- c) Cálculo de concentraciones a partir de las actividades medidas de los analitos en la muestra y los comparadores.

En relación a este último punto, cabe recordar que en el método absoluto se relacionan las actividades de los analitos en forma directa con sus masas a través de las constantes nucleares.

Como pasos comunes a cualquier método de análisis por activación, y que involucran la utilización de algún tipo de dato de tablas, es necesario efectuar correcciones por: tiempos de

irradiación y decaimientos (desde el fin de la irradiación y durante la medición); configuración geométrica de muestras, comparadores o patrones; apantallamiento neutrónico; atenuación de la radiación; efectos suma.

En relación al cálculo de concentraciones a partir de las actividades medidas, los requerimientos de datos nucleares son:

- Método paramétrico tradicional: masas atómicas relativas, abundancias isotópicas, intensidades de las radiaciones, secciones eficaces, integrales de resonancia. En el método absoluto, se agrega el número de Avogadro.
- Método del k_0 : constantes k_0 , cocientes integral de resonancia / sección eficaz.

Es oportuno observar que la utilización del k_0 no exime al analista de la necesidad de conocer las constantes nucleares independientes que lo componen, para efectuar las correcciones generales antes mencionadas. Así, por ejemplo, para los efectos suma, es preciso emplear todas las intensidades de emisión de fotones de las energías involucradas; el cálculo de factores de apantallamiento neutrónico, demanda la aplicación de secciones eficaces, parámetros de resonancia, masas atómicas relativas y abundancias isotópicas.

Además, es necesario conocer los valores de los períodos de semidesintegración para todas las correcciones temporales, y de los factores de autoabsorción para calcular la atenuación de la radiación emitida.

6.3.3. Implicancias de la calidad de los datos nucleares

Extendiendo los conceptos vertidos en la introducción, se puede afirmar que la calidad del resultado analítico o experimental en general está vinculada indefectiblemente a la calidad del dato de tablas o, en términos opuestos, que la falta de calidad en los datos de tabla conduce irremediablemente a la pérdida de calidad del resultado. En ese sentido, es interesante advertir que el analista puede hasta cierto punto mejorar sus condiciones experimentales, pero no tiene posibilidad de actuar sobre los valores de tablas.

Secuencialmente, la noción de calidad del dato bibliográfico se asocia a los conceptos de: consistencia, con respecto a un conjunto de valores relacionados, previamente establecido; baja incertidumbre; ausencia de dispersión significativa entre valores de la misma magnitud; verificación del valor aceptado o recomendado y de su incertidumbre.

Más allá de su aplicación de los conceptos citados, que intuitivamente forman parte del patrimonio de cada investigador en el juicio sobre los datos que extrae de la bibliografía, sería de notable utilidad poseer un sistema que permita mantener bajo control estos factores.

En esta Tesis se plantean analogías entre los datos de tablas y el sistema de patrones metrológicos, que se ilustran en la figura 6.3. [Furnari y Cohen, 1995a y 1998]

Figura 6.3.: Clasificación de datos de tablas, por analogía con patrones metrológicos

Patrones metrológicos		Datos de tablas	
Primarios	(nacionales e internacionales)	De primer orden	(constantes fundamentales)
Secundarios	(referidos a los patrones primarios)	De segundo orden	(determinaciones absolutas y/o referencias a datos de primer orden)
De trabajo	(referidos a los patrones secundarios)	De tercer orden	(determinaciones relativas; referencias a datos de primero, segundo o tercer orden)

De acuerdo a tales analogías, se puede establecer una clasificación de los datos, restringida en este caso a los de activación nuclear, según el siguiente detalle:

Datos de primer orden: *constantes fundamentales* (número de Avogadro, constante de Boltzman)

Datos de segundo orden: *aquéllos determinables en forma absoluta y/o con utilización de datos de primer orden; son en general no renormalizables* (períodos de semidesintegración, masas atómicas relativas, abundancias isotópicas, intensidades de emisión).

Datos de tercer orden: *aquéllos determinados en forma relativa, con utilización de datos de primero y segundo orden; renormalizables.* (secciones eficaces, integrales de resonancia, cocientes I/σ , constantes k_0).

6.3.4. El sentido de la renormalización

Siguiendo las analogías ya planteadas entre datos nucleares y patrones metrológicos, debe observarse como la esencia misma de la clasificación, la interdependencia entre órdenes, tal como ellos han sido establecidos. En el caso particular de los datos de tercer orden, la definición contempla dos aspectos particulares mutuamente relacionados: la determinación de estas constantes empleando métodos relativos; su carácter de valores susceptibles de renormalización.

En forma muy somera, aunque con la aclaración de que existen diversos métodos de determinación, la dependencia de las constantes de tercer orden es como sigue:

Secciones eficaces: el valor numérico surge de una metodología de activación en cuyo cálculo final intervienen las masas atómicas relativas, las abundancias isotópicas, las

intensidades de las radiaciones medidas y eventualmente la sección eficaz para una reacción estándar.

Integrales de resonancia: empleando el método de la relación de cadmio, intervienen en el cálculo la sección eficaz de la reacción considerada e integral de resonancia y sección eficaz para una reacción estándar. En ocasiones, sólo se emplea la integral de resonancia de la reacción estándar.

Cociente I/σ : En general, requiere del conocimiento del valor equivalente para una reacción estándar.

Constantes k_0 : Por definición, esta constante compuesta está referida a un conjunto equivalente para una reacción estándar, usualmente $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$, sin emplear los valores numéricos de ese conjunto estándar.

$$k_0 = \left(\frac{\sigma \cdot i_\gamma \cdot \theta}{W} \right)_x \cdot \left(\frac{W}{\sigma \cdot i_\gamma \cdot \theta} \right)_{Au} \quad (\text{ver ec. 3.13})$$

siendo \underline{x} indicación de reacción y transición gamma en estudio.

En la determinación experimental, su dependencia con datos de tablas se establece a través de las relaciones $Q=I/\sigma$ para la reacción estudiada y la empleada como estándar.

$$k_0 = \frac{C_{esp,x}}{C_{esp,Au}} \cdot \frac{f + Q_x}{f + Q_{Au}} \cdot \frac{\varepsilon_x}{\varepsilon_{Au}} \quad (\text{ver ec. 3.18})$$

Deberíamos ahora recordar que la determinación de un dato nuclear es también un experimento, al que caben aplicar las reflexiones volcadas en la introducción. Nuevamente, y teniendo en cuenta que la expresión final depende del valor adoptado para otras constantes, la calidad del resultado será función de la calidad del dato de entrada. En este contexto, renormalizar un dato de tablas a partir de valores más modernos de las constantes empleadas en su cálculo, representa no sólo restituir el valor intrínseco del dato, sino también rescatar al experimento original, con todo lo que ello implica en un sentido de preservación de esfuerzos y recursos.

6.3.5. Trazabilidad en datos nucleares

Avanzando aún más sobre la base de las analogías con los patrones metrológicos, la clasificación postulada en esta Tesis para los datos de tablas presenta una propiedad fundamental: la posibilidad de aplicar los principios de **trazabilidad** (traslación del vocablo inglés traceability).

El concepto de trazabilidad ha sido ampliamente discutido y elaborado, desde diversas fuentes, para patrones, resultados de mediciones, calibración de instrumentos [ISO, 1984;

NBS, 1982; Garner y Rasberry, 1993; Ehrlich y Rasberry, 1998] . De Corte (1987) ha estudiado la extensión de este concepto a un método del análisis por activación, específicamente, al método del k_0 . En esta Tesis se propone que los mismos principios que rigen un sistema de trazabilidad metrológico sean empleados en el control de la calidad de los datos nucleares [Furnari y Cohen, 1998].

El significado del término *trazabilidad* (específicamente *trazabilidad metrológica*) está definido por el BIPM en su International Vocabulary of Metrology (VIM) [BIPM, 2008] como:

Property of a measurement result whereby the result can be related to a reference through a documented unbroken chain of calibrations, each contributing to the measurement uncertainty.

En su Nota 2 aclara: *Metrological traceability requires an established calibration hierarchy.*

Y en su Nota 8 agrega: *The abbreviated term “traceability” is sometimes used to mean ‘metrological traceability’ as well as other concepts, such as ‘sample traceability’ or ‘document traceability’ or ‘instrument traceability’ or ‘material traceability’, where the history (“trace”) of an item is meant. Therefore, the full term of “metrological traceability” is preferred if there is any risk of confusion.*

De esta manera está permitiendo o aceptando el empleo del término a otros sistemas.

En esta Tesis se plantea como contribución original una completa aplicabilidad de esta definición y aclaraciones a las constantes y otros datos de tablas. Instituciones de indiscutido renombre como el NIST, el PTB o el NPL, mencionan a ciertas constantes como estándares, por lo que la aplicabilidad de estos conceptos es inmediata.

La aplicación de la trazabilidad a los datos de tablas, representa específicamente establecer una documentada cadena ininterrumpida de relaciones entre datos de distintas jerarquías tal como la planteada en la figura 6.3., con el objeto de asegurar lo que se podría definir como **consistencia global de un conjunto general de datos**. Esta práctica está íntimamente unida al proceso de renormalización, por cuanto cada dato de segundo o tercer orden estaría referido a uno o más datos del mismo orden o superior, ejerciendo un control continuo sobre el sistema. De esta manera, es necesario definir una serie de datos de referencia que actúen como base de la cadena.

Otro aporte original es establecer que **todo dato trazable es, esencialmente, un dato renormalizable**. Adicionalmente, un dato trazable permite asegurar su calidad en forma perdurable en el tiempo. La combinación entre este sistema de calidad y aquél destinado a preservar la calidad de los procedimientos experimentales en el laboratorio analítico, permite equilibrar el sistema de calidad en el que se sostiene el resultado final.

6.3.6. Secuencia de responsabilidades: generador del dato, compilador, usuario

Esté tópico es también una contribución original de esta Tesis. El establecimiento de una cadena de trazabilidad de datos debe comenzar con la obligada sistematización de la etapas en las que están involucrados: la generación del dato, la recopilación de un conjunto de datos y la selección por parte del usuario.

Generación del dato:

Usualmente son los laboratorios de investigación especializados los que se dedican a la determinación de datos, muchas veces asociados a disciplinas metrológicas. Excepciones a esta situación general, como las que se observaron años atrás en la generación de datos nucleares por los propios analistas, en razón de la necesidad de su empleo para sus labores específicas, adolecieron en ocasiones de fallas metodológicas que afectaron inclusive a su validez.

La experiencia acumulada de muchos años de labor, asociada a una sólida capacidad profesional y de recursos materiales e instrumentales, es la que asegura la calidad primaria del dato generado. No obstante, en la etapa siguiente a la experimental suelen producirse fallas u omisiones que pueden cortar en forma temprana la cadena de trazabilidad postulada: la publicación del dato.

Si, tal como fue planteado, **la principal consecuencia de la trazabilidad es la renormalización**, el experimentador debería publicar su valor junto con todos los datos que permitieran eventualmente renormalizarlo. En el caso de los datos nucleares, tendrían que consignarse incluso los valores que posibilitaran recalcular las correcciones temporales en el caso de que cambiaran los períodos de semidesintegración. El mismo principio se aplicaría a cualquier otro factor de corrección. Por otra parte, las fórmulas o citas bibliográficas que refieran a los cálculos empleados serían parte obligada de la publicación.

Recopilación:

Al compilador le corresponde asumir varias responsabilidades. La confección de tablas de datos debería remitirse en forma excluyente a las publicaciones originales, no a otras tablas. Además, cada dato tendría que ser incluido con sus correspondientes referencias.

El recopilador debería realizar su propia evaluación, renormalización, aceptación y rechazo de datos, promedio y recomendación como pasos obligados. Los criterios empleados para ello deberían ser claramente explicitados, mientras no se disponga de *criterios estándar*, aceptados por consenso, lo cual sería altamente deseable. Al respecto, es interesante observar que los procedimientos de evaluación en sí mismos podrían ser sometidos a trazabilidad.

Aquellos valores carentes de la información asociada necesaria, o sin la adecuada evaluación de su incertidumbre, deberían ser excluidos de la evaluación y sólo podrían ser consignados en tablas como valores ilustrativos o históricos. El cálculo de promedios debería realizarse siempre sobre la base de los valores experimentales originales y eventualmente renormalizados en relación al conjunto de datos de referencia vigente (ejemplos: las integrales de resonancia remiten a secciones eficaces; éstas a pesos atómicos, abundancias isotópicas, intensidades de emisión). Para el cálculo de la incertidumbre, deberían tomarse en cuenta cuidadosamente las contribuciones sistemáticas y aleatorias. Un promedio no debería conducir a una expresión de la incertidumbre menor que el error sistemático asociado a la determinación. El dato final

recomendado tendría que consignarse junto con el número total de valores evaluados y el de valores aceptados, como indicación adicional de su calidad.

Este es el último eslabón de la cadena de trazabilidad, entendida como sistema de garantía de calidad de datos, tal como se postuló. La etapa siguiente, en manos de usuario, constituye el destino de todo el proceso.

Selección:

El usuario tiene la responsabilidad de la selección y correcto empleo del dato de tablas. Si la cadena de trazabilidad se mantuvo intacta hasta esta fase, dispone del dato y del conjunto de valores relacionados que se emplearon en la última renormalización, además de la información para remitirse a las publicaciones originales. Es interesante hacer notar entonces, que posee también la facultad de realizar su propia renormalización, si así lo necesitare. Esto provee al analista de una poderosa herramienta para mantener permanentemente actualizados sus datos.

6.3.7. Factores que influyen en la dispersión de datos de tablas

Arribére y colaboradores [Ídem, 2005] han estudiado los factores que influyen en la dispersión de los datos publicados para las constantes de las reacciones nucleares generadas en reactores nucleares. Entre ellos, los relacionados con las secciones eficaces promediadas sobre el espectro de fisión son:

- 1) Caracterización inadecuada del espectro de neutrones.
- 2) La variedad de las reacciones nucleares empleadas para la normalización.
- 3) Evaluación "optimista" de la incertidumbre asociada con muchas determinaciones, en las que no son tomadas en cuenta todas las fuentes de incertidumbre.
- 4) Utilización de conjuntos inconsistentes de datos de entrada.
- 5) Diferencias entre los valores de los datos de entrada para las reacciones estudiadas y para las que se utilizan como reacciones estándar.

El primer punto hace referencia a un requisito obligatorio, que es la necesidad de asegurar que el espectro rápido del reactor empleado para las mediciones es similar al de un espectro de fisión no perturbado.

La discusión del tema 2) merece un comentario particular: la inspección de la literatura permite advertir la variedad de reacciones utilizadas como estándar para la medición de las secciones eficaces promediadas sobre un espectro de fisión. Algunas de las reacciones que se han empleado indistintamente son: $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$, especialmente en el pasado; $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ y $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$. Como estándares, estas reacciones no son exactamente equivalentes, ya que sus energías umbral efectivas son diferentes. Por otro lado, una práctica común para inferir que el componente rápido del espectro de neutrones del reactor coincide con un espectro de fisión es la determinación del flujo con estándares de diferentes umbrales y la comprobación de que los resultados son similares, lo que implica el uso indirecto de conjuntos de reacciones estándar, en lugar de una reacción específica.

Calamand [Ídem, 1974] propuso, como base para la evaluación y renormalización de secciones eficaces promediadas, el siguiente conjunto de reacciones estándar: $^{24}\text{Mg}(p,n)^{24}\text{Na}$;

$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$; $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$; $^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$; $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$; $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$; $^{235}\text{U}(n,f)\text{pf}$; y $^{238}\text{U}(n,f)\text{pf}$, junto con los valores recomendados para secciones eficaces promediadas. Este procedimiento constituye un intento válido para alcanzar la coherencia en el tratamiento de los datos publicados.

No obstante, cabe notar que algunos de los valores recomendados son resultados de determinaciones cruzadas, es decir, la sección eficaz de una reacción estándar se utilizó para determinar la sección eficaz de otra que, a su vez, había sido utilizada con anterioridad para la medición de la sección eficaz de la primera. Por ejemplo, para la determinación de la sección eficaz promedio de la reacción $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$, Calamand [Idem, 1974, pág. 284] utiliza como uno de las estándares a la sección eficaz de la reacción $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$; luego (pág. 294) utiliza como estándar para el cálculo de esta última sección eficaz a la de la reacción $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$. Esta cita, lejos de ser una objeción al trabajo de Calamand, tiende a señalar uno de los problemas inherentes a la búsqueda de la coherencia de estas constantes.

El hecho mencionado en 3) con frecuencia conduce a una evidente dispersión de los datos, ya que valores que tienen un cierto grado de concordancia, se tornan diferentes, desde el punto de vista estadístico, cuando son ignoradas algunas fuentes de incertidumbre.

Los valores obtenidos a partir de un conjunto no coherente de los datos de entrada para la reacción estándar (punto 4) son intrínsecamente incongruentes. Por lo tanto, no deben ser utilizados, a menos que se haga una corrección pertinente.

Por último, el problema mencionado en 5) es particularmente relevante cuando se comparan los valores antiguos y modernos de la misma constante. En estos casos, la renormalización es casi siempre obligatoria.

6.3.8. Reflexiones finales

Si las observaciones anteriores, que ilustran parcialmente aspectos desarrollados en esta Tesis, tuvieran el poder de recomendación y guía para los generadores y compiladores de datos nucleares, sería posible arribar a conjuntos de datos definitivamente confiables y consistentes, y criterios de evaluación adoptados en forma internacional por consenso. Mejorarían así en forma significativa la exactitud y la precisión de los resultados finales del análisis por activación paramétrico.

Las propuestas formuladas son viables. En el campo de las intensidades de emisión de fotones (rayos X y γ) y de los periodos de semidesintegración, se han hecho progresos notables en cuanto a su evaluación y recomendación, tendientes a uniformar internacionalmente tales datos [IAEA, 1991; Monographie-5, 2010; ICRM, 2006, 2010 y 2011]. Debe recordarse que estas magnitudes no necesitan ser renormalizadas.

Los conceptos enunciados no son aplicables sólo a los datos nucleares, sino que se pueden extender a otras disciplinas. Su adopción general podría constituir una valiosa herramienta de un posible sistema de garantía de la calidad de los resultados derivados de la investigación científica.



6.4. La renormalización de datos nucleares

6.4.1. Introducción

Como ya se ha expuesto en el capítulo anterior, en particular en las secciones 6.3.4. y 6.3.5., la propiedad más importante que se desprende de la aplicación del concepto de trazabilidad a los datos de tablas, es la renormalización.

Siendo las secciones eficaces datos de tercer orden, surgidas de determinaciones experimentales y del empleo de constantes de primero y de segundo orden, toda vez que sean trazables, pueden ser renormalizables.

Tal como se expuso, para poder acceder a la renormalización (y ser trazables), es un requisito ineludible que el conjunto de datos empleados para el cálculo que acompaña a la determinación esté disponibles de alguna manera como fuente de información suministrada por los autores del dato. Lo más correcto es que consten en la publicación correspondiente al nuevo dato determinado o que allí se indiquen las fuentes utilizadas.

En muchas ocasiones, los datos publicados son escasos o bien únicos, y su renormalización representa tanto la restitución del valor intrínseco, como también la recuperación del experimento original.

En el caso particular de la sección eficaz de una reacción nuclear, es necesario usar valores de pesos atómicos, abundancias isotópicas, intensidades de emisión gamma, períodos de semidesintegración y secciones eficaces de las reacciones estándar utilizadas que, si son consignados adecuadamente, aseguran la futura actualización de los primeros a partir de nuevas mediciones de los segundos.

En un reciente trabajo [Cohen, Fornaciari Iijadica, Furnari y Ali Santoro, 2011] se han aplicado los conceptos aquí vertidos al proceso de renormalización de las secciones eficaces de las reacciones nucleares $^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$; $^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$; $^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$ y $^{64}\text{Zn}(n,p)^{64}\text{Cu}$.

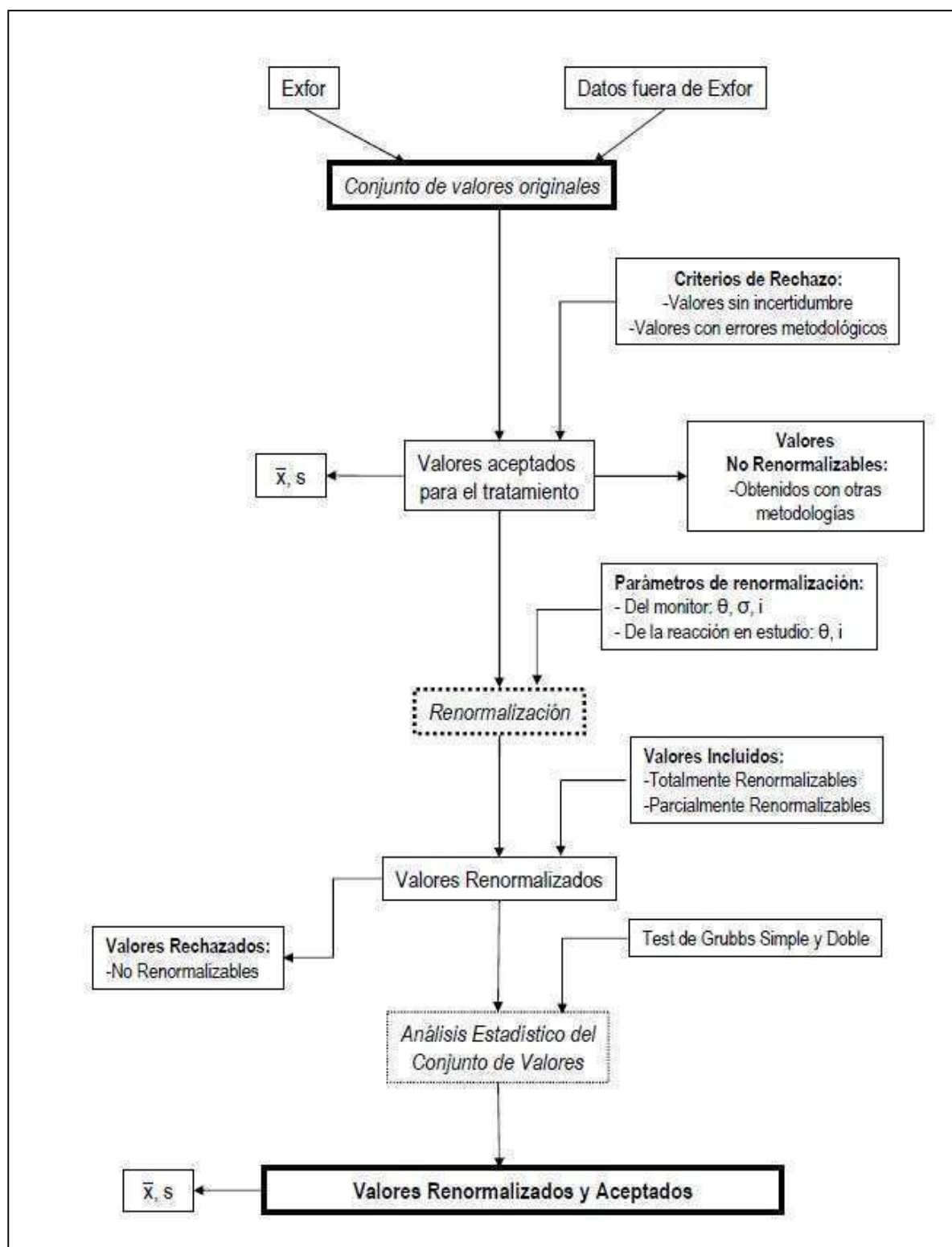
Para concretar las renormalizaciones fue necesario primero analizar la consistencia de los valores publicados para las secciones eficaces disponibles, así como investigar la influencia de los datos científicos que participan en la determinación de estas secciones eficaces, por ejemplo, los factores temporales como los tiempos de decaimiento y de medición, rara vez consignados en las publicaciones, pueden jugar un papel importante al momento de calcular factores de corrección e incertidumbres. Este tópico se trató en las secciones 6.3.4 y 6.3.7.

De todo el estudio realizado, surgió la idea de agrupar los datos en función de la posibilidad de su renormalización según la disponibilidad de parámetros en *totalmente renormalizables*, *parcialmente renormalizables* o *no renormalizables*. Desde un punto de vista estricto, sólo los datos totalmente renormalizables deberían ser conservados y recopilados en tablas; sin embargo, muchas veces es necesario optar por una solución de compromiso que contempla la conservación de aquellos que no cumplen este requisito, debido a la escasez o la ausencia de mejores valores.

6. Evaluación y manejo de datos nucleares

El proceso de renormalización incluye el esquema general para la renormalización de secciones eficaces de reacción se indica en la figura 6.4., desarrollado por las primeras autoras de la publicación antes citada (Ali Santoro y Fornaciari Iljadica).

Figura 6.4.: Esquema del proceso de renormalización [Cohen, Fornaciari Iljadica, Furnari y Ali Santoro, 2011]



6.4.2. Renormalización de las constantes nucleares determinadas en esta Tesis

Tal como consta en esta Tesis, a lo largo de varios años se ha trabajado en la determinación de las constantes nucleares de los isótopos del germanio y se ha propuesto a este elemento como monitor multi-isotópico integral del flujo neutrónico [Furnari y Cohen, 1994b, Furnari, Cohen et al. 1997].

Los comparadores multi-isotópicos tienen la ventaja de permitir medir simultáneamente las distintas componentes del flujo neutrónico por irradiación de un solo elemento. La propuesta del germanio como monitor integral se sustenta en la calidad de los datos disponibles de sus parámetros de activación, en especial de las secciones eficaces involucradas. Las reacciones nucleares de interés son: $^{74}\text{Ge}(n,\gamma)^{75}\text{Ge}$, $^{76}\text{Ge}(n,\gamma)^{77}\text{Ge}$ y $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$. Para las dos primeras existen datos confiables de tablas; en el caso de la última, se ha determinado un nuevo en el contexto de esta Tesis [Furnari y Cohen, 1994a].

Continuando con las determinaciones de las constantes nucleares del germanio, también se han determinado las secciones eficaces de dos reacciones nucleares umbral: $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$ y $^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$, hasta el día de hoy los únicos valores existentes en la literatura [Cohen, Furnari et al., 1996a; EXFOR, 2011]

En esta sección se efectúa el análisis de la validez del concepto de trazabilidad y la posibilidad de la renormalización de valores de secciones eficaces publicados de las tres reacciones nucleares umbral sobre isótopos del germanio: $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$, $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$, $^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$, motivo de una publicación reciente [Ali Santoro, Fornaciari Iljadica, Furnari y Cohen, 2011].

La renormalización comienza con la recopilación de los valores originales publicados. En el ámbito de los datos nucleares, el Organismo Internacional de Energía Atómica ha generado la base de datos Exfor, que recopila los valores experimentales de diversas magnitudes (EXFOR, 2011), entregando un informe de cada publicación, que permite disponer de los datos más relevantes. Esta base de datos se encuentra en continua actualización, aunque es necesario también realizar búsquedas externas a ella, ya que suele haber omisiones.

Una vez obtenido el conjunto de valores originales, cada uno debe ser analizado con el objeto de decidir su aceptación o no para el tratamiento. El criterio que se emplea en esta etapa es rechazar los valores que no informan incertidumbre y aquellos que tienen errores metodológicos; datos obtenidos mediante métodos no compatibles con los contemplados en este trabajo, a los que se hará referencia más adelante, resultan, sólo desde ese punto de vista, no renormalizables y son también excluidos. Para el conjunto resultante se calcula su promedio y su desvío estándar.

La actualización a partir del proceso de renormalización se lleva a cabo teniendo en cuenta las ecuaciones que debieron emplearse para la obtención del dato original, de tal manera que sean contemplados los valores nuevos de los parámetros de cálculo seleccionados y cancelados los previos. Cuando el flujo neutrónico es determinado empleando más de un monitor, o más de una radiación es medida para un mismo radionucleido, se calculan factores de renormalización promedio para cada magnitud. El conjunto resultante, que contiene sólo los datos totalmente renormalizados y eventualmente los que permitieron una renormalización parcial, es analizado mediante los tests estadísticos de Grubbs simple y doble, siguiendo las

recomendaciones de la norma ISO 5735-2 [ISO, 1994], para descartar valores (o pares de valores) aberrantes y detectar aquellos que son dudosos, susceptibles de ser rechazados. La coherencia intrínseca de los nuevos datos se mantiene a partir de asignarles la misma cantidad de cifras significativas que las consignadas en los valores de partida.

Finalmente, los datos renormalizados y aceptados conforman el conjunto definitivo de valores para el cual se calcula su promedio y desvío estándar. Idealmente, este desvío estándar debería resultar menor que el calculado previamente, por remitir a un conjunto uniforme de valores de referencia; sin embargo, en muchos casos no resulta así. Entre las posibles razones que explicarían esta situación se encuentran los factores temporales, dependientes del período de semidesintegración y difícilmente renormalizables, tal como se adelantó; el uso de diferentes tipos y generaciones de detectores; los distintos métodos de tratamiento de espectros empleados y, en algunos casos, el empleo de separaciones radioquímicas, por oposición a los métodos puramente instrumentales.

Más allá de lo expuesto, cabe mencionar que es prácticamente imposible operar sobre las incertidumbres de los valores originales, entre otros factores porque difícilmente se expresan en forma dividida los aportes aleatorios y sistemáticos involucrados en los cálculos iniciales de incertidumbres. Ante tal situación, una solución contingente, aún cuando no completamente rigurosa, es mantener para el nuevo valor el error relativo del dato histórico.

La metodología presentada contempla la renormalización de secciones eficaces determinadas por activación neutrónica y métodos relativos. Las ecuaciones empleadas y sus aclaraciones son las planteadas en la sección 3:

$$A_0 = \frac{m \theta N_A}{W} \sigma \Phi S \quad (\text{ver ec. 3.1})$$

Debe considerarse además que la actividad como tal se determina a partir de la velocidad de conteo, según la ecuación:

$$A_0 = \frac{C D M}{t_v \varepsilon_\gamma i_\gamma} \quad (\text{ver ec. 3.2})$$

Como se ve, la sección eficaz puede ser calculada empleando datos de tablas y determinando la eficiencia de medición y el flujo neutrónico durante la irradiación. Para esto último se irradia simultáneamente otra muestra, que actúa de monitor y permite calcular el flujo, mediante la ecuación (3.1).

Combinando las ecuaciones (3.1) y (3.2) resulta:

$$\sigma = \frac{C_p t_{v,m} \varepsilon_{\gamma,m}}{C_m t_{v,p} \varepsilon_{\gamma,p}} \cdot \frac{D_p M_p}{D_m M_m} \cdot \frac{S_m}{S_p} \cdot \frac{m_m W_p \theta_m i_{\gamma,m} \sigma_m}{m_p W_m \theta_p i_{\gamma,p}} \quad (\text{ec. 6.1})$$

donde los subíndices p y m se refieren respectivamente al *producto* de la reacción en estudio y al *monitor* empleado para la determinación del flujo.

6. Evaluación y manejo de datos nucleares

La ecuación (6.1), que expresa la fórmula de cálculo necesaria para la determinación de una sección eficaz, establece también las magnitudes aplicables a la renormalización.

En el trabajo antes referido [Cohen, Fornaciari Iljadica, Furnari y Ali Santoro, 2011] se analizaron los parámetros de renormalización de importancia, relacionados con la determinación de secciones eficaces, y se encontró que son cinco las magnitudes de relevancia: abundancia isotópica e intensidad de la radiación medida, tanto del monitor como de la reacción en estudio, y la sección eficaz del monitor.

Sobre la base de esta caracterización se seleccionaron los parámetros para la realización de la renormalización. Los datos de abundancias isotópicas fueron extraídos de la última versión de las tablas publicadas por IUPAC [Ídem, 2011b]. Las intensidades de las radiaciones emitidas, toda vez que fue posible, fueron tomadas de las informadas por el BIPM [Monographie BIPM-5, 2010], en caso contrario, de la base de datos NUDAT2 [NUDAT, 2011]. Las secciones eficaces de los monitores corresponden a las compiladas por Baard y colaboradores [Baard et al., 1989], excepto en el caso de las reacciones sobre titanio, cuyos valores fueron recientemente renormalizados en un trabajo derivado de esta Tesis [Cohen, Fornaciari Iljadica, Furnari y Ali Santoro, 2011].

Los datos originales encontrados para las reacciones estudiadas figuran en la Tabla 6.6. Para el único valor de la sección eficaz de la reacción $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$ Exfor informa (3,1+/-0,3) mb, truncando arbitrariamente la última cifra informada por los autores. Esta situación, sumada al hecho de que en algunas ocasiones datos informados no son incluidos en la base de datos (típicamente abundancias isotópicas, como también se da en el único valor de la reacción sobre ^{74}Ge), advierte sobre la importancia de consultar, siempre que sea posible, las publicaciones originales, tal como fue planteado oportunamente (sección 6.3.5).

Tabla 6.6.: Valores originales publicadas

Reacción	Referencia	Valor (mb)	Incertidumbre (mb)
$^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$	Cohen et al., 1996	3,10	0,30
$^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$	Rochlin, 1959	< 0,01	n/d
	De Neve et al., 1966	0,044	0,007
	Furnari et al., 1994	0,0959	0,0049
$^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$	Cohen et al., 1996	0,00938	0,00059

n/d: Dato no disponible

En el caso de la reacción $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$ existen tres valores en la literatura. Rochlin informa un valor máximo sin incertidumbre [Rochlin, 1959], y de acuerdo a los criterios ya descritos no fue aceptado para su tratamiento. El valor determinado en el contexto de esta Tesis lamentablemente no aparece citado en Exfor, si bien fue publicado en una reconocida revista [Furnari y Cohen, 1994a].

6. Evaluación y manejo de datos nucleares

La Tabla 6.7. muestra los valores originales de los parámetros de renormalización. En todos los casos fue posible consultar los trabajos publicados e incluir en el análisis los datos omitidos por Exfor.

Tabla 6.7: Valores originales de los parámetros de renormalización

Reacción	Referencia	Producto			Monitor						
		E_γ [keV]	i_γ [%]	θ [%]	Reacción	E_γ [keV]	i_γ [%]	θ [%]	σ [mb]		
$^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$	Cohen y Furnari, 1996a	1039,3	0,65	21,23	$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	889,3	99,9840	8,0	11,8		
						1120,5	99,9870				
					$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	159,4	68,3	7,3	73,8	0,307
						983,5	100,0				
						1037,5	97,5				
1312,1	100,0										
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	810,8	99,44	68,077	111							
$^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$	Furnari y Cohen, 1994a	834,08	95,63	27,66	$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	889,3	99,9840	8,0	11,8		
						1120,5	99,9870				
					$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	159,4	68,3	7,3	73,8	0,307
		983,5	100,0								
		1037,5	97,5								
		1312,1	100,0								
	$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	$^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$	834,8	99,975	100	0,258					
		834,8	99,975	5,8	81,7						
De Neve et al., 1966	630	n/d	27,37	$^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$	*	*	95,1	65			
	834	n/d									
$^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$	Cohen y Furnari, 1996a	595,9	91,4	35,94	$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	889,3	99,9840	8,0	11,8		
						1120,5	99,9870				
					$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	159,4	68,3	7,3	73,8	0,307
		983,5	100,0								
		1037,5	97,5								
		1312,1	100,0								
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	810,8	99,44	68,077	111							
2353,6	44,5										

* No aplicable

n/d: dato no disponible

6.4.3. Resultados y discusión

Los datos de secciones eficaces renormalizados se indican en la Tabla 6.8. La cantidad de datos existentes para cada reacción no permite la realización del análisis estadístico para rechazo de valores. Como puede observarse, los valores son totalmente renormalizables, con la única excepción del valor de De Neve y colaboradores, que lo es parcialmente. Como se observa, este último valor es muy discrepante con el nuestro.

Tabla 6.8. Valores Originales y Renormalizados

Reacción	Referencia	Valor Original		Valor Renormalizado	
		Valor (mb)	Incertidumbre (mb)	Valor (mb)	Categoría
$^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$	Cohen y Furnari, 1996a	3,10	0,30	3,23	Total
$^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$	Furnari y Cohen, 1994a	0,0959	0,0049	0,0958	Total
	De Neve et al., 1966	0,044	0,007	0,044	Parcial
$^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$	Cohen y Furnari, 1996a	0,00938	0,00059	0,00928	Total

La discrepancia observada en el caso de la reacción $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$ podría tal vez explicarse tomando en cuenta las diferencias metodológicas en la generación de cada uno de los datos. La determinación realizada para esta Tesis se llevó a cabo empleando detectores de alta resolución. Por su parte, el grupo de De Neve realizó una separación radioquímica no cuantificada en detalle y usaron detectores de baja resolución. Con respecto a esta separación, los autores afirmaron que es cuantitativa aunque sin demostrarlo. Una recuperación insuficiente conduciría a un valor numérico menor. Esta situación tendería a sugerir que nuestro valor es más confiable.

Con respecto a las reacciones sobre ^{70}Ge y ^{74}Ge , la renormalización conduce a valores que difieren de los originales en aproximadamente 3 % y 1 %, respectivamente.

En conclusión, la aplicación descrita representa un modelo de tratamiento de datos tendientes a mantener su calidad y asegurar su perdurabilidad en el tiempo, más aún por cuanto refiere a valores muy escasos o únicos.



6.5. Repercusiones de algunas publicaciones emanadas de esta Tesis

6.5.1. El concepto de trazabilidad aplicado a los datos nucleares

Como se comentó en la sección El desarrollo realizado en esta Tesis del concepto de trazabilidad aplicado al manejo de datos nucleares y las reglas asociadas a su aplicación, así como la selección y evaluación de datos nucleares han sido objeto de varias publicaciones entre 1995 y 2005 [Furnari y Cohen, 1995a; 1998 y 2005].

En particular, la publicación de 1998 fue citada y comentada en uno de sus artículos por uno de los investigadores más renombrados en el campo del análisis por activación neutrónica, el Prof. Frans De Corte, del Laboratory of Analytical Chemistry, Institute for Nuclear Sciences, University of Gent, Bélgica [De Corte, 2000].

Previamente, durante la presentación oral de este mismo tema (MTAA-10, Bethesda, Maryland, EEUU) en abril de 1999, y ante la presencia del Dr. I. M. Cohen, el Prof. De Corte realizó un auspicioso comentario acerca de la aplicación del concepto de trazabilidad a los datos nucleares, adhiriendo al mismo y afirmando que las constantes k_0 que su grupo publica son trazables

Se transcribe a continuación el párrafo dedicado al concepto de trazabilidad de datos de tabla y su aplicación a los métodos paramétricos de Análisis por Activación Neutrónica (AAN), extraída de la publicación antes mencionada de F. De Corte de 2000 (pág. 159):

In 1998, FURNARI and COHEN¹¹ discussed, in the context of NAA, the application of the concept of traceability to the management of nuclear data.

In any method of NAA, they identified steps that imply the use of some kind of data from literature: these include time-dependent corrections (involving half-lives) and corrections for geometrical configuration of samples, comparators and standards, such as neutron self-shielding (involving cross sections, resonance parameters etc.), attenuation of measured radiation (involving attenuation coefficients) and summing effects (involving photon emission probabilities). When considering the transition from comparator-type to parametric NAA (in other words. using less or no comparators, resulting in the need for using more data from tables), the following set of data is involved:

- *in the ko-method: ko-constants; resonance to thermal cross section ratios;*
- *in the traditional parametric method: relative atomic masses; isotopic abundances; emission probabilities of the radiations: cross sections; resonance integrals, Avogadro's number. In view of the above, and following the authors' opinion that traceability of data in practice can be interpreted as the possibility of renormalization, there is no doubt that in this respect ko-NAA (with its well documented nuclear data library) is perfectly traceable, whereas this is not at all the case for parametric (absolutely standardized) NAA, as for instance demonstrated in Reference 21.*

.....

11- J. C. FURNARI, I. M. COHEN, *Appl. Radiation Isotopes*, 12 (1998) 1523.

Traducción:

En 1998, FURNARI y COHEN¹¹ discutieron, en el contexto de NAA, la aplicación del concepto de trazabilidad al manejo de datos nucleares. En todo método de AAN, ellos identificaron los pasos que implican el uso de algún tipo de datos de la literatura: éstos

incluyen correcciones dependientes del tiempo (que involucran a los períodos de semidesintegración) y correcciones por la configuración geométrica de muestras, comparadores y estándares, tales como el autoapantallamiento de neutrones (involucrando a secciones eficaces, parámetros de la resonancia, etc), atenuación de la radiación medida (que involucra a los coeficientes de atenuación) y efectos suma (que involucran probabilidades de emisión de fotones). Cuando se considera la transición de AAN con comparadores a AAN paramétrico (es decir, usando menos o ningún comparador, lo que resulta en la necesidad de utilizar más datos de tablas), está involucrado el siguiente conjunto de datos:

- *En el método del k_0 : constantes k_0 ; relaciones integrales de resonancia/sección eficaz térmica;*
- *En el método tradicional paramétrico: masas atómicas relativas; abundancias isotópicas; probabilidades de emisión de radiaciones; secciones eficaces, integrales de resonancia, número de Avogadro.*

En vista de lo anterior, y siguiendo la opinión de los autores acerca de que la trazabilidad de los datos en la práctica puede interpretarse como la posibilidad de renormalización, no hay duda de que en este sentido el método de k_0 en AAN (con su biblioteca bien documentada de datos nucleares) es perfectamente trazable, mientras que éste no es, de ninguna forma, el caso de los métodos paramétricos (estandarizados en forma absoluta) de AAN, como se demostró, por ejemplo, en la referencia 21

Por otra parte, las tablas de valores de k_0 generadas por el equipo del Prof. De Corte han sido actualizadas, ampliadas y publicadas en distintas ocasiones. Finalmente fueron compiladas en el marco del proyecto de IUPAC 2001-075-1-500 [Kolotov y De Corte, 2004] e instaladas en un archivo Access que se puede descargar y utilizar libremente. Esa base de datos es la que menciona De Corte en su artículo como una “biblioteca bien documentada” de valores de k_0 . Lamentablemente no hay muchos investigadores que aporten otros valores de k_0 , por lo que no se pueden comparar y hacer evaluaciones de consistencia.

En la descripción del proyecto que figura en la página Web de IUPAC (<http://www.iupac.org/web/ins/2001-075-1-500>) se encuentra el siguiente párrafo:

The above k_0 -NAA library contains experimentally measured k_0 -factors, and Q_0 -values can, by introducing values for molar masses, isotopic abundances and absolute gamma-ray intensities (emission probabilities) retrieved from up-to-date compilations [IUPAC; ENSDF], be converted to a consistent and traceable data set of (n,g) activation cross-sections (s) and resonance integrals (I).

Más abajo afirma además:

The architecture of the database supports traceability of future data updating or appending, which implies easy recomputation of analytical data using any set of data, either the latest or previous ones.

Con esta última frase, los coautores del mencionado proyecto de IUPAC (V. P. Kolotov y F. De Corte), mencionan el concepto de “trazabilidad que permite la renormalización”, tal como fue mencionado por De Corte en su artículo antes citado, quien a su vez, como se mostró, lo adoptó de uno de los trabajos publicados surgidos de esta Tesis.

6. Evaluación y manejo de datos nucleares

Se ha realizado en aquel momento y en la actualidad (julio de 2011), una exhaustiva búsqueda en la base bibliográfica INIS, acerca de la eventual publicación, previa a 1998, del concepto de trazabilidad de datos de tabla y su consecuente renormalización.

Se han encontrado varios trabajos en los que se aplica la herramienta de renormalización, pero en todos los casos independientemente del concepto de trazabilidad. Por ejemplo, en el INDC-NDS-0218 [Schwerer y Okamoto, 1989], y en el IAEA-TECDOC-1211 [IAEA, 2001], ambas publicaciones del Organismo Internacional de Energía Atómica, se mencionan renormalizaciones de datos de tabla, como una necesidad para sustentar la calidad de los mismos. También es una práctica usual en tablas muy conocidas como las de Gryntakis.

Como ejemplo, se cita el siguiente párrafo del TECDOC-1211, en que se habla de “confiabilidad” de datos nucleares:

Extensive literature surveys were performed and all the data were compiled. The reliability of those data was checked. In several cases renormalisation of the data was necessary.

En general se dice que “los autores realizan sus propias renormalizaciones”, o bien los “recopiladores realizan renormalizaciones” sobre la base de nuevos valores publicados. Acerca de esto último, el concepto de trazabilidad y renormalización desarrollado en los trabajos emanados de esta Tesis va más allá, refiriéndose además a la posibilidad de que el usuario podría hacer sus propias renormalizaciones si los autores indicaran el origen de los datos empleados en los cálculos, sin esperar nuevas publicaciones de tablas.

Por su lado, y como es sabido, el concepto de trazabilidad se ha desarrollado y aplicado inicialmente casi en forma exclusiva para patrones de medición y luego para mediciones en general, pero la búsqueda arroja que hasta 1995-1998 nunca se había extendido el concepto al manejo de datos de tablas. En la actualidad el concepto de trazabilidad se aplica hasta en el ámbito periodístico. Ya se habla de trazabilidad de noticias y de fuentes de información.

En el NPL Report IR 6, del National Physical Laboratory, Reino Unido [Pearce, 2008], se menciona la trazabilidad de datos nucleares. Su introducción expresa:

This report is intended to represent a guide to traceable nuclear decay data for use in radiometric assay.

Y más adelante:

The following are the nuclear decay data sources recommended by NPL. These datasources have been selected on the basis of technical quality, traceability of the data to published measured data and the degree to which the datasources are recognised internationally.

A lo largo del Report IR 6 se hacen varias referencias a la trazabilidad de los datos y su aplicación “cuando ésta sea requerida”, sin especificar el caso de las renormalizaciones ni otros casos en que sea necesaria, quizás dándolo por sabido por los usuarios. Al respecto del enfoque en los usuarios, es de destacar la siguiente frase extraída de dicho Report (pág. 4), referida a las Nuclear Wallet Cards [Tuli, 2005]:

The data contained therein are abstracted from the ENSDF database. For the purposes of traceability users are advised to refer instead to the parent databases, NUDAT or NSDF.

6. Evaluación y manejo de datos nucleares

Por su parte, en la publicación INDC(NDS)-0500, del Organismo Internacional de Energía Atómica [Wickham, 2008], mencionan a la trazabilidad de los datos como sinónimo de “auditabilidad” (pág 11): *Traceability of the data (auditability)*; y se refieren a ella como un atributo del aseguramiento de la calidad de los datos (pág 8), haciendo mención a la utilidad para los usuarios:

Categorisation of data in terms of the competency of its source, its traceability / auditability, the appropriateness of the material tested etc., with the intent of providing future users with an objective and justified assessment of the data's relative worth.

Otra publicación interesante es la de Molnár [Ídem, 2000], en la que se habla con cierto detalle de la trazabilidad de datos:

There are some general requirements with respect to any data that are also in place in the present context. Traceability of the data source is essential, in that we want to understand where the data have come from and how reliable they are. This requirement is usually fulfilled when either professionally evaluated, well documented data libraries or recommended standard values are used.

A priori, no se puede vincular este artículo con la publicación de Furnari y Cohen de 1998, pero se hace notar que G. L. Molnár se desempeña en el Laboratory of Analytical Chemistry, Institute for Nuclear Sciences, el mismo que ha colaborado con el grupo de De Corte en diversas oportunidades. Además, es sugestivo el uso de la frase “*well documented nuclear data library*”, casi la misma que utiliza De Corte en su publicación de 2000.

En su trabajo, Molnár también afirma lo siguiente:

Old data may have been replaced by more precise new values, therefore it is advisable to look for the latest data compilations.

Como ya se hemos puntualizado, esto es considerado por nosotros un error en el incurren muchos investigadores. La herramienta de la renormalización permite rescatar del pasado excelentes determinaciones experimentales, simplemente actualizando el conjunto de valores de base que fue utilizado en el cálculo.

En otro trabajo [Lindstrom, 2006], sobre requerimientos de datos en ciencias nucleares, se plantea la aplicación de sistemas de gestión de la calidad y la trazabilidad al manejo de datos:

With the growing importance of formal quality systems such as ISO/IEC 17025, the issue of verifiable computations from traceable data is becoming more widely appreciated.

Y más adelante, citando a Molnár:

Quality measurements require that numerical data used in calculations be authoritative and that their uncertainties be taken into account in the overall error budget. As MOLNÁR pointed out, the best way to be sure of this is to ensure that nuclear data are traceable to the Evaluated Nuclear Structure Data File (ENSDF), a professionally maintained international compilation.

En referencia a otra publicación del NIST [Montgomery, 1996], esta vez anterior a 1998, es interesante observar que, hablando sobre trazabilidad, no se menciona su aplicación a los datos de tabla, sino sólo a los patrones de medida, como era su concepción clásica de

entonces. Se hace notar que en la trazabilidad de patrones de medida, la trazabilidad de datos de tabla está claramente involucrada.

Por su parte, Birattari et al. [Ídem, 2001] en su publicación INFN/TC-01/22, del Istituto Nazionale di Fisica Nucleare, y aludiendo al antes citado IAEA-TECDOC-1211, dedican una sección entera (nominada 8.1) a la trazabilidad de los datos nucleares, citando todas las fuentes de origen de los datos empleados.

Como último ejemplo, se cita la Tesis de Maestría en Radioquímica de Segovia [2005], en el que cita explícitamente los trabajos de Furnari y Cohen de 1998, (pag. 55), y de Cohen y Furnari, 1999 (pag. 52)

Volviendo al artículo inicialmente mencionado de F. De Corte, además de destacar la repercusión que tuvo la publicación sobre trazabilidad y renormalización surgida de los desarrollos de esta Tesis, resulta interesante realizar un par de comentarios adicionales.

En primer lugar, no es cierto que los métodos paramétricos tradicionales no sean trazables, puesto que se puede establecer trazabilidad y consistencia, así como renormalizar los valores de varias de las constantes involucradas, si los autores suministraran en sus trabajos los datos necesarios.

Con respecto a la afirmación de De Corte respecto de la trazabilidad de los factores k_0 , es necesario aclarar que, tal como se expuso antes, eso sería posible sólo si los autores publicaran el conjunto de valores de referencia utilizados o su fuente. En el caso de la base de datos electrónica compilada por De Corte e instalada en la página web de IUPAC, no todos los datos están disponibles, por lo que, a priori, sólo el equipo de De Corte podría hacer las renormalizaciones

6.5.2. Uso universal de bases de datos unificadas y otros tópicos

Una de las premisas desarrolladas en esta Tesis es la conveniencia de utilizar universalmente bases de datos unificadas como un medio para disminuir la dispersión de resultados comparables entre diferentes investigadores, especialmente cuando se refieren a ejercicios de intercomparación o a renormalizaciones de datos de tablas.

La principal base de datos que tiende al uso universal es la compilación de datos de decaimientos de radionucleidos que forma parte de la tabla de nucleidos elaborada por el Decay Data Evaluation Project (DDEP) [Monographie BIPM-5, 2011], que reúne el esfuerzo de más de 25 investigadores de 7 países. Este proyecto se mantiene en forma permanente en el marco del BIPM y del OIEA, sin duda los máximos organismos internacionales rectores en lo que se refiere a Metrología y Tecnología Nuclear respectivamente.

Las reglas desarrolladas en el DDEP, claramente establecen que los nuevos valores obtenidos de una constante no reemplazan a los anteriores, sino que se agregan al conjunto de datos experimentales históricos que periódicamente son revisados (y renormalizados si es necesario) y finalmente son promediados adecuadamente en forma ponderada, para obtener un valor recomendado.

6. Evaluación y manejo de datos nucleares

Es interesante hacer notar que en la página Web de presentación de la Monographie 5 del BIPM (<http://www.bipm.org/en/publications/monographie-ri-5.html>) se realiza la siguiente observación:

Although other data sets may still be used when evaluating radionuclide activity, use of this common, recommended data set should help to reduce the uncertainties in activity evaluations and lead to more coherent results for comparisons.

Estas últimas afirmaciones, que son voz oficial del Bureau International des Poids et Mesures, son consecuencia de una recomendación que realicé personalmente durante una reunión del Non-Neutron Nuclear Data Working Group, durante el General Meeting of the International Committee for Radionuclide Metrology (ICRM) (Oxford, septiembre de 2005).

La recomendación fue **que se adopte oficialmente la base de datos de la Monographie 5 como única y universal**, en principio por parte de los países con delegados en el ICRM. Uno de los resultados de esta recomendación es que necesariamente debía aumentarse la consistencia de los resultados de las intercomparaciones de medidas de actividad entre los países intervinientes, puesto que al utilizar todos la misma base de datos, obviamente se eliminaría la innecesaria dispersión adicional causada por emplear datos provenientes de distintas tablas.

Esta recomendación fue plasmada en ICRM Newsletter, 2006 y ratificada en ICRM Newsletter 2010 y 2011 [ICRM, 2006, 2010 y 2011], transcripta a continuación:

6. At the General Meeting (Oxford, September 2005) of the International Committee for Radionuclide Metrology (ICRM) the Delegates formally approved the recommendation made by the Nuclear Data Working Group of using the DDEP evaluated decay data in all future nuclear data studies.

The 2009 ICRM Executive Board has renewed this recommendation, particularly in view of the drafting and refereeing work for the ICRM 2011 Conference.

Además, impusimos localmente esta base de datos como de uso oficial en la Comisión Nacional de Energía Atómica. Parece una recomendación obvia, pero no hay antecedentes de tales acciones. Como es sabido, es costumbre de los investigadores utilizar distintas tablas que ofrecen valores diferentes de las mismas constantes, generado de esa manera la variabilidad mencionada, que no responde a ningún aspecto de orden técnico.

Por último, el nuevo método para la determinación simultánea de los factores f y α fue citado en un reciente trabajo [Koster-Ammerlaan et al., 2008], en el que los autores adoptan la metodología de graficar $f(\alpha)$ vs. α , planteada por primera vez por nosotros en esta Tesis, para proponer un método mejorado, basado en otros monitores.

Por su parte, el grupo de investigadores de Perú mencionado en 5.4.1, con la colaboración del Dr. I. M. Cohen, ha publicado una reseña de la utilización del método del k_0 en el país hermano, en la que se explica en detalle y se cita la determinación simultánea de los factores f y α desarrollada en esta Tesis, mostrando interesantes avances en dicho método [Montoya et al., 2010].

6.5.3. Conclusiones

El concepto de trazabilidad aplicado al manejo de datos nucleares se puede generalizar a todo tipo de datos de tablas .

La trazabilidad permite la renormalización y actualización de los datos, acción que pueden realizar los usuarios de tablas si los datos necesarios están disponibles en la literatura.

Existen numerosas publicaciones en las que se menciona la renormalización como herramienta que mejora la “confiabilidad de los datos”. Existen otras en donde se plantea la trazabilidad de datos, todas ellas posteriores a nuestro trabajo de 1998.

En la actualidad se observan muchas publicaciones en las que se adoptan de manera aislada, pero no siempre en su totalidad, algunas de las recomendaciones que se han desarrollado en esta Tesis en forma sistemática y pretendidamente completa, acerca del correcto manejo de datos de tablas. Sólo las bases de datos del DDEP las toma en forma integral.

Como se observa, poco a poco se va generalizando la aplicación del concepto de trazabilidad al manejo de datos de tablas, citando ejemplos de institutos de indudable renombre, como el NPL del Reino Unido; el NIST de EEUU y los citados de Bélgica, Italia y Hungría.

Se puede afirmar, además, que el atributo de trazabilidad de una de las bases de datos de IUPAC, fue claramente adoptado a partir de uno de los conceptos y propuestas desarrollados en esta Tesis.



7. Consideraciones finales

La presente Tesis está enfocada en los datos nucleares, en particular aquellos del elemento germanio que revisten especial interés, así como sus aplicaciones analíticas. La diversidad de tópicos tratados obligó a enunciar conclusiones en ciertas secciones, con el objeto de darles completitud en sí mismas, pero esto no impide que se enumeren a continuación una serie de consideraciones finales, de carácter general, algunas de las cuales pueden ser reafirmaciones de las conclusiones precedentes.

De los diversos trabajos de esta Tesis, se puede decir que se ha llevado a cabo la determinación de más de veinte constantes nucleares entre secciones eficaces y factores k_0 , incluyendo trece nuevos rayos gamma con sus energías e intensidades y tres nuevas transformaciones β^- del ^{77m}Ge . Luego, se han desarrollado con éxito algunas aplicaciones analíticas. Estas determinaciones han generado doce trabajos, entre publicaciones en revistas nacionales e internacionales, en tablas de datos nucleares y presentaciones en congresos nacionales e internacionales.

En estas determinaciones se ha prestado especial cuidado en el diseño de los experimentos, para así lograr condiciones óptimas de exactitud y precisión. Con tal fin, se han desarrollado separaciones radioquímicas exitosas para aislar las especies a analizar, y se ha aplicado una metodología novedosa respecto del aseguramiento de la calidad de los datos a través de su trazabilidad, concepto éste que ha sido propuesto y desarrollado como consecuencia de esta Tesis. La metodología desarrollada para la determinación, evaluación, compilación y renormalización de datos ha permitido elaborar otros once trabajos más referidos a estos temas, publicados o presentados en congresos.

En consonancia con uno de los objetivos de esta tesis, se ha cuidado especialmente que cada afirmación o dato aquí volcados tengan el debido respaldo, a través de la evidencia experimental propia o mediante la correspondiente referenciación a la literatura científica, lo que ha llevado a la mención de más de 180 citas bibliográficas. Como puede apreciarse, este aspecto constituye en sí mismo una aplicación del concepto de trazabilidad.

Dentro del alcance inicial dado a esta Tesis, se ha postulado el empleo con fines analíticos de algunos de los datos obtenidos para el germanio, esto es, empleando ciertas metodologías del análisis por activación neutrónica, se determinaron concentraciones de varios elementos químicos en diversas muestras de materiales de referencia, utilizando al germanio y sus datos como base de referencia y comparación, llegando a resultados satisfactorios, con una excelente concordancia entre los valores determinados experimentalmente y certificados de los materiales de referencia empleados.

Es interesante hacer notar que el hecho de que los investigadores utilicen en sus publicaciones valores de diferentes tablas, en general distintos entre sí, introduce un factor de variabilidad adicional que de facto se incluye en la componente sistemática del cálculo de incertidumbres sin saberlo sus propios autores. Esto hecho se verifica palpablemente en una intercomparación de mediciones, calibraciones o determinaciones analíticas entre laboratorios, lo que fue advertido y demostrado en las publicaciones referidas a datos nucleares surgidas de esta Tesis.

A partir de estas consideraciones, y como miembro representante de Argentina ante el International Committee for Radionuclide Metrology (ICRM), tuve la oportunidad de recomendar en el ICRM-2005, Oxford, Reino Unido, el uso unificado de tablas, en particular las emanadas del Decay Data Evaluation Project (Monographie-5 del BIPM), lo cual ha sido tomado como recomendación propia del ICRM hacia los países miembros, reafirmado en sus congresos y ratificado en sus publicaciones posteriores [ICRM, 2006, 2010 y 2011]. Además, impusimos localmente esta base de datos como de uso oficial en la Comisión Nacional de Energía Atómica. Estos hechos configuran una contribución no menor de los conceptos y desarrollos presentados en esta Tesis.

Merece una mención especial el hecho de que una parte de esta Tesis fue llevada a cabo hace más de diez años, lo que obligó a estudiar específicamente su vigencia. Al respecto, se hace notar que a partir de la década del 90 hasta la actualidad, no se han verificado cambios cualitativos en los detectores que impliquen progresos en la resolución o en otros parámetros primarios que pudiesen mejorar la calidad de los resultados. Aun los programas más modernos de manejo de espectros gamma siguen utilizando los mismos algoritmos de cálculo de áreas. En cambio, se han incorporado mejoras en el tratamiento de las señales electrónicas (digitalización principalmente) y en la presentación visual de los programas de adquisición y manejo de espectros. Se adicionaron capacidades de compatibilidad instrumental, mayor velocidad de determinación y de cálculo; mayor capacidad de almacenamiento de espectros, y otros factores de orden secundario, que no afectan la calidad de los datos obtenidos.

En consecuencia, si se decidiera repetir actualmente las determinaciones realizadas en esta Tesis hace más de 10 años, la metodología y la calidad de los resultados serían básicamente las mismas. Por lo tanto, lo único que cupo realizar fue verificar la vigencia de los datos de tablas utilizados para el cálculo y proceder a su renormalización, lo cual es en sí misma una operación desarrollada in extenso en esta Tesis.

Sobre este particular y tomando en cuenta los hechos y aclaraciones antedichas, se procedió a investigar y profundizar en el proceso de renormalización, puesto que diferentes autores emplean metodologías y criterios muy disímiles, provocando en varias oportunidades una disminución en los parámetros de calidad y algunas veces casos generando inconsistencias entre los datos de tablas.

Se demostró en esta Tesis que la renormalización de cada uno los valores históricos de una dada sección eficaz lleva a los nuevos valores “actualizados”, que se espera que sean más consistentes entre sí y con otros valores análogos de secciones eficaces, siempre que estén todos renormalizados con el mismo conjunto de constantes y parámetros.

Con respecto a esto último, se observa que, en todos los casos, la incertidumbre de los promedios realizados con los valores renormalizados es menor que la incertidumbre de los promedios de los valores originales [Cohen et al., 2011]. Se verifica además que la mayoría de las constantes nucleares determinadas en esta tesis son las únicas o las últimas determinadas y están en plena vigencia en 2011.



8. Referencias bibliográficas

Achterberg, 1994: “Programa COBAL”

E. Achterberg, Centro Atómico Bariloche, no publicado

Ahmad, 1983: “Analysis and evaluation of thermal and resonance neutron activation data”

A. Ahmad

Ann. Nucl. Energy 10 (1983) 41-50

Albinsson, 1974: “Infinite-dilution resonance integrals”

H. Albinsson

En Handbook on Nuclear Activation Cross-Sections, pág. 15

IAEA Technical Report Series No.156. (Ver IAEA, 1974)

Ali Santoro, Fornaciari Iljadica, Furnari y Cohen, 2011: “Importancia de la trazabilidad de datos nucleares: aplicación a la renormalización de reacciones umbral sobre isótopos del germanio”

M. del C. Ali Santoro, M. C. Fornaciari Iljadica, J. C. Furnari, I. M. Cohen

Rumbos Tecnológicos (UTN – FRA), Volumen 3, páginas 85 - 93, 2011

Alian, 1973: “Thermal and epithermal neutron activation analysis using the monostandard method”

A. Alian, J. Born, J. I. Kim

J. Radioanal. Chem. 15 (1973) 535-546.

Applied Health, 2009: “Germanium-132”

<http://www.appliedhealth.com/nutri/page7000.php>

Arribére et al., 2005: “La caracterización del espectro neutrónico en un reactor nuclear y la determinación de datos nucleares”

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

Proyecciones 3, (2005) 37 - 48

Asimov, 1983: “La búsqueda de los elementos”

I. Asimov, Plaza & janes S.A. Barcelona, 1983. p.165

Baard et al., 1989: “Nuclear data guide for reactor neutron metrology”

J. H. Baard, W. L. Zijp, H. J. Noltenius.

Kluwer Academic Publishers, The Netherlands, 1989

Bate et al., 1961: “The radiochemistry of cobalt”

L. C. Bate y G. W. Leddicotte.

Oak Ridge National Laboratory - National Academy of Sciences - National Research Council - Nuclear Science Series - NAS-NS 3041. 1961

8. Referencias bibliográficas

BIPM, 2008: “International vocabulary of metrology - Basic and general concepts and associated terms (VIM)”
Working Group 2 of the Joint Committee for Guides in Metrology (JCGM/WG 2).
JCGM 200:2008

Birattari et al., 2001: “Thin-target excitation functions and optimised thick-target. Yields for $^{nat}\text{Mo}(p,xn)^{94g,95m,95g,96(m+g)}\text{Tc}$ nuclear reactions induced by protons from threshold up to 44 MeV. Radiochemical separation and quality control”
Claudio Birattari, Mauro Bonardi, Flavia Groppi y Enrico Sabbioni
Istituto Nazionale di Fisica Nucleare, INFN/TC-01/22, 2001

Blaauw et al., 1991: “An alternative convention describing the (n,γ) -reaction rate suited for use in the k_0 -method of neutron activation analysis”
M. Blaauw, P. Bode, H. J. Kim.
J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles 152, 2 (1991) 435

Blaauw, 2000: “The accuracy of k_1 -standardized INAA applied to a gold-lined well-type detector”
M. Blaauw.
J. Radioanal. Nucl. Chem, 245, 1 (2000) 185-188.

Bock, 1951. “Über die Trennung anorganischer Stoffgemische durch Verteilung zwischen zwei Lösungsmitteln
R. Bock.
Fresenius' Zeitschrift für analytische Chemie, Vol. 133, 1(1951) 110-135.

Browne et al., 1986: “Table of radioactive isotopes”
E. Browne, R. B. Firestone.
John Wiley and Sons, New York, 1986.

Brownlee, 1960: “The radiochemistry of vanadium”
J. L. Brownlee, Jr.
Oak Ridge National Laboratory - National Academy of Sciences - National Research Council - Nuclear Science Series - NAS-NS 3022. 1960

Brune y Jirlow, 1963: “Measurement of the resonance activation integrals of ^{58}Fe , ^{64}Zn , ^{68}Zn and ^{202}Hg ”
D. Brune, K. Jirlow
J. Nucl. Energy 17 (1963) 350.

Calamand, 1974: “Cross-sections for fission neutron spectrum induced reactions”
A. Calamand
Handbook of nuclear activation cross-sections, pág. 273.
IAEA Technical Report Series 156. Vienna, 1974 (Ver IAEA, 1974)

Canteach, 2003: “Reactor physics”
Canteach, Science & Reactor Fundamentals, CANDU reactors
Canadian Nuclear Safety Commission, Canadá, Training Course, 2003

Cantillo, 1992: “Standard and reference materials for marine science”

A. Y. Cantillo

National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA), Technical Memorandum NOS ORCA 68, third edition, 1992

CINDA, 2011: “CINDA (Computer index of neutron data): Bibliographical information on nuclear reaction data”

Nuclear Energy Agency, www.nea.fr/cinda/cindaora.cgi

Clayton, 1972: “Thermal capture cross sections and resonance integrals for the AAEC fission products library”

E. Clayton

Australian AEC, REP. AAEC/TM 619 (1972)

CODATA, 2010: “CODATA Internationally recommended values of the fundamental physical constants”

NIST. Latest values-2010.

<http://physics.nist.gov/cuu/Constants/index.html>

Cohen, 1982: “Aspectos metodológicos y desarrollo de técnicas de análisis por activación neutrónica de microconstituyentes en materiales de origen geológico”

I. M. Cohen.

Tesis doctoral. FCEyN, Universidad de Buenos Aires, 1982

Cohen et al., 1982: "Activation analysis of thallium by $^{203}\text{Tl}(n,2n)^{202}\text{Tl}$ reaction in nuclear reactors".

I. M. Cohen, S. M. Resnizky, G. B. Baró.

J. Radioanal. Chem. 72 (1982) 451

Cohen, 1991: “Analytical importance of some secondary and threshold reactions induced in nuclear reactors”

I. M. Cohen.

J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 148 (1991) 155.

Cohen, Furnari et al., 1992: “Determination of $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$ and $^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$ reaction cross-sections for a fission neutron spectrum”

I. M. Cohen, A. J. Kestelman, J. C. Furnari

Presentado en la Third International Conference on Nuclear and Radiochemistry, Viena, 7 a 11 de setiembre de 1992.

Posteriormente publicada en J. Radioanal. Nucl. Chem, Letters, 212 (1996) 353-359. (ver referencia Cohen, Furnari et al., 1996a)

Cohen, Furnari et al., 1993: “Determinación de la Sección Eficaz de la Reacción $^{31}\text{P}(n,\alpha)^{28}\text{Al}$, Promediada sobre un Espectro de Fisión ”

I. M. Cohen, M. A. Arribére, A. J. Kestelman y J. C. Furnari.

XXI Reunión Científica de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear, Mar del Plata, 8 a 12 de noviembre de 1993.

Cohen y Furnari, 1994: "La selección de constantes nucleares en el análisis por activación paramétrico"

I. M. Cohen, J.C. Furnari

XXII Reunión Científica de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear, Buenos Aires, noviembre de 1994.

Cohen, 1995a: "Considerations about the application of parametric methods of activation analysis in Latin America"

I. M. Cohen.

Proceedings of the Regional Workshop on Selected Topics about Applications of the k_0 Method and other Parametric Methods in Neutron Activation Analysis, Lima, Perú, 13 a 24 de marzo de 1995. Pág. 4 a 8.

Cohen, 1995b: "Availability and validity of nuclear data for threshold reactions"

I. M. Cohen.

Proceedings of the Regional Workshop on Selected Topics about Applications of the k_0 Method and other Parametric Methods in Neutron Activation Analysis, Lima, Perú, 13 a 24 de marzo de 1995. Pág. 131 a 137.

Cohen y Furnari, 1995a: "Análisis de selección de datos nucleares"

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

Proceedings of the Regional Workshop on Selected Topics about Applications of the k_0 Method and other Parametric Methods in Neutron Activation Analysis, Lima, Perú, 13 al 24 de marzo de 1995. Pág. 64 a 78.

Cohen, Furnari et al., 1995: "Un nuevo método para la determinación de los parámetros f y α en reactores nucleares"

I. M. Cohen, J. C. Furnari, E. H. Montoya, M. A. Arribére, A. J. Kestelman, B. Torres y P. Mendoza.

Proceedings of the Regional Workshop on Selected Topics about Applications of the k_0 Method and other Parametric Methods in Neutron Activation Analysis, Lima, Perú, 13 a 24 de marzo de 1995. Pág. 101 a 103.

Cohen, Furnari et al., 1996a: "Determination of $^{70}\text{Ge}(n,p)^{70}\text{Ga}$ and $^{74}\text{Ge}(n,p)^{74}\text{Ga}$ reaction cross-sections for a fission neutron spectrum"

I. M. Cohen, A. J. Kestelman, J. C. Furnari and M. A. Arribére.

J. Radioanal. Nucl. Chem, Letters, 212 (1996) 353 - 359.

Cohen, Furnari et al., 1996b: "A new method for simultaneous determination of f and α reactor parameters"

I. M. Cohen, J. C. Furnari, E. H. Montoya, M. A. Arribére, A. J. Kestelman, B. Torres, P. Mendoza.

Proceedings of the Second International k_0 Users Workshop. Ljubljana, Slovenia, 30 September - 3 October, 1996. Pags 95-97

Cohen y Furnari, 1999: "Considerations about the selection of nuclear data used in neutron activation analysis"

I. M. Cohen, J. C. Furnari

Appl. Rad. Isotopes, 50 (1999) 743-752

Cohen, Furnari et al. 1999: “Use of germanium as neutron flux monitor in k_0 based INAA under conditions of different f and α values”

I. M. Cohen, J. C. Furnari, E. H. Montoya, P. A. Mendoza, M. S. Ubillus, B. Torres.
10th International Conference on Modern Trends in Activation Analysis.
Washington, Estados Unidos, 19 al 23 de abril de 1999.

Cohen et al., 2006: “A method for fast determination of the α parameter in nuclear reactors”

I. M. Cohen, M. Arrondo, M. A. Arribére, M. C. Fornaciari Ijadic
Nuclear Science and Engineering 154, 110-117 (2006)

Cohen, Fornaciari Ijadic, Furnari y Ali Santoro, 2011: “The consistency of the data for neutron fission averaged cross – sections of threshold reactions”

I. M. Cohen, M. C. Fornaciari Ijadic, J. C. Furnari y M. Del C. Ali Santoro
Enviado a Applied Radiation and Isotopes

Covell, 1959: “Determination of gamma-ray abundance directly from the total absorption peak”

D.F. Covell

Anal. Chem. 31 (1959) 1785.

Debertin y Helmer, 1988: “Gamma spectroscopy with semiconductor detectors”,

K. Debertin, R.G Helmer

Ed. Nord Holland 1988

De Corte et al., 1969: “Reactor neutron activation analysis by a triple comparator method”

F. De Corte, A. Speeche, J. Hoste.

J. Radioanal. Nucl. Chem. 3 (1969) 205-215.

De Corte et al., 1971: “Activation analysis of high-purity silicon. III. Multi-element activation analysis: application of the triple comparator method”

F. De Corte, A. Speeche, J. Hoste

J. Radioanal. Chem. 9 (1971) 9-17

De Corte et al., 1979a: “Instantaneous α -determination without Cd-cover in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal neutron spectrum”

F. De Corte, L. Moens, A. Simonits, A. De Wispalaere, J. Hoste.

J. Radioanal. Nucl. Chem. 52 (1979) 295-304.

De Corte et al., 1979b: “Modification and generalization of some methods to improve the accuracy of α -determination in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal neutron spectrum”

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

J. Radioanal. Nucl. Chem. 52 (1979) 305-316.

De Corte et al., 1981: “The accuracy and precision of the experimental α -determination in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal reactor-neutron spectrum”

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

J. Radioanal. Nucl. Chem. 62 (1-2) (1981) 209-255.

De Corte et al., 1982: “The effect of the epithermal neutron flux distribution on the accuracy of absolute and comparator standardization methods in (n,γ) activation analysis”

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

J. Radioanal. Nucl. Chem. 72, Nr 1-2 (1982) 275-286.

De Corte et al., 1986: “Applicability of the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal spectrum representation and the effective resonance energy \bar{E}_r , in NAA”

F. De Corte, L. Moens, S. Jovanovic, A. Simonits, A. De Wispalaere.

J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles 102 (1) (1986) 37-57.

De Corte et al., 1987: “Accuracy and applicability of the k_0 -standardization method”

F. De Corte, A. Simonits, A. De Wispalaere, J. Hoste.

J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles 113 (1987) 145.

De Corte, 1987: “The traceability of the neutron activation analysis (NAA) k_0 -standardization method”

F. De Corte

J. Trace and Microprobe Techniques, 5 (2&3) (1987) 115-

De Corte et al., 1989: “ k_0 -measurements and related nuclear data compilation for (n,γ) reactor neutron activation analysis. IIIb Tabulation”

F. De Corte, A. Simonits.

J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles 133, 1 (1989) 43-130

De Corte et al., 1993: “Recent advances in the k_0 -standardization of neutron activation analysis: Extensions, applications, prospects”

F. De Corte, A. Simonits, F. Bellemans, M. C. Freitas, S. Jovanovic, B. Smodis, G. Erdtmann, H. Petri, A. De Wispalaere.

J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles 169 (1993) 125-158

De Corte, 2000: “ k_0 and comparator NAA: influences and interactions”

F. De Corte

J. Radioanal. Nucl. Chem., 245, 1 (2000) 157-161

De Corte, 2001a: “The updated NAA nuclear data library derived from the Y2K k_0 - Q_0 database”

F. De Corte

Third International k_0 -users Workshop. Bruges, Bélgica, 23-28 de septiembre de 2001.

Publicado en J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, 3 (2003) 493-499

De Corte, 2001b: “The standardization of standardless NAA”

F. De Corte

J. Radioanal. Nucl. Chem., 248, 1 (2001) 13-20

De Corte et al., 2003: “Recommended nuclear data for use in the k_0 standardization of neutron activation analysis”

F. De Corte, A. Simonits

Atomic Data and Nuclear Data Tables 85 (2003) 47-67

De Neve et al., 1966: “The $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$ and $^{72}\text{Ge}(n,\alpha)^{69m}\text{Zn}$ reactor cross-sections”

R. de Neve, D. de Soete, J. Hoste.

Radiochem. Acta 5 (1966) 188-192.

Drake, 1966: “A compilation of resonance integrals”

M. K. Drake

Nucleonics 24, No. 8 (1966), 108-111

Ehrlich y Rasberry, 1998: “Metrological timelines in traceability”

C. D. Ehrlich, S. D. Rasberry

J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. 103 (1998) 93-105

El Nimr et al., 1981: “Epicadmium neutron activation analysis (ENAA) based on the k_0 -comparator method”

T. El Nimr, F. De Corte, A. Simonits, J. Hoste.

J. Radioanal. Nucl. Chem. 67 (1981) 421-435

EXFOR, 2011: “Experimental nuclear reaction data”.

International Network of Nuclear Reaction Data Centres (NRDC), Nuclear Data Services, IAEA, 2011.<http://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm>

Farhan y Singh, 1989: “Nuclear data sheets for $A = 77$ ”

A. R. Farhan, S. Rab and B. Singh,

Nucl. Data Sheets 57 (1989) 223-261

Farhan y Singh, 1997: “Nuclear data sheets for $A = 77$ ”

A. R. Farhan and B. Singh,

Nucl. Data Sheets 81 (1997) 417-578

Forrest et al., 2009: “Handbook of activation data calculated using EASY-2007”

R. A. Forrest, A. Tabasso, C. Danani, S. Jakhar, A. K. Shaw

EURATOM/UKAEA Fusion. UKAEA FUS 552, 2009

Fujii et al., 1993: “Effect of organic germanium compound (Ge-132) on experimental osteoporosis in rats”

A. Fujii, N. Kuboyama, J. Yamane, S. Nakao, Y. Furukawa.

Gen Pharmacol 24:6 (1993) 1527-1532

8. Referencias bibliográficas

Furnari y Cohen, 1994a: "The fission neutron averaged cross-section of the $^{72}\text{Ge}(n,p)^{72}\text{Ga}$ reaction"

J. C. Furnari, I. M. Cohen, A. J. Kestelman.
Appl. Radiat. Isot. 45 (1994) 573-576.

Furnari y Cohen, 1994b: "Determination of aluminum and phosphorus in biological materials by reactor activation analysis using germanium as integral flux monitor and comparator"

J. C. Furnari, I. M. Cohen.
Edición especial de Biological Trace Element Research (1994), Vol 43-45, Number 1, 503-508. Editor: G. N Schrauzer. Humana Press Inc.

Furnari y Cohen, 1994c: "Consistencia y confiabilidad en datos nucleares: una aplicación al tratamiento y evaluación de secciones eficaces de reacciones inducidas por neutrones"

J. C. Furnari, I. M. Cohen.
XX Congreso Argentino de Química. Córdoba, noviembre de 1994.

Furnari y Cohen, 1995a: "Confiabilidad de datos nucleares: Una aplicación del concepto de trazabilidad"

J. C. Furnari, I. M. Cohen.
Proceedings of the Regional Workshop on Selected Topics about Applications of the k_0 Method and other Parametric Methods in Neutron Activation Analysis, Lima, Perú, 13 al 24 de marzo de 1995. pp. 53-59.

Furnari y Cohen, 1995b: "Estudio crítico sobre los valores de abundancias isotópicas y su implicancia en el análisis por activación paramétrico"

J.C. Furnari, I.M. Cohen.
Actas de la XXIII Reunión Científica de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear. Villa del Dique, Córdoba, 13 al 17 de noviembre de 1995.

Furnari, Cohen et al. 1997. "Utilización del germanio como comparador y monitor integral de flujo neutrónico en análisis por activación"

J. C. Furnari, I. M. Cohen, M. A. Arribére, A. J. Kestelman
4th Meeting on Nuclear Applications, Poços de Caldas, Brasil, 18 al 22 de agosto de 1997.

Furnari y Cohen, 1998: "Application of the concept of traceability to the management of nuclear data"

J. C. Furnari, I. M. Cohen.
Appl. Rad. Isotopes, 49, No. 12 (1998) 1523-1527

Furnari y Cohen, 2005: "Traceability and bases of consistent nuclear data"

J. C. Furnari, I. M. Cohen
8th International Conference on Nuclear Analytical Methods in the Life Sciences. Río de Janeiro, Brasil, 17 al 22 de abril de 2005.

FZ Karlsruhe, 1995: “Karlsruher Nuklidkarte”

G. Pfenning, H. Klewe-Nebenius, W. Seelmann-Eggebert †
Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Alemania, 6° Edición, 1995

FZ Karlsruhe, 2006: “Karlsruher Nuklidkarte”

J. Magill, G. Pfenning, J. Galy
Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Alemania, 7° Edición, 2006

Gao et al., 2007: “Gamma-ray interaction in Ge: A Monte Carlo simulation”

F. Gao, L. W. Campbell, R. Devanathan, Y. L. Xie, Y. Zhang, A. J. Peurrung, W. J. Weber
Nucl. Instr. and Methods in Physics Research B 255 (2007) 286-290

Garner, 1993: “What’s new in traceability”

E. L. Garner and S. D. Rasberry
Journal of Testing and Evaluation, vol 21, N° 6 (1993) 505-509

Gebauhr, 1965: “Ein Trennungsgang für die allgemeine Verwendung bei Aktivierungsanalysen“.

Von W. Gebauhr.
Radiochimica Acta 4, 4 (1965) 191-197

Goldman et al., 1968: “2200 m/s neutron absorption cross-sections”

D. T. Goldman, P. Aline, R. Sher, J. R. Stehn
Internal Report FFX-105, AB Atomenergi, Studvik, Sweden, 1968.

Green, 1986: “The isotopic composition of germanium in terrestrial samples”. M. D.

Green, K. J. R. Rosman and J. R. Laeter.
International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes, 68 (1986) 15-24

Gryntakis, 1979: “A compilation of the fission spectrum average neutron cross-sections for (n, α) reactions”

E. M. Gryntakis.
J. Radioanal. Nucl. Chem. 52, 1 (1979) 219-261

Gryntakis et al., 1983: “A compilation of resonance integrals from hydrogen to fermium“

E. M. Gryntakis, J. I. Kim
J. Radioanal. Chem. 76 (1983) 341-496

Gryntakis, 1986: ”Thermal neutron activation cross-sections and resonance-integrals“

E. M. Gryntakis
Nuclear Data Services. IAEA-NDS- 64. IAEA, 1986
También publicado en IAEA Technical Report Series No. 273., 1987

- Gryntakis et al., 1987:** “Thermal neutron cross-sections and infinite dilution resonance integrals”
E. M. Gryntakis, D. E. Cullen, G. Mundy.
En “Handbook on Nuclear Activation Data”, p. 199-256. IAEA Technical Report Series No. 273., 1987
- Handbook, 2010:** “CRC Handbook of Chemistry and Physics”
D. R. Lide, editor
90th Edition, CD-ROM version, 2010
- Heft, 1980:** “A consistent set of nuclear parameters values for absolute INAA”.
R. E. Heft
UCRL-80286, Rev 1. CONF-800477-1. Lawrence Livermore Laboratory, 1980.
- Hernández et al., 1997:** “Determinación de los parámetros f y α en el multiplicador neutrónico CS-ISCTN”
O. Hernandez, e. F. Herrera, m. Ixquiac, R. Contreras, G. Padrón, O. Díaz, R. Lopez, K. D'Alessandro, I. Alvarez P., M. V. Manso.
Centro de Información para la Energía Nuclear, CIEN-R CU9700459. La Habana, 1997
- Högdahl, 1965:** “Neutron absorption in pile neutron activation analysis. determination of copper and gold in silver”
O.T. Högdahl.
Radiochemical Methods of Analysis, Proceedings of a Symposium; Salzburg, 1964. Vol. I. 23. IAEA, Vienna (1965)
- Horibe, 1983:** “A new empirical rule for the estimation of fission neutron spectrum averaged cross-sections of the (n,p) and (n, α) reactions”
O. Horibe.
Ann. Nucl. Energy 10, 7 (1983) 359-373
- IAEA, 1974:** “Handbook of nuclear activation cross-sections”
IAEA Technical Report Series 156. Vienna, 1974
- IAEA, 1990:** “Biological and environmental reference materials for trace elements, nuclides and organic microcontaminants a survey”
E. Cortes Toro, R. M. Parr, S. A. Clements
IAEA/RL/128 (Rev. 1), Vienna, 1990
- IAEA, 1991.** “X-Ray and gamma-ray standards for detector calibration”
IAEA-TECDOC-619. Viena, 1991
- IAEA, 2007:** “Update of X ray and gamma ray decay data standards for detector calibration and other applications. Volume 2: Data selection, assessment and evaluation procedures”
IAEA - STI/PUB/1287, Viena, 2007

8. Referencias bibliográficas

ICRM, 2006: “ICRM Newsletter”

International Committee for Radionuclide Metrology, 2006

ICRM, 2010: “ICRM Newsletter”

International Committee for Radionuclide Metrology, 2010

ICRM, 2011: “ICRM Newsletter”

International Committee for Radionuclide Metrology, 2011

IEEE-1160, 1993: “IEEE Standard Test Procedures for High-Purity Germanium Crystals for Radiation Detectors”. IEEE Standard 1160-1993(R2006)

ISO, 1994: “Accuracy (trueness and precision) of measurement methods and results. Part 2: Basic method for the determination of repeatability and reproducibility of a standard measurement method”

International Organization For Standardization, International Standard ISO 5725-2 (1994).

IUPAC, 1991: “Isotopic compositions of the elements 1989”.

IUPAC Technical Report

Pure Appl. Chem., Vol. 63, No. 7 (1991) 991-1002.

IUPAC, 1994: “Atomic weights of the elements 1993”

IUPAC Technical Report

Pure Appl. Chem., Vol. 66, No. 12, pp. 2423-2444, 1994.

IUPAC, 2003: “Atomic weights of the elements: Review 2000”

J. R. Laeter, J. K. Böhlke, P. de Bièvre, H Hidaka, H. S. Peiser, K. J. R. Rosaman and P. D. P. Taylor.

IUPAC Technical Report.

Pure Appl. Chem., Vol. 75, No. 6 (2003) 683–800.

IUPAC, 2011a: “Atomic weights of the elements 2009”

M. E. Wieser and T. B. Coplen. ”

IUPAC Technical Report

Pure Appl. Chem., Vol. 83, No. 2, pp. 359–396, 2011.

IUPAC, 2011b: “Isotopic compositions of the elements 2009”

M. Berglund and M. Wieser.

IUPAC Technical Report

Pure Appl. Chem., Vol. 83, No. 2, pp. 397–410, 2011.

Kafala et al., 1994: “Testing of data evaluation methods”

S. I. Kafala, T. D. MacMahon, P. W. Gray

Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A 339 (1994) 151-157.

Kestelman et al., 1991: "Nuevas líneas gamma en el decaimiento de estados isoméricos del germanio"

A.J. Kestelman, M.A. Arribére, I.M. Cohen, J.C. Furnari.

LXXVI Reunión Científica de la Asociación Física Argentina, Tucumán, 1991.

Kestelman et al., 1993: "Estudio de la radiación gamma en el decaimiento del ^{77}Ge metaestable"

J. Kestelman, M. A. Arribére, I. M. Cohen, J. C. Furnari.

XXI Reunión Científica de la AATN, Mar del Plata, 9 al 12 de noviembre de 1993.

Kestelman, Cohen, Furnari et al., 2000: " γ rays from the β^- decay of $^{77}\text{Ge}^{\text{m}}$ "

A. J. Kestelman, M. A. Arribére, I. M. Cohen, E. Achterberg y J. C. Furnari

Physical Review C, Volume 61 (2000) 067304-1 a 4

Ver también

AIP Document No. E-PAPS:E-PRVCAN-61-015006

ftp://ftp.aip.org/epaps/phys_rev_c/E-PRVCAN-61-015006/

Klapdor-Kleingrothaus, 2004: "Search for neutrinoless double beta decay with enriched ^{76}Ge in Gran Sasso 1990–2003"

H.V. Klapdor-Kleingrothaus, I.V. Krivosheina, A. Dietz y O. Chkvorets

Physics Letters B, Volume 586, Issues 3-4, 29 April 2004, Pages 198-212

Knoll, 2000: "Radiation Detection and Measurement"

Glenn F. Knoll.

Ed. John Wiley & Sons, Inc. EE.UU., 3rd Edition, 2000. ISBN: 978-0-471-07338-3

Koester et al., 1987: "Neutron interactions with germanium isotopes and amorphous and crystalline GeO_2 ".

L. Koester, K. Knopf, W. Waschkowski.

Zeitschrift für Physik A, Atomic Nuclei 327 (1987) 129-136

Koster-Ammerlaan et al., 2008: "A new monitor for routine thermal and epithermal neutron fluence rate monitoring in k_0 INAA"

M. J. J. Koster-Ammerlaan, M. A. Bacchi, P. Bode, E. A. De Nadai Fernandes

Applied Radiation and Isotopes 66 (2008) 1964– 1969

Kolotov y De Corte, 2003: "An electronic database with a compilation of k_0 and related data for NAA"

V. P. Kolotov, F. De Corte

J. Radioanal. Nucl. Chem. 257, 3 (2003) 501-508

Kolotov y De Corte, 2004: "Compilation of k_0 and related data for neutron-activation analysis (NAA) in the form of an electronic database". IUPAC Technical Report.

V. P. Kolotov, F. De Corte

Pure Appl. Chem., Vol. 76, No. 10 (2004) 1921-1925.

IUPAC Project 2001-075-1-500, 2002-2004

<http://www.iupac.org/web/ins/2001-075-1-500>

Lindstrom, 2006: “Toolkits for nuclear science: Data and spreadsheets“

R. M. Lindstrom

J. Radioanal. Nucl. Chem. 270, 2 (2006) 335-337

Lindstrom, 2008: “Neutron irradiation in activation analysis: A new rabbit for the NBSR”

R. M. Lindstrom, R. Zeisler, E. A. Mackey, P. J. Liposky, R. S. Popelka-Filcoff, R. E. Williams.

J. Radioanal. Nucl. Chem. 278, 3 (2008) 665-669

Lund/LBNL, 1999: “The Lund/LBNL nuclear data search, Version 2.0”

S. Y. F. Chu, L. P. Ekström and R. B. Firestone.

Lawrence Berkeley National Laboratory, EE.UU. – Lund University, Suecia, 1999.

<http://nucleardata.nuclear.lu.se/nucleardata/toi/>

Maenhaut et al., 1971: “Determination of thermal and epithermal neutron fluxes with a single flux monitor”.

W. Maenhaut, F. Adams, J. Hoste.

J. Radioanal. Nucl. Chem. 9 (1971) 325-328.

Mannhart, 1968: “Isomere Wirkungsquerschnittsverhältnisse beim thermischen Neutroneneinfang im Bereich der $2p_{1/2}$ und $1g_{9/2}$ Schalenmodellzustände“.

W. Mannhart, H. K. Vonach.

Zeitschrift für Physik, Volume 210, Issue 1 (1968) 13-31

MedicineNet, 2011: “Germanium” www.medicinenet.com

Meierhofer et al., 2009: “Thermal neutron capture cross-section of Ge-76”

G. Meierhofer, P. Kudejova, L. Canella, P. Grabmayr, J. Jochum, J. Jolie.

European Physical Journal A: Hadrons and Nuclei Vol.40, p.61, 2009

Meierhofer et al., 2010: “Thermal neutron capture cross-section of Ge-76”

G. Meierhofer, P. Grabmayr, J. Jochum, P. Kudejova, L. Canella, J. Jolie.

Physical Review, Part C, Nuclear Physics Vol.81, p.027603, 2010

Moens et al., 1979: “The effective resonance energy \bar{E}_r as a parameter for the correction of resonance integrals in $1/E^{l+\alpha}$ epithermal neutron spectra; tabulation of \bar{E}_r - values for 96 isotopes”

L. Moens, F. De Corte, A. Simonits, A. De Wispalaere, J. Hoste.

J. Radioanal. Nucl. Chem. 52 (1979) 379-387.

Moens et al., 1984: “ k_0 -Measurements and related nuclear data compilation for (n, γ) reactor neutron activation analysis - part II”

L. Moens, F. De Corte, A. De Wispalaere, J. Hoste, A. Simonits, A. Elek, E. Szabo.

J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles 82, 2 (1984) 385-452

Molnár, 2000: “Nuclear data for activation análisis”

G. L. Molnár

J. Radioanal. Nucl. Chem. 244, 1(2000) 27-33

Monographie BIPM-5, 2010: “Table of Radionuclides (Comments on evaluation)”

M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dullieu, X. Mougeot, E. Browne, C. Baglin, V. Chechev, A. Egorov, N. K. Kuzmenko, V. O. Sergeev, F. G. Kondev, A. Luca, M. Galán, X. Huang, B. Wang, R. G. Helmer, E. Schönfeld, R. Dersch, V. R. Vanin, R. M. de Castro, A. L. Nichols, T. D. Mac Mahon, A. Pearce, A. Arinc, K. B. Lee, S. C. Wu

Volume 1-5, 2010, Bureau International des Poids et Mesures, Francia.

http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm

Monographie BIPM-5, 2011: “Table of Radionuclides (Comments on evaluation)”

M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dullieu, X. Mougeot, E. Browne, C. Baglin, V. Chechev, A. Egorov, N. K. Kuzmenko, V. O. Sergeev, F. G. Kondev, A. Luca, M. Galán, X. Huang, B. Wang, R. G. Helmer, E. Schönfeld, R. Dersch, V. R. Vanin, R. M. de Castro, A. L. Nichols, T. D. Mac Mahon, A. Pearce, A. Arinc, K. B. Lee, S. C. Wu

Volume 1-6, 2011, Bureau International des Poids et Mesures, Francia.

http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm

Montgomery, 1996: “Proposed American National Standard Institute (ANSI) standard for traceability of radioactivity sources to the U. S. National Institute of Standards and Technology (NIST)”

D. M. Montgomery

Nucl. Instr. Meth. in Physics Research A 369 (1996) 718-721

Montoya, 1995a: “Principales convenciones para la tasa de reacción (n,γ) y parámetros de la posición de irradiación, utilizados en el análisis por activación neutrónica según el método del k_0 y otros métodos paramétricos”

Eduardo Montoya.

Proceedings of the Regional Workshop on Selected Topics about Applications of the k_0 Method and other Parametric Methods in Neutron Activation Analysis, Lima, Perú, 13 a 24 de marzo de 1995. Pág. 25 a 56.

Montoya, 1995b: “Evaluación y estandarización del análisis por activación neutrónica según el método del k -sub-cero, en el reactor nuclear RP-10. Estudio preliminar empleando irradiaciones cortas”

Eduardo Haroldo Montoya Rossi

Tesis para optar el grado de maestro en ciencias con mención en química.

Universidad Peruana Cayetano Heredia, 1995.

Montoya et al., 2010: “The development of the k_0 method in Peru: Past, present and future perspectives”

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

Nucl. Instr. Methods in Physics Research A 622 (2010) 3381-384

8. Referencias bibliográficas

Mughabghab, 1973: “Neutron cross sections”.

S. F. Mughabghab, D. I. Garber

National Neutron Cross Sections Center, Brookhaven National Laboratory,
Academic Press, EE.UU., 1973

Mughabghab et al., 1981: “Neutron resonance parameters and thermal cross sections. Neutron cross sections series. Part A, Z = 1–60”

S. F. Mughabghab, M. Divadeenam, N. E. Holden.

Neutron Cross Sections. Cross Section Center, Brookhaven National Laboratory,
Academic Press, EE.UU., 1981. ISBN: 0125097018 (v. 1, pt. A)

Mughabghab, 2003: “Thermal neutron capture cross sections, resonance integrals and G-factors”

S.F. Mughabghab

IAEA INDC(NDS)-440, Viena, 2003

NBS, 1982: “Proceedings of a meeting on traceability of ionizing radiation measurements”

NBS Special Publication 609, National Bureau of Standards, Washington, 1982

NBS, 1985: “Standard Reference Material 1577a – Bovine Liver”

National Bureau of Standards Certificate of Analysis. Gaithersburg, MD, EE.UU., 1985.

Niese, 1963: “Ausbeutebestimmungen der Schwellwertreaktionen $Ti(n,p)Sc$ und $Ge(n,\alpha)Zn$ im Wasser-Wasser-Reaktor“

S. Niese, P. Morzek, C. Herold.

Kernenergie 6. Jahrgang. Heft 1/1963.

NNDC, 2011: “Chart of nuclides”

National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, EE.UU.
<http://www.nndc.bnl.gov/chart/>

NUDAT, 2011: “NUDAT 2.5”

National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory

<http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>

Op de Beeck, 1985a: “Critical evaluation of the effective resonance energy concept and the epithermal neutron spectrum shape-factor α for reactor NAA purposes”

J. Op De Beeck

J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 89, 1 (1985) 169-190

Op de Beeck, 1985b: “Energy dependence of the epithermal neutron spectrum shape parameter α with respect to application of comparator-type NAA”

J. Op de Beeck.

J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 90, 1 (1985) 167-187

8. Referencias bibliográficas

- Pearce, 2008:** “Recommended Nuclear Decay Data”
A. Pearce
NPL Report IR 6, National Physical Laboratory, Reino Unido, 2008
- Pearlstein, 1973:** “Neutron-induced reactions in medium mass nuclei”
S. Pearlstein.
J. Nucl. Energy 27 (1973) 81-99
- Petri, 2000:** “Standardization of NAA using the activation equation and isotope-related constants”
H. Petri, G. Küppers
J. Radioanal. Nucl. Chem. 245, 1 (2000) 163- 166
- Pfrepper et al., 1976:** “Die Bestimmung der Wirkungsquerschnitte verschiedener (n,p)- und (n,a)-Reaktionen“
G. Pfrepper, C. Raitschev
Radiochim. Acta 23, (1976) 127
- Rajput et al., 1992:** “Techniques for evaluating discrepant data”
M. U. Rajput, T. D. MacMahon
Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A312 (1992) 289-295.
- RA-3, 2009:** “Grilla Núcleo 200 - Período 21”
Grupo de Física, Reactor RA-3, Comisión Nacional de Energía Atómica, 2009
- RA-6, 2011:** “Núcleo 15 (Orden 03)”
Reactor RA-6, Comisión Nacional de Energía Atómica, abril 2011
- Rau, 1967:** “Bestimmung verschiedener über ein Spaltneutronenspektrum gemittelter n,p- und n,α-Wirkungsquerschnitte”
G. Rau.
Nukleonik 9 (1967) 228-237.
- Ricabarra et. Al, 1972:** “Neutron activation resonance integral of ^{74}Ge and ^{76}Ge and evaluation of the ^{74}Ge keV neutron radiative capture cross section and resonance integral”
M. D. Ricabarra, R. Turjansky and G. H. Ricabarra.
Canadian Journal of Physics, vol 50, Nr. 17 (1972) 1978-1986.
- Robouch et al., 2000:** “Uncertainty budget for k_0 -NAA”
P. Robouch, G. Arana, M. Eguskiza, S. Pommé, N. Etxebarria
J. Radioanal. Nucl. Chem. 245, 1 (2000) 195-197
- Rochlin, 1959:** “Fission-neutron cross-sections for threshold reactions”
R. S. Rochlin.
Nucleonics 17 (1959) 54 - 55.

Roth et al., 1993: “Determination of k_0 and Q_0 factors of short-lived nuclides”. S. Roth, F. Grass, F. De Corte, L. Moens, K. Buchtela.
J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 169, 1 (1993) 159-175

Ryves et al., 1968: “The construction and calibration of a standard thermal neutron flux facility at the National Physical Laboratory”
T. B. Ryves and E. B. Paul.
Journal of Nuclear Energy, 22 (1968) 759-775

Ryves, 1969: “A new thermal neutron flux convention”
T. B. Ryves.
Metrologia 5 (1969) 119-124

Sage y Furr, 1976: “The measurement of some resonance integrals”
L. Sage, A. K. Furr
Trans. Am. Nucl. Soc. 23 (1976) 501-502

Salas Bacci, 1991: “Medición de la sección eficaz promedio de la reacción $^{52}\text{Cr}(n,p)^{52}\text{V}$ en un espectro de neutrones de fisión”
A. Salas Bacci.
Tesis de Licenciatura en Ciencias Físicas, Universidad Mayor de San Andrés, La Paz, Bolivia, 1991

Segovia, 2005: “Estudio sobre los parámetros de caracterización del comportamiento no ideal de la componente epitérmica del espectro neutrónico en reactores nucleares”
S. Segovia
Tesis para optar al Grado de Magister en Radioquímica. Universidad Tecnológica Nacional, Facultad Regional Buenos Aires, 2005

Sher, 1974: “2200 m/s neutron activation cross-sections”
R. Sher
Handbook of nuclear activation cross-sections, pag. 1.
IAEA Technical Report Series 156. Vienna, 1974. (Ver IAEA, 1974)

Simonits y De Corte, 1975: “Single-comparator methods in reactor neutron activation analysis”
A. Simonits, F. De Corte
J. Radioanal. Chem. 24 (1975) 31-46

Simonits et al., 1976: “Zirconium as a multi-isotopic flux ratio monitor and a single comparator in reactor-neutron activation análisis”
A. Simonits, F. De Corte, J. Hoste.
J. Radioanal. Chem. 31 (1976) 467-486

Simonits et al., 1984: “Comparative study of measured and critically evaluated resonance integral to thermal cross-section ratios. Part II”
A. Simonits, F. De Corte, T. El Nimr, I. Moens, J. Hoste.
J. Radioanal. Chem. Articles, 81/2 (1984) 397-415.

Simonits et al., 1987: “Nuclear data measurements for zirconium isotopes used for activation analysis and neutron metrology”

A. Simonits, F De Corte, A. De Wispelaere, J. Hoste
J. Radioanal. Nucl. Chem. 113, 1 (1987) 187-197

Simonits et al., 2000: “The k_0 and Q_0 values for the Zr-isotopes: a re-investigation”

A. Simonits, F. De Corte, S. Van Lierde, S. Pommé, P. Robouch, M. Eguskiza
J. Radioanal. Chem., 245, 1 (2000) 199-203.

Schwerer y Okamoto, 1989: “Status report on cross-sections of monitor reactions for radioisotope production”

O. Schwerer and K. Okamoto
IAEA INDC(NDS)-218/GZ+, International Nuclear Data Committee, Viena, 1989

Soete et al., 1972: “Neutron Activation Analysis – Chapter 10: Systematic errors in activation analysis”

D. De Soete, R. Gijbels y J. Hoste
Chemical Analysis, A series of monographs on Analytical Chemistry and its applications. P. J. Elving y I. M. Kolthoff, vol. 34. Wiley Interscience, 1972

Steinnes, 1972: “Resonance activation integrals of some nuclides of interest in neutron activation analysis”

E. Steinnes
J. Inorg. Nucl. Chem. 34 (1972) 2699-2703

Stoughton y Halperin, 1959: “Heavy nuclide cross sections of particular interest to the thermal reactor operation: conventions, measurements and preferred values”

R. W. Stoughton, J. Halperin.
Nucl. Sci. & Eng. 6 (1959) 100.

Tandon y Wasson, 1968: “Indium, gallium and germanium concentration levels in high-purity silica”

S. N. Tandon, J. T. Wasson
Anal. Chim. Acta, 41 (1968) 397-399.

Tao et al., 1997: “Hazard assessment of germanium supplements”

S. H. Tao, P. M. Bolger (FDA, EE.UU.)
Regul. Toxicol. Pharmacol. 25:3 (1997) 211-219

Thomas et al., 2005: “Thermal fluence and dose equivalent standards at NPL”

D. J. Thomas, P. Kolkowski
NPL REPORT DQL-RN008, National Physical Laboratory, Reino Unido, 2005

Thomas et al., 2006: “Investigation of a possible replacement for cadmium as a thermal neutron absorbing material in neutron instruments”

D.J. Thomas, P. Kolkowski, N.J. Roberts, B. D’Mellow and M. J. Joyce
NPL REPORT DQL-RN017, National Physical Laboratory, Reino Unido, 2006

Tuli, 1990: “Nuclear Wallet Cards”

J. K. Tuli.

National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, Estados Unidos, 1990.

Tuli, 2005: “Nuclear Wallet Cards”

J. K. Tuli.

National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, Estados Unidos, 2005.

Van del Linden et al., 1972: “A compilation of infinite dilution resonance integrals”

R. Van Der Linden, F. De Corte, P. Van Den Winkel, J. Hoste

J. Radioanal. Chem. 11 (1972) 133-141

Van del Linden et al., 1973: “Resonance integrals applied to the multiple comparator method in reactor neutron activation analysis”

R. Van del Linden, F. De Corte and J. Hoste.

IAEA Symposium on Applications of Nuclear Data in Science and Technology, Paris, 12-16 de marzo de 1973. IAEA/SM-170/32

Van Lierde et al., 1999a: “A re-examination of coincidence and gamma-peak doublet handling in kayzero-based NAA”

S. Van Lierde, F. De Corte, D. Bossus, R. Van Sluijs

Czechoslovak Journal of Physics, Vol 49 (1999) 287293

Van Lierde et al., 1999b: “Determination of k_0 and related nuclear data for short-lived radionuclides to be used in KAYZERO-NAA at DSM research”

S. Van Lierde, F. De Corte, D. Bossus, R. Van Sluijs, S. Pommé

Nucl. Instr. Meth. in Physics Research A 422 (1999) 874-879

Van Lierde et al., 2000: “New experimental k_0 and related data for generalized activation/decay cases implemented in the “Kayzero” software package”

S. Van Lierde, F. De Corte, R. Van Sluijs, D. Bossus

J. Radioanal. Nucl. Chem. 245 (2000) 179-184

Verheijke, 1988: “Determination of characteristic neutron flux parameters of nuclear reactors for thermal neutron activation analysis”

M. L. Verheijke and R. M. W. Jansen.

J. Radioanal. Nucl. Chem. 125, 1 (1988) 113-125

Webelements, 2011: “Germanium”

www.webelements.com/index.html

Weigmann, 1962: “Messungen der K -Konversionskoeffizienten und der

Aktivierungsquerschnitte der isomeren Atomkerne ^{77m}Se , ^{79m}Se , ^{75m}Ge und ^{77m}Ge “

H. Weigmann.

Zeitschrift für Physik 167 (1962) 549-557.

8. Referencias bibliográficas

Westcott, 1955: “The specification of neutron flux and nuclear cross-sections in reactor Calculations”.

C.H. Westcott.

J. Nucl. Eng. 2, 59-76, 1955.

Westcott, 1958: “Effective cross sections and cadmium ratios for the neutron spectra of thermal reactors”

C. H. Westcott, W. H. Walker, T. K. Alexander.

Proceedings of the Second International Conference in peaceful uses of atomic energy, Geneva, 1958. Vol 16, Session A11, p. 202, Vienna IAEA.

Wickham, 2008: “Quality assurance for the IAEA international database on irradiated nuclear graphite properties”

A.J. Wickham, G. Haag y D. Humbert,

IAEA INDC(NDS)-0500, Issue 2, International Nuclear Data Committee, Vienna, 2008

Woods, 1988: “Evaluation of half-life data”

M. J. Woods, A. S. Munster (1988).

NPL Report RS (EXT) 95.