

**Instituto de Tecnología Nuclear Dan Beninson**  
UNSAM - Comisión Nacional de Energía Atómica

Especialización en Radioquímica y Aplicaciones Nucleares

**ESTUDIO SOBRE LA OPTIMIZACIÓN DE LAS CONDICIONES DE  
PRODUCCIÓN EN REACTORES DE  $^{156}\text{Eu}$  POR ACTIVACIÓN DE  
SAMARIO, PARA LA REDETERMINACIÓN DE SUS CONSTANTES  
NUCLEARES.**

**Lic. María del Carmen Alí Santoro**

Director: Dr. Isaac Marcos Cohen  
Codirectora: Mg. María Celeste Fornaciari Iljadica

Buenos Aires, 2009

## Índice

Introducción	2
Capítulo I: Las Reacciones Nucleares	4
Capítulo II: Planteo del Problema	9
Capítulo III: Parte Experimental	21
Capítulo IV: Resultados y Discusión	27
Conclusiones	36
Bibliografía	38

## Introducción

Las reacciones nucleares que ocurren cuando un material es sometido a irradiación en un reactor son de importancia, para el experimentador, en la comprensión del proceso global y en la producción de radioisótopos para un determinado fin. Para el operador del reactor la importancia radica, fundamentalmente, en las secciones eficaces involucradas y en su eventual incidencia sobre la reactividad. Entre las reacciones posibles, las de captura radiativa son las que tienen mayor importancia, pues el valor de sus secciones eficaces es corrientemente mayor que el de las restantes reacciones.

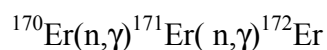
En muchas ocasiones, productos de reacciones primarias se caracterizan por poseer secciones eficaces inusualmente altas. Además de la absorción de neutrones que su presencia conlleva, la nueva captura neutrónica puede conducir a la formación de otros nucleidos. La doble captura neutrónica no es un fenómeno extraordinario. Los productos de tales reacciones pueden constituir interferencias en análisis por activación [Cohen y colaboradores, 1976]. Algunas reacciones de doble captura neutrónica han sido empleadas para la producción de algunos radionucleidos como el  $^{188}\text{W}$ , ampliamente utilizado en medicina nuclear a través del generador  $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$  [Knapp, 2001].

Muchos de los isótopos de los elementos de las tierras raras presentan secciones eficaces de dimensiones suficientes como para inducir la producción de radionucleidos por doble captura neutrónica. Las posibilidades de detección de los productos de doble captura dependen primariamente de sus características y de las de los radionucleidos formados por reacción primaria, cuya actividad es normalmente varios órdenes mayor.

Aun cuando muchas reacciones de doble captura parecerían suficientemente estudiadas, la literatura registra discrepancias e inconsistencias en el valor de las secciones eficaces involucradas.

Un ejemplo ilustrativo es la secuencia de reacciones de captura que se originan a partir del  $^{170}\text{Er}$ .

Las reacciones son:



Los datos de secciones eficaces para ambas reacciones, según tres ediciones consecutivas de una de las tablas de nucleidos más conocidas, Karlsruhe Nuklidkarte [Seelmann-Eggebert, 1981; Pfennig, 1995; Magill, 2006] son:

Para la reacción  $^{170}\text{Er}(n,\gamma)^{171}\text{Er}$ : 5,7 b, 6 b y 8 b, respectivamente

Para la reacción  $^{171}\text{Er}(n,\gamma)^{172}\text{Er}$ : 280 b, 370 b y 370 b, respectivamente

Más allá del hecho de que los valores de sección eficaz para la reacción primaria varían en alrededor de 25 %, una situación significativa se da con respecto a la reacción de doble captura: un cambio importante en el valor recomendado (280 b a 370 b) entre las dos primeras ediciones

mencionadas y luego la reproducción del valor de la segunda edición en la tercera, a pesar de que el dato para la reacción primaria cambia sustancialmente. Puesto que la actividad del producto de doble captura depende del producto de los dos valores de sección eficaz, se produce una inconsistencia en el par de valores tabulados.

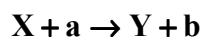
Este tipo de situaciones es relativamente frecuente y permite inferir que resulta necesario efectuar la redeterminación de muchos de los datos hasta ahora aceptados.

Ya se ha mencionado que estudios de esta naturaleza no son simples. En el presente trabajo se evaluarán los factores que influyen en la producción de reacciones de doble captura, con énfasis en los elementos de las tierras raras, a partir del caso:  $^{154}\text{Sm}(n,\gamma)^{155}\text{Sm}(\beta^-)^{155}\text{Eu}(n,\gamma)^{156}\text{Eu}$ , que será tomado como modelo de estudio.

## I. Las reacciones nucleares

Las reacciones nucleares fueron descubiertas por Ernest Rutherford, quien en 1919 publicó el resultado de las experiencias que demostraban la existencia de este fenómeno.

Se trata de procesos que implican la transformación de un núcleo por acción de una partícula subatómica, donde aparecen un nuevo núcleo y otra partícula (también puede ser un fotón de alta energía, o más de una partícula). En forma general, el proceso de una reacción nuclear puede expresarse en la forma:



donde X e Y representan, respectivamente, al núcleo blanco y al nuevo núcleo, mientras que a y b denotan a la partícula incidente y a la partícula producida en la reacción. La representación corriente para reacciones como la esquematizada es:



### Reacciones Nucleares y Reacciones Químicas

Las principales diferencias y la única similitud entre reacciones nucleares y químicas se resumen en:

- En las reacciones químicas los nucleidos permanecen como tales. Las reacciones nucleares implican la formación de nuevos nucleidos, por transformación de los núcleos.
- En las reacciones químicas es válida la ley de conservación de las masas. En las reacciones nucleares hay conversión parcial de masa en energía, o bien, recíprocamente, de energía en masa.
- La energía de las reacciones químicas es del orden de las decenas de eV; las reacciones nucleares tienen energías notablemente mayores, en órdenes de  $10^5$  o  $10^6$  más altos.
- Una buena parte de las reacciones químicas son reversibles, mientras que las reacciones nucleares no lo son.
- Como en una gran variedad de reacciones químicas, muchas reacciones nucleares pasan por un estado de transición, de vida media corta.

### *La Ecuación General de Activación*

La llamada ecuación general de activación está referida a una reacción nuclear simple, donde por irradiación de un núcleo (1) con partículas x aparece un nuevo núcleo (2) que puede ser estable o radiactivo. La velocidad de formación de (2) es proporcional al número de átomos de (1) y al flujo de partículas incidentes,  $\phi_x$ . Puede suponerse, en forma válida, que  $N_1$  permanece constante durante todo el proceso de irradiación, pues sólo una mínima parte de los núcleos presentes llega a transformarse por la reacción nuclear. La relación de proporcionalidad es:

$$\frac{dN_2}{dt} \propto N_1 \phi_x$$

La constante de proporcionalidad es la llamada sección eficaz ( $\sigma$ ), constante que varía para cada reacción nuclear y que depende del tipo de partículas incidentes y su energía. La sección eficaz, que es una medida de la probabilidad de la reacción nuclear, tiene dimensiones de superficie, debido a que puede interpretarse como el área efectiva que presenta el núcleo blanco a la partícula incidente. Las unidades usuales para su expresión es el barn (b) y sus submúltiplos;  $1\text{b} = 10^{-24}\text{cm}^2$ . Si (2) es radiactivo, la ecuación anterior se convierte en:

$$\frac{dN_2}{dt} = N_1 \sigma \phi_x - \lambda_2 N_2$$

Su resolución conduce a la expresión general:

$$N_2 = \frac{N_1 \sigma \phi}{\lambda_2} (1 - e^{-\lambda_2 t})$$

y, en términos de actividad, a  $A_2 = N_1 \sigma \phi (1 - e^{-\lambda_2 t})$ , ecuación general de activación, que expresa la evolución de la actividad del producto en función del tiempo de irradiación del precursor.  $N_1 \sigma \phi$  es la máxima actividad obtenible, que se denomina actividad a saturación.

La Figura I.1 representa el crecimiento de la actividad para tiempos de irradiación medidos en períodos del producto. Puede verse que, para tiempos de irradiación cortos, el crecimiento es casi lineal, para luego amortiguarse, tendiendo asintóticamente a la actividad a saturación.

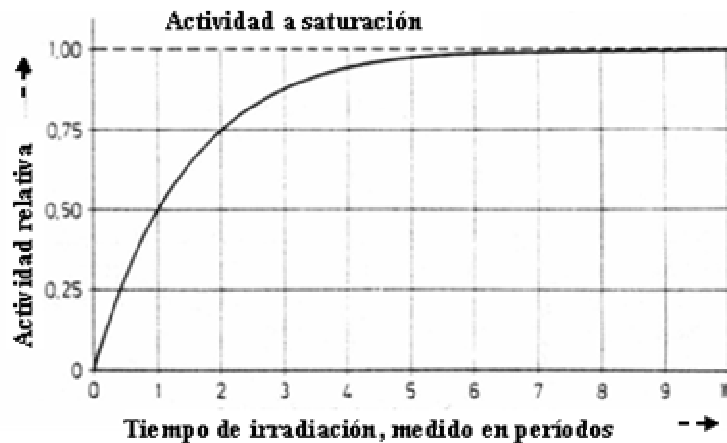


Figura I.1 Evolución de la actividad en función del tiempo de irradiación

La ecuación general de actividad representa, como se ha dicho, el caso más simple de activación mediante una reacción nuclear directa.

### **Partículas y reacciones**

Aun cuando pueden utilizarse núcleos pesados para producir reacciones nucleares, preferentemente

se emplean con este fin neutrones o partículas nucleares, de carga positiva. De esta forma, protones, deuterones, partículas alfa y, menos frecuentemente, núcleos de  $^3\text{He}$ , son las partículas incidentes para la inducción de reacciones nucleares.

En un reactor, las reacciones nucleares son inducidas con neutrones. Mientras que las partículas cargadas deben ser aceleradas para vencer la repulsión coulombiana del núcleo cargado positivamente, los neutrones no tienen tal limitación. De hecho, los llamados neutrones térmicos, es decir, los neutrones que sólo poseen la energía de agitación térmica del medio, son las partículas más a menudo usadas en la producción de reacciones nucleares. Una de las razones descansa en el hecho de que las secciones eficaces para las reacciones  $(n,\gamma)$ , conocidas como reacciones de captura radiante, inducidas por neutrones térmicos, son notablemente más altas que las que se encuentran para otro tipo de reacciones, originadas por neutrones de mayor energía o por partículas cargadas. Se suma además otro hecho favorable, y es que los reactores nucleares son fuentes importantes de disponibilidad de neutrones, con altos flujos y con la posibilidad de irradiación simultánea de numerosas muestras.

### ***Reacciones nucleares inducidas con neutrones***

Como ya se ha mencionado, los procesos que ocurren cuando un material es bombardeado por neutrones dependen de la energía cinética de los neutrones y de los nucleidos constituyentes del material. Si el neutrón se aproxima lo suficiente a un núcleo, puede ser atraído por las fuerzas nucleares y formar un nuevo núcleo llamado núcleo compuesto. Este núcleo compuesto queda en un estado excitado, con un exceso de energía aproximadamente igual a la suma de la energía cinética inicial del neutrón y de su energía de unión. Por lo tanto, las reacciones de captura se desarrollan en dos etapas: en la primera se forma el núcleo compuesto y en la segunda éste se transforma, emitiendo un fotón gamma. En principio pueden existir también otras posibilidades, tales como la emisión de partículas (neutrón, protón, etc.). La transformación del núcleo compuesto sólo depende de sus propiedades, su energía y momento angular, y es independiente de la forma en que fue producido.

Las formas de desexcitación del núcleo compuesto son varias, y se enumeran a continuación:

- Desexcitación mediante la emisión de radiación gamma: como se ha mencionado, estas reacciones, las más probables con neutrones térmicos, son conocidas como reacciones  $(n,\gamma)$  o de captura radiante. El nucleido resultante es un isótopo del núcleo original. Sobre reacciones de este tipo se ha desarrollado el presente trabajo.
- Desexcitación mediante la emisión de una o más partículas nucleares: las reacciones más comunes son las de emisión de un protón, una partícula alfa o dos neutrones, conocidas como  $(n,p)$ ,  $(n,\alpha)$ ,  $(n,2n)$ . En general son reacciones endoérgicas, que requieren que los neutrones

tengan una energía mínima para iniciarlas. Sus probabilidades de ocurrencia son usualmente al menos dos órdenes de magnitud menores que para las reacciones  $(n, \gamma)$ .

- Desexcitación mediante la emisión de un neutrón de menor energía que el neutrón incidente: son las reacciones  $(n, n')$ , en las que el núcleo queda en un estado excitado. Por lo general el núcleo se desexcita mediante transición isomérica, llegando al núcleo estable original.
- Desexcitación del núcleo compuesto mediante fisión: este tipo de reacción, sólo posible en núcleos pesados, se usa para determinar uranio y torio mediante la medición de los neutrones retardados que se emiten durante la fisión.

## Reacciones de Doble Captura Neutrónica

Tanto la existencia de altos flujos de neutrones térmicos como las altas secciones eficaces inducen la generación de reacciones singulares, solamente originadas en reactores nucleares, que son conocidas como reacciones de doble captura. El proceso se resume, esquemáticamente, en la reacción que un radionucleido, formado por una reacción de captura inicial, puede sufrir al capturar a su vez un nuevo neutrón. Se establece de esta forma una competencia entre la velocidad de desaparición del precursor, a causa de su propia transformación radiactiva, y la probabilidad de captura de un nuevo neutrón, con la consiguiente producción de otra especie radiactiva.

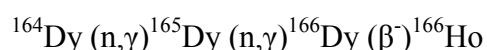
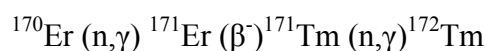
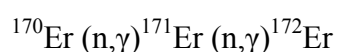
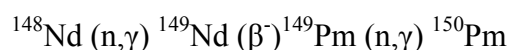
En general, los productos de las reacciones de doble captura deben ser considerados en el inventario radiactivo originado por la irradiación, especialmente cuando su periodo de semidesintegración es mayor que el de los radionucleidos generados por captura directa.

### *Reacciones de doble captura neutrónica en elementos de las tierras raras*

Muchos isótopos de los elementos de las tierras raras presentan altos valores de secciones eficaces para reacciones  $(n, \gamma)$ , por lo que son ideales para el estudio de este tipo de procesos.

Es necesario considerar en este caso dos situaciones diferentes: en primer lugar, las reacciones de doble captura directa, donde el producto de la primera es el blanco para la siguiente y, en segundo lugar, los procesos indirectos en donde la doble captura sigue al decaimiento de un producto primario.

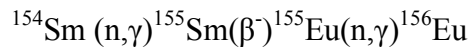
A continuación se indican algunos ejemplos de estos tipos de reacciones:



La característica común en estas reacciones es que al menos una de las secciones eficaces

involucradas en la generación del producto final es inusualmente alta. Aun estas condiciones, el radionucleido formado por doble captura tendrá actividades varios órdenes de magnitud menor que las actividades del producto (o de los productos) de la reacción primaria. Por tal razón, no es inmediata la predicción de su detección.

Un caso de activación donde se reúnen características favorables para la identificación del producto de una doble captura neutrónica es:



Las secciones eficaces para las reacciones  $^{154}\text{Sm} (n,\gamma) ^{155}\text{Sm}$  y  $^{155}\text{Eu}(n,\gamma) ^{156}\text{Eu}$  son, respectivamente, 7,5 b y 3900 b [Magill y colaboradores, 2006]. La conjunción de los valores de secciones eficaces y de las características nucleares de los productos permite inferir que el  $^{156}\text{Eu}$  puede llegar a ser identificado y medido en condiciones relativamente favorables. Por este motivo se decidió que la investigación sobre su formación por doble captura resultaba adecuada como modelo para un estudio general.

## II. Planteo del Problema

El objetivo global de la investigación es estudiar las mejores condiciones para la redeterminación de las secciones eficaces de los productos de doble captura en las tierras raras.

Muchas reacciones de doble captura en tierras raras están bien identificadas; no obstante, algunos datos publicados de secciones eficaces registran variaciones significativas, por cuya razón resulta conveniente efectuar redeterminaciones de los valores primarios. Se observa también que muchas mediciones de periodos de semidesintegración son bastante antiguas. En ambos casos, es dable preguntarse si los valores actualmente aceptados podrían cambiar, sobre la base de mediciones con métodos y sistemas más modernos, como la espectrometría gamma de alta resolución.

Como caso de estudio se plantea la producción de  $^{156}\text{Eu}$  a partir de reacciones nucleares de doble captura sobre samario. Los datos nucleares que siguen fueron extraídos de la Tabla de Nucleidos [Magill y colaboradores, 2006] a no ser que se indique lo contrario.

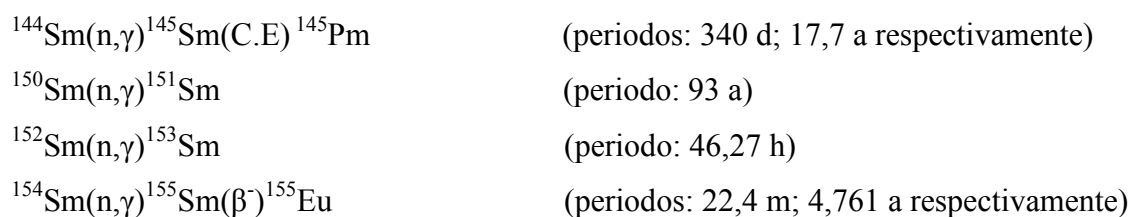
Los isótopos estables de samario, que se indican en la Tabla II.1, junto con sus abundancias isotópicas y sus secciones eficaces de captura, son:

**Tabla II.1 Isótopos estables del samario, abundancias isotópicas y secciones eficaces de captura**

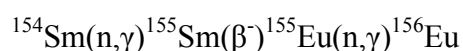
Isótopo	Abundancia Isotópica(%)	Sección eficaz (b)
Sm-144	3,07	1,6
Sm-147	14,99	56
Sm-148	11,24	2,4
Sm-149	13,82	40100
Sm-150	7,38	102
Sm-152	26,75	206
Sm-154	22,75	7,5

Puede verse que el samario, como elemento, es un fuerte absorbedor de neutrones. Su sección eficaz promedio es 5600 b.

Las reacciones de captura sobre samario que conducen a nucleidos radiactivos son:



El  ${}^{155}\text{Eu}$ , en razón de su elevada sección eficaz de captura (3900 b) podría inducir a su vez la formación de  ${}^{156}\text{Eu}$ , de forma tal que sería posible producir una secuencia que implicaría una doble captura neutrónica, según:

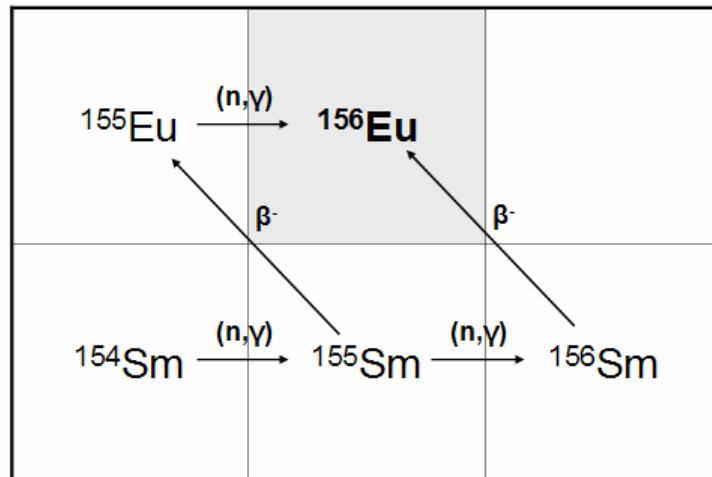


El  ${}^{156}\text{Eu}$  es un emisor  $\beta^-$  de 15,2 d de periodo; sus principales energías gamma e intensidades se indican en la Tabla II.2. Los datos fueron extraídos de las tablas de Schötzgig y Schrader, 1998.

**Tabla II. 2 Principales energías de las transiciones gamma del  ${}^{156}\text{Eu}$ , en orden de intensidad ecreciente**

Energía (keV)	Intensidad %
811,77	9,7
88,97	8,4
1230,71	8,0
1153,67	6,8
1242,42	6,6
646,29	6,3
723,47	5,4
1065,14	4,9
1154,08	4,7
1079,16	4,6
1965,95	3,9

El esquema general de producción del  $^{156}\text{Eu}$  es:

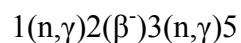


De este modo, la formación de  $^{156}\text{Eu}$  puede esquematizarse asignando números simples a cada uno de los nucleidos involucrados, en la siguiente forma:

- 1:  $^{154}\text{Sm}$
- 2:  $^{155}\text{Sm}$
- 3:  $^{155}\text{Eu}$
- 4:  $^{156}\text{Sm}$
- 5:  $^{156}\text{Eu}$

No se han encontrado datos en la literatura sobre la producción de  $^{156}\text{Sm}$  a partir del  $^{155}\text{Sm}$ . Por tal razón, es posible suponer que la sección eficaz para esta reacción es baja.

De esta forma, el esquema de reacción simplificado pasa a ser:



Suponiendo consumo despreciable del blanco durante la irradiación, las correspondientes ecuaciones diferenciales para la producción son:

$$\frac{dN_2}{dt} = \sigma_{12} \phi N_1 - \lambda_2 N_2$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 - (\lambda_3 + \sigma_{35} \phi) N_3$$

$$\frac{dN_5}{dt} = \sigma_{35} \phi N_3 - \lambda_5 N_5$$

Sistemas de este tipo han sido descriptos, por ejemplo, por Melcer [2006]. Su solución es:

$$N_2(t) = k_{21}(1 - e^{-\Lambda_2 t})$$

Donde:

$$k_{21} = \frac{\sigma_{12} \phi N_1}{\lambda_2}$$

$$\Lambda_2 = \lambda_2$$

$$N_3(t) = k_{31} + k_{32} \cdot e^{-\Lambda_2 t} + k_{33} \cdot e^{-\Lambda_3 t}$$

Donde:

$$k_{31} = \frac{\lambda_2 N_1 \phi \sigma_{12}}{\lambda_2(\lambda_3 + \sigma_{35} \phi)}$$

$$k_{32} = \frac{\lambda_2 N_1 \phi \sigma_{12}}{\lambda_2(\lambda_2 - \lambda_3 - \sigma_{35} \phi)}$$

$$k_{33} = \frac{\lambda_2 N_1 \phi \sigma_{12}}{(\lambda_3 + \sigma_{35} \phi)(-\lambda_2 + \lambda_3 + \sigma_{35} \phi)}$$

$$\Lambda_2 = \lambda_2$$

$$\Lambda_3 = \lambda_3 + \sigma_{35}$$

$$N_5(t) = k_{51} + k_{52} \cdot e^{-\Lambda_2 t} - k_{53} \cdot e^{-\Lambda_3 t} + k_{54} \cdot e^{-\Lambda_4 t} + k_{55} \cdot e^{-\Lambda_5 t}$$

Donde:

$$k_{51} = \frac{N_1 \phi^2 \sigma_{12} \lambda_2 \sigma_{35}}{\lambda_5 \lambda_2 (\lambda_3 + \sigma_{35} \phi)}$$

$$k_{52} = \frac{N_1 \phi^2 \sigma_{12} [\lambda_2 \sigma_{35} (-\lambda_2 + \lambda_4)]}{\lambda_2 (\lambda_2 - \lambda_4) (\lambda_2 - \lambda_4) (\lambda_2 - \lambda_5) (\lambda_2 - \lambda_3 - \sigma_{35} \phi)}$$

$$k_{53} = \frac{N_1 \phi^2 \sigma_{12} \sigma_{35} \lambda_2}{(\lambda_3 + \sigma_{35} \phi) (\lambda_3 - \lambda_5 + \sigma_{35} \phi) [-\lambda_2 + \lambda_3 + \sigma_{35} \phi]}$$

$$k_{55} = \frac{N_1 \phi^2 \sigma_{12} [\lambda_2 \sigma_{35} (\lambda_4 - \lambda_5)]}{\lambda_5 (-\lambda_4 + \lambda_5) (-\lambda_2 + \lambda_5) (-\lambda_3 + \lambda_5 - \sigma_{35} \phi)}$$

La evolución temporal de las actividades generadas es muy simple, puesto que, al no existir relaciones genéticas madre-hija, cada nucleido decae según su periodo de semidesintegración.

Es oportuno mencionar que la predicción de la actividad de  $^{156}\text{Eu}$  que puede obtenerse para una masa determinada, en función del tiempo de irradiación, es importante tanto en valor absoluto (actividad suficiente para ser detectada) como en forma relativa (actividad detectable en relación con las actividades de los otros nucleidos que podrían originarse por irradiación de samario).

La revisión de los datos nucleares primarios puede orientar, en primera instancia, acerca de las interferencias que los productos de activación directa tendrían sobre la medición del  $^{156}\text{Eu}$ :

- El  $^{155}\text{Sm}$  se descarta como interferencia, dado su corto periodo. Efectivamente, unas pocas horas serían suficientes para su decaimiento prácticamente total.
- La consideración del período relativamente largo del  $^{151}\text{Sm}$  no sería suficiente como para despreciar su formación, incluso en tiempos de irradiación del orden de horas o días, pues su sección eficaz es muy alta. De todas formas, la eventual interferencia que ocasionaría sería mínima, pues es un emisor  $\beta^-$  de energía baja ( $\beta_{\text{max}} = 0,1 \text{ MeV}$ ) y, además, su único fotón  $\gamma$  es de muy baja energía (22 keV).
- Aun a pesar de la relativamente baja abundancia isotópica de su precursor, la formación de  $^{145}\text{Sm}$  (y, consecuentemente, de  $^{145}\text{Pm}$ ) no puede descartarse. Sin embargo, ambos son

emisores  $\gamma$  de bajas energías (61 keV y 72 keV) que no deberían interferir en la medición, siempre que sus actividades no sean altas.

- La mayor interferencia, para tiempos cortos de decaimiento, surgiría del  $^{153}\text{Sm}$ . Es posible predecir actividades altas de este nucleido, por cuya razón sería necesario aguardar varios periodos para que su decaimiento permita la medición en geometrías cercanas al detector. La energía gamma más intensa, que es también la más alta que emite el  $^{153}\text{Sm}$ , es 103 keV.
- Finalmente, el  $^{155}\text{Eu}$  será la interferencia mayor en el largo plazo. La esperanza razonable es que su actividad no sea demasiado elevada y que los picos de alta energía del  $^{156}\text{Eu}$  puedan detectarse aun en su presencia. En este caso, la energía más elevada (y también más intensa) es 105 keV.

La Tabla II.3 muestra las actividades de los productos principales de activación del samario y de  $^{156}\text{Eu}$  que se obtendrían según cálculo luego de una irradiación de 48 hs, con una masa de 10 mg, a un flujo puramente térmico de  $4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ .

**Tabla II.3 Actividades, según cálculo, que se obtendrían por irradiación, durante 48 horas, de 10 mg de samario a un flujo puramente térmico de  $4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$**

Nucleido	Actividades (Bq)
$^{153}\text{Sm}$	$3,89 \times 10^{10}$
$^{155}\text{Sm}$	$2,35 \times 10^9$
<b><math>^{156}\text{Eu}</math></b>	<b><math>2,72 \times 10^6</math></b>
$^{155}\text{Eu}$	$1,83 \times 10^6$
$^{151}\text{Sm}$	$4,40 \times 10^5$
$^{145}\text{Sm}$	$1,22 \times 10^5$

La producción de  $^{156}\text{Eu}$  es fuertemente dependiente del tiempo de irradiación. Así, por ejemplo, pueden verse, en las Tablas II.4, II.5 y II.6 las variaciones de la actividad con respecto al tiempo de irradiación para  $^{155}\text{Sm}$ ,  $^{155}\text{Eu}$  y  $^{156}\text{Eu}$ . Mientras que el  $^{155}\text{Sm}$  llega rápidamente a saturación, la relación entre actividades de  $^{155}\text{Eu}$  y  $^{156}\text{Eu}$  experimenta significativos cambios en dimensión, tal como puede apreciarse en los datos de la Tabla II.7. Así, pasa de 0.083, para 3 horas de irradiación, a 1,5, cuando el tiempo de irradiación es 48 horas. Las dimensiones de estas relaciones

podrían cambiar si la sección eficaz para la reacción de captura sobre  $^{155}\text{Eu}$  no fuera la tabulada, pero el aspecto importante la tendencia sería la misma.

**Tabla II.4 Evolución de la actividad de  $^{155}\text{Sm}$  para diferentes tiempos de irradiación de 10 mg de samario, a un flujo puramente térmico de  $4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ .**

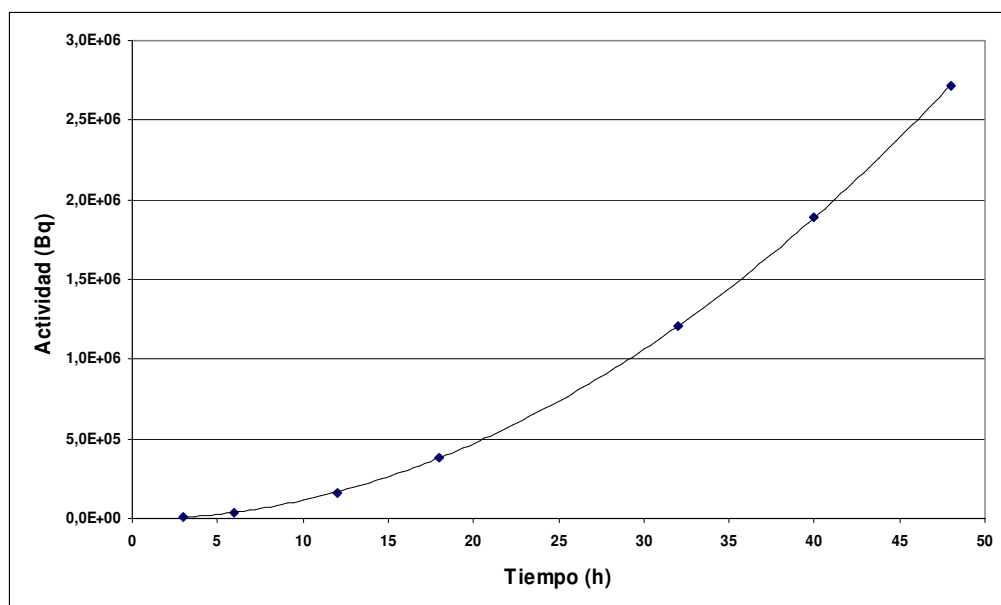
Tiempo irradiación (h)	3	6	12	18	32	40	48
Actividad (Bq)	$2,34 \times 10^9$	$2,35 \times 10^9$	$2,35 \times 10^9$	$2,35 \times 10^9$	$2,35 \times 10^9$	$2,35 \times 10^9$	$2,35 \times 10^9$

**Tabla II.5 Evolución de la actividad de  $^{155}\text{Eu}$  para diferentes tiempos de irradiación de 10 mg de samario, a un flujo puramente térmico de  $4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ .**

Tiempo irradiación (h)	3	6	12	18	32	40	48
Actividad (Bq)	$9,64 \times 10^4$	$2,13 \times 10^5$	$4,47 \times 10^5$	$6,80 \times 10^5$	$1,22 \times 10^6$	$1,53 \times 10^6$	$1,83 \times 10^6$

**Tabla II.6 Evolución de la actividad de  $^{156}\text{Eu}$  para diferentes tiempos de irradiación de 10 mg de samario, a un flujo puramente térmico de  $4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ .**

Tiempo irradiación (h)	3	6	12	18	32	40	48
Actividad (Bq)	$7,96 \times 10^3$	$3,77 \times 10^4$	$1,64 \times 10^5$	$3,78 \times 10^5$	$1,21 \times 10^6$	$1,89 \times 10^6$	$2,72 \times 10^6$

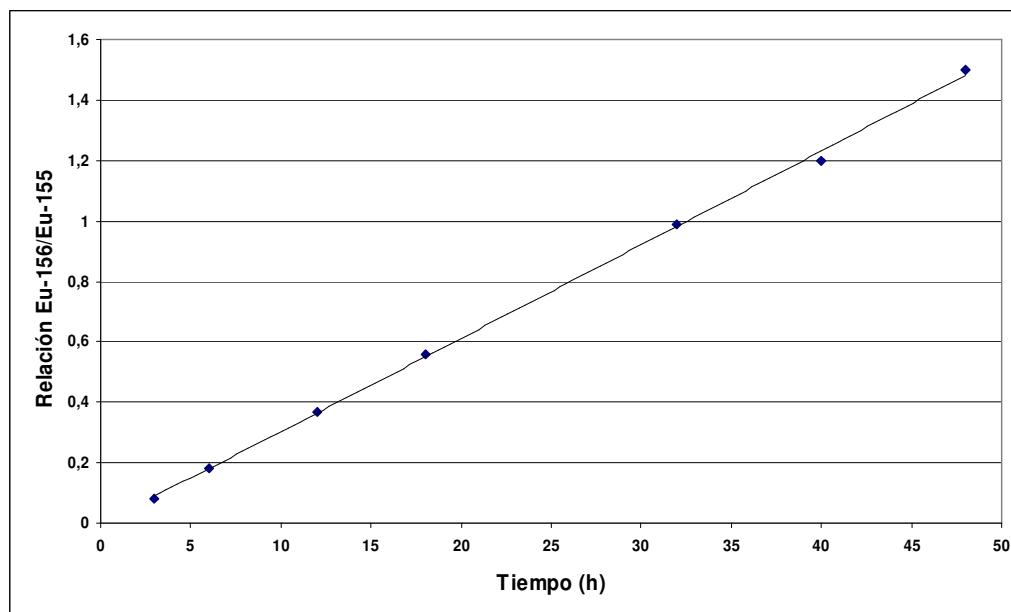


**Figura II.1 Evolución de la actividad de  $^{156}\text{Eu}$  para diferentes tiempos de irradiación de 10 mg de samario, a un flujo puramente térmico de  $4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$**

Puede verse la notable diferencia de esta curva con respecto a la de una activación simple.

**Tabla II.7 Evolución de la relación de actividades  $^{156}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$  para diferentes tiempos de irradiación, a un flujo puramente térmico de  $4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ .**

<b>Tiempo irradiación (h)</b>	3	6	12	18	32	40	48
<b>Relación <math>^{156}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}</math></b>	0,083	0,18	0,37	0,56	0,99	1,2	1,5



**Figura II.2 Evolución de la relación de actividades  $^{156}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$  para diferentes tiempos de irradiación, a un flujo puramente térmico de  $4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ .**

Es posible apreciar, a partir de los datos indicados en la Tabla II.3, que la principal interferencia para la detección del  $^{156}\text{Eu}$  es el  $^{153}\text{Sm}$ , cuya actividad calculada es tres órdenes de magnitud superior. En principio, sería posible aguardar su decaimiento, dada la diferencia en períodos. Sin embargo, la relación de actividades tan alta lleva a pensar que el lapso necesario deber ser forzosamente grande. En la Tabla II.8 se muestra el tiempo necesario para que las actividades de  $^{153}\text{Sm}$  y  $^{156}\text{Eu}$  se igualen, en función del tiempo de irradiación:

**Tabla II.8 Tiempo necesario para que las actividades de  $^{153}\text{Sm}$  y  $^{156}\text{Eu}$  se igualen para diferentes tiempos de irradiación, a un flujo puramente térmico de  $4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ .**

Tiempo irradiación (h)	3	6	12	18	32	40	48
$T(\text{días})/A^{153}\text{Sm} = A^{156}\text{Eu}$	41,3	38,4	35,8	34,3	32,1	31,2	30,5

Puede verse que el tiempo necesario para llegar a actividades iguales de ambos nucleidos es menor cuanto mayor es el tiempo de irradiación. Aun en estas condiciones, debe destacarse que, en términos operativos, sería necesario esperar dos períodos del  $^{156}\text{Eu}$  para alcanzar una condición ideal, inclusive para 48 horas de irradiación. Es cierto también que, como se mencionó en la frase anterior, la condición buscada tiene características de ideal, puesto que sería posible intentar la medición de  $^{156}\text{Eu}$  en presencia de actividades algo mayores de  $^{153}\text{Sm}$ , en razón de la menor energía de sus emisiones gamma. Debe tenerse presente también que las actividades generadas al cabo de 48 horas de irradiación podrían implicar restricciones para su manejo, desde el punto de vista de la protección radiológica.

La discusión se ha centrado hasta ahora en las características nucleares del samario. Es necesario también considerar los aspectos químicos involucrados en un proceso real. En dos laboratorios de CNEA se disponía de óxido de samario de pureza espectrográfica, procedentes de los laboratorios Jonhson Matthey & Co., Limited; London. Los correspondientes certificados, emitidos en la década de los '60, contenían especificaciones mínimas con respecto a sus impurezas, aun cuando podría esperarse que los contenidos de otros elementos de las tierras raras fueran relativamente altos, dada la muy marcada similitud entre sus comportamientos químicos. En la misma situación se encontraban escandio e itrio, pertenecientes al mismo grupo en la tabla periódica de los elementos.

La Tabla II.9 ilustra, a modo de ejemplo, las impurezas consignadas en un certificado más moderno del mismo proveedor [Pedreira y colaboradores, 2006].

**Tabla II.9 Impurezas consignadas en un certificado del mismo proveedor [Pedreira y colaboradores, 2006]\*.**

<b>Elemento</b>	<b>Concentración (ppm)</b>
Sc	5,89 ± 0,03
Y	3,37 ± 0,02
La	3,79 ± 0,08
Ce	7,91 ± 0,12
Pr	4,85 ± 0,15
Nd	10,9 ± 0,33
Gd	12,6 ± 0,41
Eu	7,45 ± 0,11
Tb	13,9 ± 0,39
Dy	14,7 ± 0,66
Ho	7,95 ± 0,28
Er	6,97 ± 0,39
Tm	1,15 ± 0,08
Yb	4,86 ± 0,07
Lu	7,92 ± 0,31

*\* La inconsistencia en el número de cifras significativas se debe a los datos originales.*

Haciendo una traslación un tanto arbitraria al caso en estudio, sería posible predecir que las concentraciones de las impurezas de otros elementos de las tierras raras en la droga patrón de Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> están acotadas entre 5 y 15 ppm.

En la Tabla II.9 se pueden observar las posibles reacciones de captura que se podrían producir a partir de las impurezas contenidas en la muestra de Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Se indican sólo las más relevantes, desde las constantes nucleares, sobre todo de su periodo de semidesintegración.

**Tabla II.9 Posibles reacciones de captura que se podrían producir a partir de las impurezas contenidas en la muestra de Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.**

Reacciones Nucleares	Periodo
$^{45}\text{Sc}(n,\gamma)^{46}\text{Sc}$	83,82 d
$^{139}\text{La}(n,\gamma)^{140}\text{La}$	40,272 h
$^{140}\text{Ce}(n,\gamma)^{141}\text{Ce}$	32,50 d
$^{146}\text{Nd}(n,\gamma)^{147}\text{Nd}$	10,98 d
$^{151}\text{Eu}(n,\gamma)^{152}\text{Eu}$	13,33 a
$^{153}\text{Eu}(n,\gamma)^{154}\text{Eu}$	8,8 a
$^{152}\text{Gd}(n,\gamma)^{153}\text{Gd}$	239,47 d
$^{159}\text{Tb}(n,\gamma)^{160}\text{Tb}$	73,2 d
$^{169}\text{Tm}(n,\gamma)^{170}\text{Tm}$	128,6 d
$^{168}\text{Yb}(n,\gamma)^{169}\text{Yb}$	32 d
$^{174}\text{Yb}(n,\gamma)^{175}\text{Yb}$	4,2 d
$^{176}\text{Lu}(n,\gamma)^{177}\text{Lu}$	6,71 d

Es difícil establecer a priori la influencia de estas impurezas en la eventual detección de  $^{156}\text{Eu}$ . El panorama global muestra que, tanto desde las características nucleares de la matriz como las de las posibles impurezas, no resultaba posible asegurar el éxito de las experiencias tendientes a su determinación.

### III. Parte Experimental

Las irradiaciones se llevaron a cabo en el Reactor RA-3, mientras que las mediciones y la adquisición de datos en el laboratorio del grupo Radioquímica Básica de Datos Nucleares; ambos se encuentran en el Centro Atómico Ezeiza.

#### Reactor RA-3

El reactor RA-3 es un reactor tipo pileta, refrigerado y moderado con agua liviana. Cada elemento combustible es del tipo MTR (Material Testing Reactor) de 19 placas. Alrededor del núcleo se encuentran bloques de grafito que conforman el reflector de neutrones. Tanto en este último como en el núcleo se encuentran las cajas de irradiación, dentro de las cuales se colocan las muestras a irradiar.

Una configuración del núcleo se puede observar en la Figura III.1

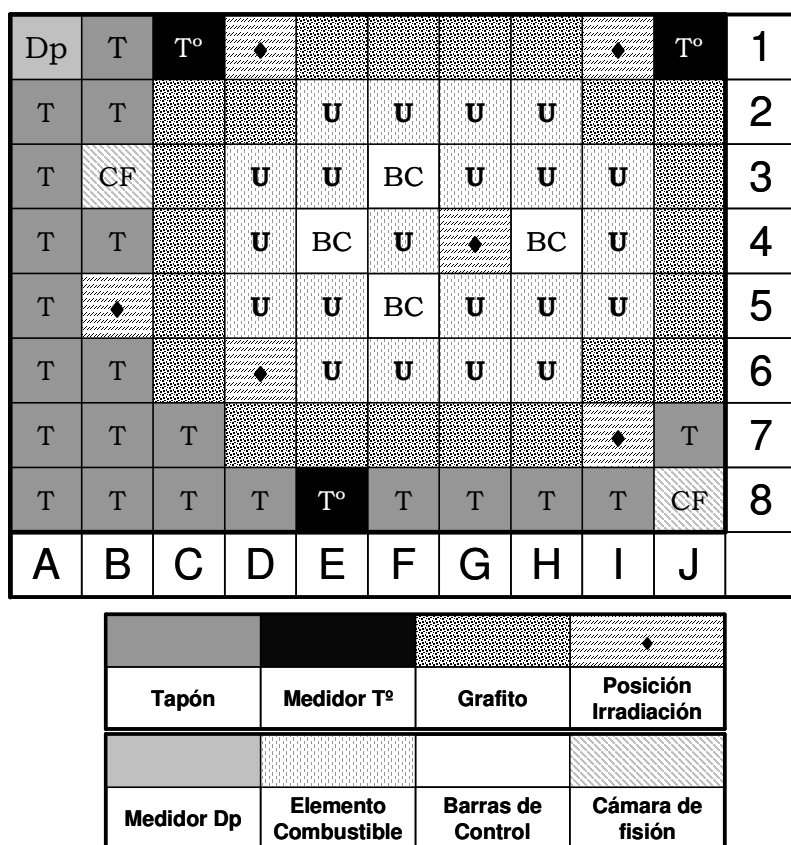


Figura III.1 Representación esquemática del núcleo del reactor RA-3

El reactor posee cuatro barras de control grueso, indicadas con los números 1-4, compuestas de una aleación de cadmio-indio-plata, una columna térmica y dos cámaras de fisión (detectores). Las barras se insertan dentro de cajas equivalentes a las de los elementos combustibles. Durante la operación dos de las cuatro barras de control modifican su posición dentro del núcleo, de modo de

mantener al reactor crítico a la potencia establecida, mientras que las otras dos, definidas como de seguridad, permanecen totalmente fuera del núcleo.

Existe una barra de ajuste fino para amortiguar pequeñas variaciones de potencia;; en condiciones normales de operación no se requiere su utilización. Las barras se insertarán completamente por gravedad para extinguir el reactor en caso de dispararse la lógica de seguridad o si son accionadas por el operador de la instalación, de ser necesario. Este tipo de interrupción de la operación del reactor se denomina SCRAM.

Los valores típicos de flujo neutrónico en las posiciones seleccionadas en el presente trabajo para la irradiación operando el reactor a su máxima potencia, 10 MW térmicos, se muestran en la Tabla III.1. Los datos corresponden a mediciones y cálculos realizados durante los meses de marzo y abril de 2009 y fueron suministrados por el sector Física del reactor RA-3 vía comunicación personal.

Es importante destacar que los cálculos de activación que se describieron en la sección anterior se realizaron considerando un flujo térmico de  $4 \times 10^{13} \text{ n.cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . El reactor RA-3 puede alcanzar flujos del orden de  $10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ , situación que favorecería mucho la formación del radionucleido de interés (Al tratarse de un producto de doble captura, su actividad depende del flujo al cuadrado, a diferencia del resto de las reacciones que se producirán en la muestra). Sin embargo estas posiciones de irradiación no se encuentran usualmente disponibles para este tipo de ensayos, ya que se reservan para la producción de radioisótopos. Las estimaciones de actividades obtenidas se realizaron teniendo en cuenta las condiciones reales de irradiación, en las posiciones accesibles.

**Tabla III.1 Valores aproximados de las componentes del flujo del reactor en las posiciones de irradiación**

Posición	Flujo térmico	Flujo epitérmico	Flujo rápido
B5-4X	$2,7 \times 10^{13} \text{ n.cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	Sin datos	Sin datos
D6-4X	$5,7 \times 10^{13} \text{ n.cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	$2,3 \times 10^{13} \text{ n.cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	$1,1 \times 10^{13} \text{ n.cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$

Las cápsulas a irradiar se trasladan desde el laboratorio y son introducidas en las respectivas posiciones de irradiación del reactor por personal especializado.

Al finalizar el proceso, y una vez retiradas las muestras de la posición de irradiación, se transfieren a una celda blindada, dentro del mismo edificio del reactor, donde se abren las cápsulas de irradiación asegurando el cumplimiento de las medidas de protección radiológica. Se mide la dosis y, en caso de ser aprobadas para su retiro, las muestras son colocadas en un blindaje de plomo y trasladadas hasta el laboratorio

## **Sistema de Medición**

Uno de los métodos más usados para la identificación de radionucleidos es la espectrometría gamma de alta resolución. A partir del espectro de las radiaciones gamma que emiten, se averiguan las energías de los picos observados mediante una curva de calibración con patrones certificados. Utilizando tablas específicas, los espectros son interpretados, utilizando como criterio de asignación las energías medidas y el conteo de las áreas de los picos. Se reconocen de esta forma a los radionucleidos y se identifican a sus precursores.

La medición de la radiación gamma tiene la ventaja adicional de que, en la mayoría de los casos, la atenuación que sufre al atravesar muestras pequeñas es mínima y no significativa.

### ***Adquisición y Tratamiento de Datos***

El sistema de medición empleado consta de un detector de radiación de estado sólido, de germanio intrínseco (GeHP) marca ORTEC, de 67 cm<sup>3</sup>, con una resolución de 2,0 keV en el pico de 1332,5 keV de <sup>60</sup>Co y una eficiencia de 18 % respecto a un cristal de NaI(Tl) de 3" x 3", a una distancia de 25 cm para la misma transición

El sistema de detección se completa con una fuente de alta tensión ORTEC 660, un amplificador ORTEC 672 y un módulo conversor analógico digital y analizador multicanal ORTEC 919E.

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

El sistema cuenta con un blindaje de plomo de 10 cm de espesor, para reducir la radiación de fondo que alcanza al detector, proveniente de los nucleidos radiactivos naturales, como el <sup>40</sup>K y los miembros de las familias radiactivas del uranio y del torio. En ocasiones se detectan también nucleidos generados por la operación del reactor. La parte interna del blindaje se encuentra recubierta por 3 láminas de diferentes elementos con pesos atómicos progresivamente menores, minimizando de esta forma la detección de rayos X del material del blindaje.

Los datos se procesan utilizando el software de adquisición, representación y análisis de espectros GammaVision versión 5.3, de la firma ORTEC.

### ***Condiciones de Medición***

La muestra se posiciona en el detector mediante anillos de acrílico que poseen un sistema de encastre, pudiendo obtenerse diferentes distancias fuente – detector. En todos los casos debe asegurarse que la muestra esté centrada.

Antes de comenzar a analizar la muestra, es importante optimizar el tiempo de medición. Se realizan pruebas para obtener mediciones con buena estadística y baja incertidumbre, principalmente en los picos de mayor interés. Además es necesario ajustar la geometría donde va a ser colocada la muestra, de forma tal que los tiempos muertos sean preferentemente menores que 5%.

### ***Procesamiento de Datos***

Una vez obtenido el espectro, se hace un barrido de las energías en forma decreciente y se averiguan las áreas de los picos en el espectro, junto con las incertidumbres, utilizando las funciones del software GammaVision.

La identificación de los nucleidos se realiza utilizando como referencia las tablas sistematizadas por energía y por nucleido.

Se identifica cada pico con la energía del nucleido correspondiente, teniendo en cuenta los tiempos de decaimiento y de medición y el periodo del nucleido. También se analiza, en cada caso, la posible reacción nuclear o el decaimiento que podrían dar origen a los nucleidos que aparecen en el espectro.

## **Condiciones Experimentales**

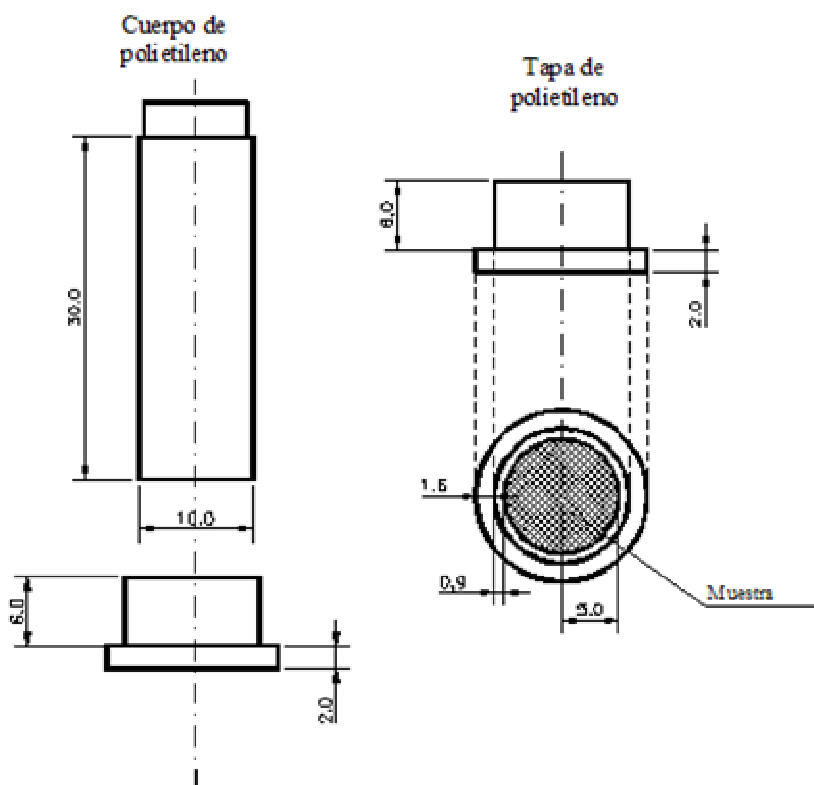
### ***Irradiación***

La droga de samario empleada para el estudio fue  $\text{Sm}_2\text{O}_3$  (polvo) de pureza espectrográfica (Jonhson Matthey & Co., Limited; London).

Tal como fue mencionado, las irradiaciones se realizaron en dos posiciones de las cajas del reactor RA-3. En la Tabla III.2 se indican las características de cada irradiación.

Se utilizaron dos técnicas diferentes para el acondicionamiento de la muestra a irradiar. En primera instancia, las muestras fueron pesadas y selladas en recipiente de polietileno, cuyas dimensiones se indican más adelante, y luego colocadas en cápsulas de aluminio (canes) para su irradiación en las cajas del reactor. Esta estrategia fue empleada en el caso de las irradiaciones cortas (hasta 6 h) observándose un oscurecimiento del recipiente de polietileno característico del daño por radiación. Al momento de realizar irradiaciones más largas fue necesario cambiar el contenedor de la muestra y se optó por usar un envoltorio de papel aluminio de aproximadamente 1,5 cm de lado.

Las muestras irradiadas en polietileno fueron medidas directamente y las irradiadas en aluminio fueron trasvasadas a idénticos recipientes, previamente tarados. De esta manera se aseguró consistencia en las geometrías de medición. En la figura III.2 se indican la forma y las dimensiones de los envases usados



**Figura III.2** Forma y dimensiones de los envases de polietileno.

La irradiación inicial se efectuó durante 6 horas, con el objeto de generar una primera instancia de caracterización que permitiera identificar a los radionucleidos producidos por las reacciones de captura. El tiempo de irradiación se acotó, además, para evitar los efectos indeseables de la dosis de radiación sobre la matriz del polímero que contenía a la muestra.

**Tabla III.2** Detalles de las Irradiaciones

Código de irradiación	Masa de $\text{Sm}_2\text{O}_3$ (mg)	Tiempo de irradiación	Posición
Interno		(h)	
R19	10,5	6	D6-4X
R20	10,5	6	B5-4X

En la primera experiencia (irradiaciones R19 y R20), que como fue mencionado tenía carácter exploratorio, el análisis se concentró preferentemente en la muestra irradiada en la posición B5-4X, que permitía realizar mediciones más cortas y presentaba resultados semejantes a la irradiada en D6-4X.

### ***Medición***

Debido al alto tiempo muerto, aun en geometrías alejadas del detector, sólo fue posible medir las muestras correspondientes al primer par de irradiaciones al cabo de 26 días de decaimiento. A partir de allí, se efectuó el seguimiento diario de las mediciones.

Durante los primeros días, se observó que, a pesar del tiempo de decaimiento, el pico de 103,18 keV del  $^{153}\text{Sm}$  presentaba un alto conteo. Posteriormente, se encontró que la presencia de impurezas, en especial  $^{169}\text{Yb}$ ,  $^{175}\text{Yb}$  y  $^{152}\text{Eu}$ , imposibilitaba medir la muestra en geometrías cercanas al detector.

Aun en mediciones largas se presentaban serias dificultades para identificar al nucleido de interés. Las eficiencias pobres, debidas a las geometrías alejadas del detector, sumadas al tiempo transcurrido (más de dos periodos del  $^{156}\text{Eu}$ ) hacían que los picos de  $^{156}\text{Eu}$  apenas llegaran a detectarse.

Con el objeto de subsanar los problemas descriptos se recurrió al empleo de un absorbedor de plomo de 3,2 mm de espesor, lo que permitió atenuar las bajas energías, entre las que se encontraban el pico de 105,31 keV del  $^{155}\text{Eu}$ , algunos del  $^{152}\text{Eu}$  y la mayor parte de los picos del  $^{169}\text{Yb}$ . De esta forma disminuyó sensiblemente el tiempo muerto y se eliminó una buena parte de las interferencias. Esta estrategia permitió la identificación y la cuantificación del  $^{156}\text{Eu}$ , aunque con estadística relativamente pobre.

Sobre la base de los resultados de estas primeras experiencias, se decidió efectuar las nuevas irradiaciones utilizando una menor masa de  $\text{Sm}_2\text{O}_3$ , aumentando considerablemente, en cambio, el tiempo de irradiación. Igualmente, se resolvió medir las muestras bajo plomo (de ser necesario con espesor mayor) y minimizar así el tiempo de decaimiento. En estas condiciones fue posible realizar la primera serie de mediciones al cabo de 6 días de decaimiento. El blindaje utilizado, en este caso, fue de 6,7 mm de espesor de pared y 8,3 mm de base con el agregado de una placa de plomo de 10 mm de espesor en la base.

## IV. Resultados y Discusión

Los resultados muestran que el factor limitante en la determinación del  $^{156}\text{Eu}$  se encuentra, antes que en la relación de actividades de los productos de activación del samario, en las interferencias que se generan a partir de las impurezas de la droga.

La Tabla IV.1 se observa el listado de los radionucleidos procedentes de las impurezas, identificados en las sucesivas mediciones, junto con sus características más importantes. Puede verse que varios de estos radionucleidos tienen periodos más largos que el del  $^{156}\text{Eu}$ , de forma tal que un mayor tiempo de decaimiento sólo contribuiría a empeorar la situación.

Es evidente que plantear la separación radioquímica del  $^{156}\text{Eu}$  es una alternativa cargada de dificultades, en razón de que, con la única excepción del  $^{65}\text{Zn}$ , las interferencias tienen comportamiento químico análogo. Por otra parte, la pureza de la droga utilizada se encuentra entre las más altas que pueden encontrarse en el mercado.

Así delineado el problema, la única solución viable resulta ser la que se ensayó en el presente trabajo, es decir, la medición con absorbedores de plomo interpuestos entre la muestra y el detector.

En las Figuras IV.1 y IV.2 se muestran, a modo de ejemplo, los espectros de la irradiación R28, con y sin absorbedor de plomo, en los que se indican los picos principales del  $^{156}\text{Eu}$  y el pico de 103,18 keV del  $^{153}\text{Sm}$ . También se presenta, en la Figura IV.3, un detalle de la zona de los espectros correspondiente a las bajas energías (hasta aproximadamente 280 keV) donde puede apreciarse el efecto de atenuación del plomo.

Una medida cualitativa sobre el cambio de condiciones de medición que implica el uso de un absorbedor de plomo está representada en la Figura IV.4, en donde se muestra una curva de eficiencia relativa, calculada a partir de los picos de  $^{152}\text{Eu}$  medidos en la muestra. El máximo de esta curva se sitúa en alrededor de 490 keV; el pico de 244,70 keV introduce una distorsión significativa en la forma de la curva y en su regresión, mientras que el pico de 121,78 keV, el más intenso del  $^{152}\text{Eu}$ , no llega a registrar cuentas.

Una evaluación cuantitativa de la situación descrita se muestra en la Tabla IV.2, en donde se comparan las velocidades de conteo del pico de 1408,01 keV del  $^{152}\text{Eu}$ , a 10 cm (mejor geometría posible) y en contacto con el absorbedor de plomo de 3,2 mm apoyado sobre el detector. La velocidad de conteo favorece a esta última medición en una relación de 13, referencia muy importante porque muchos de los picos de  $^{156}\text{Eu}$  son aún de mayor energía.

Figura IV.1 Espectro de la Irradiación R28 sin Absorbedor de Pb

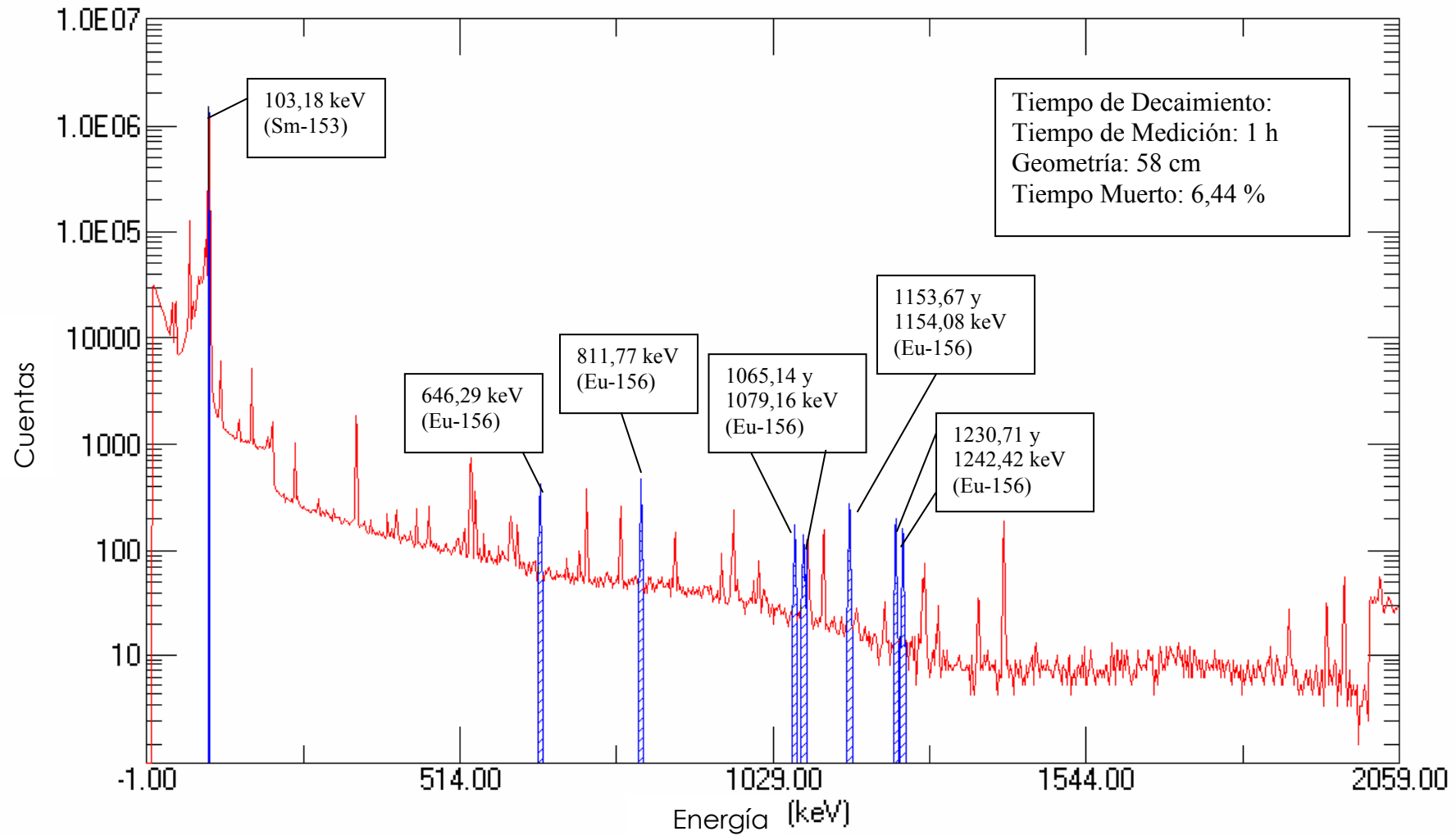
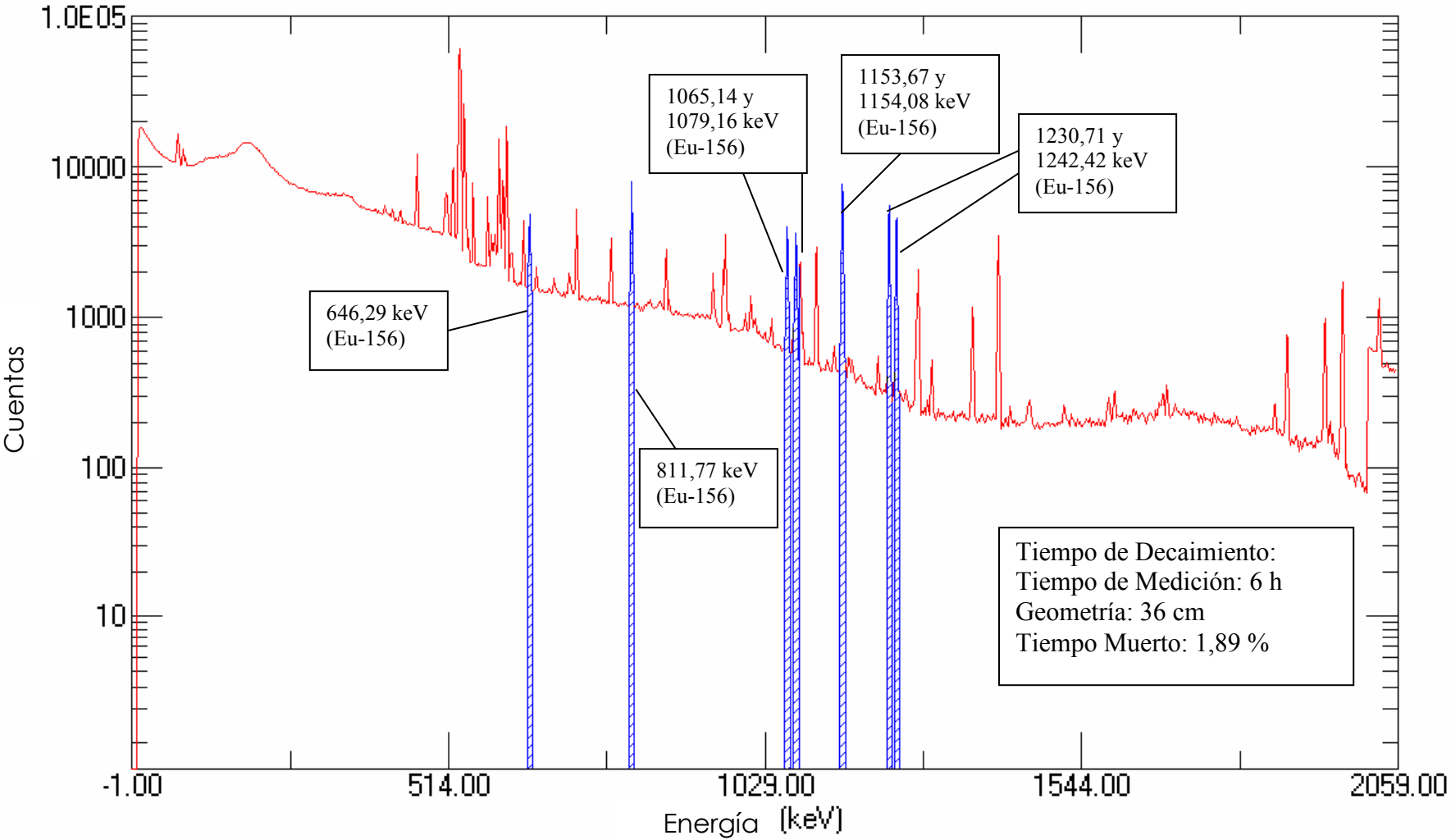


Figura IV.2 Espectro de la Irradiación R28 con Absorbedor de Pb



**Figura IV.3 Detalle de la Zona de Bajas Energías para la Irradiación R28 con y sin Absorbedor de Pb**

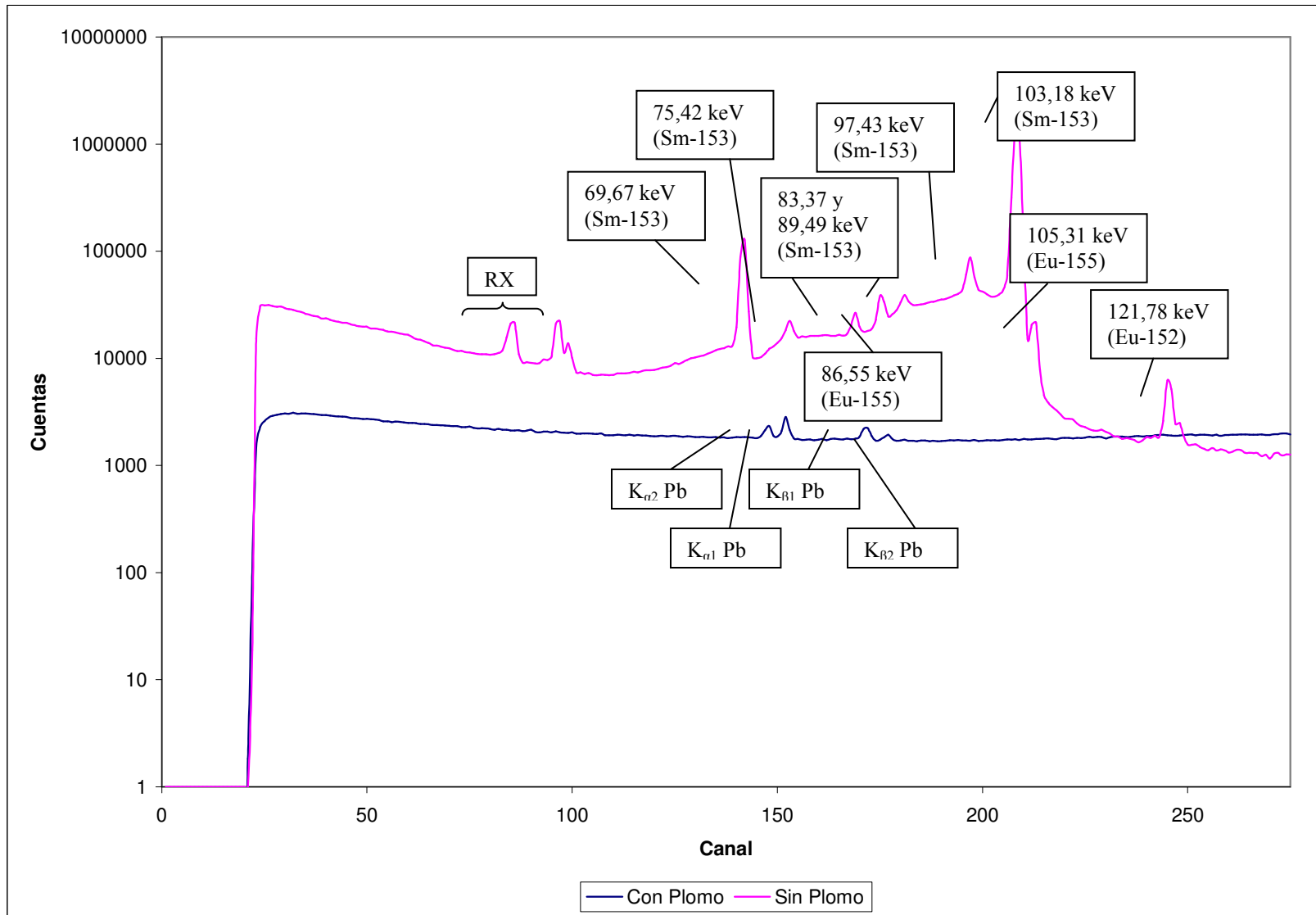


Tabla IV.1 Listado de los radionucleidos procedentes de las impurezas, identificados en las sucesivas mediciones, junto con sus características más importantes.

<u>Nucleido</u>	<u>Energía-keV (intensidad %)</u>	
<sup>46</sup> Sc Periodo :83,82 d	889,28 (99,98)	1120,55 (99,98)

<u>Nucleido</u>	<u>Energía-keV (intensidad %)</u>	
<sup>65</sup> Zn Periodo: 244,3 d	770,64 (0,003)	1115,54 (50,6)

<u>Nucleido</u>	<u>Energía-keV (intensidad %)</u>	
<sup>147</sup> Nd Periodo: 10,98 d	275,37 (0,8)	531,02 (13,1)

<u>Nucleido</u>	<u>Energía-keV (intensidad %)</u>	
<sup>153</sup> Sm Periodo: 46,27 h	69,67 (4,65)	103,18 (29,23)
	75,42 (0,233)	151,62 (0,0115)
	83,37 (0,211)	172,85 (0,0716)
	89,63 (0,156)	539,1 (0,0206)
	97,43 (0,755)	

<u>Nucleido</u>	<u>Energía-keV (intensidad %)</u>	
$^{152}\text{Eu}$ <b>Periodo: 13,33 a</b>	121,78 (28,58)	688,67 (0,857)
	244,7 (7,58)	719,35 (0,278)
	271,135 (0,073)	764,9 (0,215)
	295,94 (0,447)	778,9 (12,94)
	315,173 (0,0507)	794,78 (0,0246)
	329,43 (0,128)	867,37 (4,245)
	344,28 (26,5)	901,186 (0,092)
	351,67 (0,009)	919,33 (0,427)
	367,79 (0,861)	926,32 (0,278)
	411,12 (2,234)	930,584 (0,073)
	416,052 (0,1106)	990,2 (0,0309)
	443,96 (3,148)	1005,27 (0,646)
	482,3 (0,033)	1085,87 (10,21)
	488,68 (0,419)	1089,74 (1,727)
	494,9 (0,015)	1112,07 (13,64)
	503,47 (0,149)	1212,95 (1,422)
	520,23 (0,0536)	1249,94 (0,188)
	534,248 (0,043)	1299,14 (1,623)
	563,99 (0,489)	1348,09 (0,0169)
	586,26 (0,459)	1408,01 (21)
656,49 (0,14)	1457,64 (0,502)	
671,151 (0,023)	1528,1 (0,281)	
678,62 (0,471)	1769,09 (0,0088)	

<u>Nucleido</u>	<u>Energía-keV (intensidad %)</u>	
$^{154}\text{Eu}$ <b>Periodo: 8,8 a</b>	247,93 (6,91)	845,39 (0,588)
	401,26 (0,19)	850,64 (0,242)
	467,84 (0,061)	873,19 (12,2)
	478,27 (0,22)	880,61 (0,081)
	557,58 (0,268)	892,78 (0,515)
	582,01 (0,889)	904,08 (0,893)
	591,76 (4,96)	996,26 (10,23)
	625,25 (0,318)	1128,56 (0,318)
	676,6 (0,157)	1140,71 (0,24)
	692,42 (1,792)	1246,15 (0,869)
	723,3 (20,11)	1494,05 (0,7)
	756,8 (4,54)	1537,82 (0,053)
815,51 (0,516)	1596,49 (0,1788)	

<u>Nucleido</u>	<u>Energía-keV (intensidad %)</u>	
$^{155}\text{Eu}$ <b>Periodo: 4,761 a</b>	86,55 (30,7)	105,31 (21,2)

<u>Nucleido</u>	<u>Energía-keV (intensidad %)</u>	
$^{160}\text{Tb}$ <b>Periodo: 72,3 a</b>	298,88 (14,9)	965,29 (30,1)
	880,3 (21,1)	1179,04 (26,1)

<u>Nucleido</u>	<u>Energía-keV (intensidad %)</u>	
$^{169}\text{Yb}$ <b>Periodo: 32,0 d</b>	109,78 (17,5)	261,08 (1,71)
	118,19 (1,87)	307,74 (10,05)
	130,52 (11,31)	386,673 (0,00034)
	177,21 (22,2)	494,36 (0,001486)
	197,96 (35,8)	528,572 (0,000175)

<u>Nucleido</u>	<u>Energía-keV (intensidad %)</u>	
$^{175}\text{Yb}$ <b>Periodo: 4,2 d</b>	113,81 (3,87)	
	144,86 (0,672)	282,52 (6,13)
	251,474 (0,084)	396,33 (13,2)

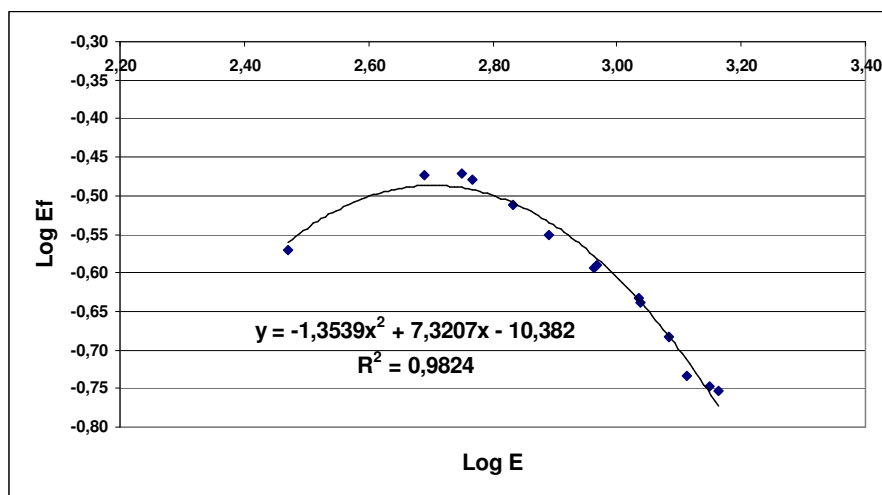


Figura IV.4. Curva de eficiencia relativa obtenida por medición de la muestra con un absorbedor de plomo de 3,2 mm (picos del  $^{152}\text{Eu}$ )

**Tabla IV.2 Comparación de resultados de las mediciones de la muestra desnuda y con absorbedor de plomo. Energía de referencia: 1408, 01 keV**

Condiciones de medición	Muestra desnuda	Medición con absorbedor de plomo
Velocidad de conteo, cuentas/h	5552	72613
Factor	13	

La combinación entre tiempos de irradiación mayores (con menor masa de muestra), tiempos mínimos de decaimiento y uso de absorbedores de plomo para la medición brinda condiciones mucho más favorables para la determinación cuantitativa del  $^{156}\text{Eu}$ . A título de ejemplo, se indican en la Tabla IV.3 los conteos de varios picos del  $^{156}\text{Eu}$ , obtenidos por medición de una de las muestras irradiadas en la segunda serie de experiencias. En este caso la muestra se midió durante 6 horas, luego de un decaimiento de 8 días, a una geometría de 36 cm e interponiendo un absorbedor de plomo de 1,83 cm. El aspecto más favorable de este resultado es que la estadística de medición es enteramente adecuada para una medición con baja incertidumbre y permite inferir que bajo condiciones similares es posible ensayar la redeterminación de las constantes nucleares del  $^{156}\text{Eu}$  y las involucradas en su formación.

**Tabla IV.3 Conteo de algunos de los picos de  $^{156}\text{Eu}$  en la segunda experiencia de irradiación. Tiempo de irradiación: 48 h; tiempo de decaimiento: 8 d ; tiempo de medición: 6 h; geometría: 36 cm con absorbedor de plomo de 1,83 cm.**

Picos (keV)	Conteo	Incertidumbre
646,29	11177	212
1065,14	13210	179
1079,16	12967	180
1153,53	30599	211
1154,08		
1230,71	21670	176
1242,42	17819	165

## Conclusiones

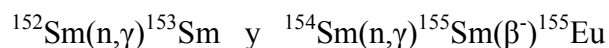
El estudio de la producción de  $^{156}\text{Eu}$  a partir de la activación de samario puede servir para la formulación de comentarios específicos con respecto a investigaciones de similar naturaleza.

- Como observación general, es difícil pensar que la producción de un radionucleido a partir de reacciones de doble captura pueda ser viable en un reactor de bajo flujo. La dependencia de la activación de esta clase de radionucleidos con el cuadrado del flujo neutrónico representa una condición que podría ser limitante o favorable, en función de los valores involucrados. Un reactor de alto flujo favorecería la inducción de actividades detectables en valor absoluto, y también implicaría una relación de actividades más favorable, con respecto a los radionucleidos producidos por reacción directa.
- Es imprescindible plantear y resolver las ecuaciones diferenciales para la activación de todas las especies vinculadas a la producción de un radionucleido por doble captura neutrónica, ya que la solución final puede apartarse significativamente, en cuanto a su dependencia temporal, con la ecuación general de activación. Se ha visto en este trabajo que la relación entre actividades estimadas de  $^{156}\text{Eu}$ , producido por captura sobre  $^{155}\text{Eu}$ , producto a su vez de una reacción de captura simple, registra una dependencia temporal que difícilmente podría haberse considerado a priori, sobre la base de sus periodos.
- En los casos que involucren a algún elemento de las tierras raras, las impurezas de los otros elementos de la misma familia puede representar un factor limitante, o hasta un impedimento insalvable, independientemente de las especies que se generen sobre los isótopos del elemento puro.
- Puesto que la vía de la separación radioquímica es de difícil aplicación, es necesario optimizar todas las variables que conduzcan a la determinación del radionucleido de interés por métodos puramente instrumentales. Se incluyen en este caso los factores temporales, específicamente los tiempos de irradiación y de decaimiento, y los que eventualmente podrían contribuir al establecimiento de condiciones de medición más favorables. En el presente trabajo, la medición empleando absorbedores de plomo representó una componente casi decisiva en la definición de la factibilidad de determinación cuantitativa del  $^{156}\text{Eu}$ .
- La identificación segura del radionucleido de interés en estudios de esta naturaleza debe estar sostenida no sólo por la evidencia de su presencia, sino también por la ausencia de interferencias significativas. Es necesario, por tal razón, efectuar la interpretación de todos los componentes de los espectros de energía gamma, así como la medición repetida de cada muestra, con el objeto de ver su evolución en tiempo. En este trabajo, esta tarea implicó la

asignación de los correspondientes radionucleidos a espectros que mostraban más de 100 picos claramente distinguibles del fondo.

En relación con el estudio de caso que se ha desarrollado en forma particular, han quedado delineadas las condiciones experimentales más favorables para la determinación cuantitativa del  $^{156}\text{Eu}$ . Ellas consisten, básicamente, en la irradiación de masas pequeñas de óxido de samario durante el lapso de operación continua más alto que se pueda tener (en el reactor RA-3, 120 horas) y en la posición de mayor flujo disponible; acondicionamiento para la medición con el menor tiempo de decaimiento que sea compatible con las normas de protección radiológica y con el funcionamiento adecuado de los equipos de medición y, finalmente, medición con absorbedores de plomo, para mejorar la geometría de medición.

Un aspecto sobre el cual no se efectuaron estudios específicos, pero que ha sido tenido en cuenta con relación a la proyección futura de estas investigaciones, es la estandarización, con respecto a la medición de las componentes térmica y epitérmica del flujo neutrónico. Puesto que la sección eficaz promedio del samario es muy elevada, podrían producirse efectos de apantallamiento del flujo en el interior de la muestra, que no serían detectables si se usaran monitores externos. Por ello, se propone aquí la utilización de dos reacciones producidas sobre el mismo samario, que harían las veces de monitores internos. Ellas son:



Las secciones eficaces e integrales de resonancia para ambas reacciones guardan una relación, en cada caso de 14,4 y 4,3 [Blaaw, 2009] que haría posible la determinación de ambas componentes mediante un sistema simple de dos ecuaciones con dos incógnitas. Como factor favorable, debe señalarse que la proximidad en energías del  $^{153}\text{Sm}$  y del  $^{155}\text{Eu}$  haría posible su medición con prácticamente la misma eficiencia, reduciendo una fuente de incertidumbre. Debido a su muy alta diferencia en periodos y en actividades inicialmente formadas, tal medición podría hacerse en forma secuencial, es decir midiendo primeramente el  $^{153}\text{Sm}$  y aguardando su decaimiento para medir luego el  $^{155}\text{Eu}$ .

Con esta última consideración se cierra este trabajo, estimando haber cumplido con su objetivo: la optimización de las condiciones de producción en reactores de  $^{156}\text{Eu}$  por activación de samario, para la redeterminación de sus constantes nucleares.

## Bibliografía

**Blaaw**, M., 2009

Sitio Oficial de  $k_0$ , disponible vía Internet,

[www.k0naa.org](http://www.k0naa.org) (última consulta Diciembre 2009)

**Cohen**, I. M.; Korob, R. O.; Milá, M. I.; Rocca, H. C. , 1976

“Interferencias por Doble Captura en Análisis por Activación”.

Informe CNEA N° 416

**Knapp**, F.F. (Jr.) 2001

*“Future Prospects for Medical Radionuclide Production in High Flux Isotope Reactor (HFIR) at the Oak Ridge National Laboratory (ORNL)”*

Annals of Nucl. Med. Sci., Taiwan, 14, 109-118

**Magill**, J.; Pfennig, G.; Galy, J., 2006

Karlsruher Nuklidkarte, Institut für Radiochemie, Forschungszentrum Karlsruhe GmbH

**Melcer**, E. 2006

*“Evolución Temporal de las Actividades Inducidas por Doble Captura Neutrónica en Isótopos de Erblio y Tulio”*

Tesina en Ciencias Aplicadas - UTN – UDB Matemática – Área de Matemática Aplicada

**Pedreira**, W. R.; Queiroz, C. A.; Abrão, A.; Rocha, S. M.; de Vasconcellos, M. E.; Boaventura, G. R.; Pimentel, M. M., 2006

*“Trace amounts of rare earth elements in high purity samarium oxide by sector field inductively coupled plasma mass spectrometry after separation by HPLC”*

Journal of Alloy and Compounds 418 (2006) 247-250

**Pfennig**, G.; Klewe-Nebenius, H.; Seelmann-Eggebert, W., 1995

Karlsruher Nuklidkarte, Institut für Radiochemie, Forschungszentrum Karlsruhe GmbH

**Pozzi**, E. y Departamento de Física del Reactor RA-3, 2009

Comunicación personal.

**Seilmann-Eggebert, W.;** Pfennig, G.; Münzel,H.; Klewe-Nebenius, H., 1981  
Karlsruher Nuklidkarte, Institut für Radiochemie, Forschungszentrum Karlsruhe GmbH

**Schötzig, U.;** Schrader, H. , 1998  
Halbwertszeiten und Photonen-Emissionswahrscheinlichkeiten von häufig verwendeten Radionukliden – 5<sup>ta</sup> Edición Ampliada - PTB