

***“EVALUACIÓN DEL USO DE DOSÍMETROS FRICKE PARA LA
MEDICIÓN DE TASA DE DOSIS GAMMA EN EL CAMPO MIXTO
DE LA FACILIDAD CENTRAL DE COLUMNA TÉRMICA DEL
REACTOR RA-3”***

***CARRERA: ESPECIALIZACIÓN EN REACTORES NUCLEARES
Y SU CICLO DE COMBUSTIBLE***

Alumno:	Ing. Luciana Noelia Ivaldi
Director:	Dr. Emiliano Pozzi
Co-director:	Téc. Paula Curotto

Noviembre 2016



UNSAM
UNIVERSIDAD
NACIONAL DE
SAN MARTÍN

Índice

Resumen	3
1. Introducción	5
1.1. El Reactor RA-3	5
1.2. Facilidad de irradiación Central de la Columna Térmica	5
1.3. Aplicación de la FCCT	9
1.4. Dosimetría en BNCT	10
1.5. Dosímetro Fricke	11
1.6. Antecedentes	12
1.7. Objetivo	13
2. Desarrollo	14
2.1. Preparación de solución Fricke	14
2.2. Preparación de los dosímetros	14
2.3. Experiencias en la FCCT	14
2.4. Experiencia en configuración “Blindaje N° 1”	16
2.4.1. Resultados	24
2.4.2. Discusión	28
2.4.3. Conclusiones	30
2.5. Experiencia en configuración “Blindaje N°2”	31
2.5.1 Caracterización del flujo neutrónico mediante SPND dispuestos en criotubos	35
2.5.2 Resultados	38
2.5.3 Discusión y conclusiones	45
3. Discusión Final	46
4. Reseñas Bibliográficas	47
5. Anexos	50

Resumen

La Facilidad Central de Columna Térmica (FCCT) del reactor RA-3 es un dispositivo de irradiación cuyo campo de radiación está compuesto principalmente de neutrones térmicos con una componente gamma asociada (campo mixto). Una de las mayores dificultades de la dosimetría gamma en campos mixtos, reside en poder discriminar la perturbación debida al alto flujo neutrónico. Actualmente la caracterización de tasa de dosis gamma en la FCCT se realiza mediante el uso de una cámara de ionización (CI) de grafito. Sin embargo, es de gran interés contar con un sistema alternativo e independiente que permita la corroboración y/o contrastación de los resultados obtenidos. El sistema dosimétrico Fricke, está reconocido como patrón secundario de referencia para dosimetría de altas dosis en campos gamma puros de radiación. Además, fue propuesto como un método de dosimetría gamma en campos mixtos y, por tal motivo, se comenzó a evaluar la posibilidad de implementación para su uso en la FCCT. En experiencias previas se logró reemplazar los envases que conforman los dosímetros tradicionales (ampollas de vidrio), por un envase de plástico (criotubos de polipropileno) cuyos componentes no se activan al ser expuestos a neutrones térmicos. Además, de manera preliminar se comprobó que los dosímetros son sensibles a la exposición con neutrones térmicos. El objetivo del presente trabajo fue definir un factor de sensibilidad, que permita discriminar la contribución de la dosis debida a cada componente (dosis gamma y dosis debida a neutrones).

Se realizaron experiencias de irradiación en la FCCT en dos configuraciones experimentales utilizando blindajes de neutrones, que permiten modificar el flujo neutrónico manteniendo la tasa de dosis gamma aproximadamente constante. En una primera instancia se planteó una configuración que dio como resultado que la dosis debida a neutrones no es significativa frente a la componente gamma de la fuente, cuando se exponen los dosímetros Fricke a fluencias del orden de $2 \cdot 10^{12} \text{ n cm}^{-2}$.

En una segunda etapa se utilizó otra configuración de manera de exponer los dosímetros a mayores fluencias. Con este diseño se pudo comprobar una respuesta lineal de la dosis total medida en función del tiempo, y se estimó la sensibilidad de los dosímetros Fricke a neutrones térmicos.

Los valores de sensibilidad obtenidos permitieron descontar la contribución neutrónica y comparar la dosis gamma medida por el método Fricke con otras mediciones. Sin embargo, la dosis gamma en la configuración de mayor flujo, siguió

siendo la más alta entre los métodos comparados, lo que sugiere que la sensibilidad a neutrones podría estar siendo subestimada.

Como la incerteza en las determinaciones hasta el momento es muy alta, sería deseable disponer de un diseño experimental que permita exponer dosímetros Fricke a flujos más altos para una misma condición de dosis gamma, de manera de poder medir una componente de dosis por neutrones mayor. También sería deseable poder modelar el dosímetro y evaluar la respuesta en la FCCT por simulación computacional (MCNP). Esta herramienta también podría servir para diseñar un blindaje a medida que permita medir un dosímetro descontando la componente de neutrones experimentalmente perturbando lo menos posible el campo de la FCCT.

1. Introducción

1.1. *El Reactor RA-3*

El Reactor RA-3 se encuentra instalado en el Centro Atómico Ezeiza (CAE), Partido de Ezeiza, Provincia de Buenos Aires, a 33 km de la Ciudad Autónoma de Buenos Aires.

Es un reactor del tipo tanque abierto, con elementos combustibles con uranio enriquecido en U^{235} al 20%. Utiliza como moderador y refrigerante agua liviana, y su núcleo se encuentra reflejado por grafito. La potencia de trabajo licenciada es de 10 MW térmicos.

La aplicación principal del RA-3 es la producción en escala comercial de radioisótopos, actividad para la cual se trabaja operando la máquina 4 días a la semana en forma ininterrumpida. Además, el reactor cuenta con cajas de irradiación, columna térmica, y tubos de haces neutrónicos, que permiten la experimentación en un amplio rango de temas vinculados con la investigación básica y con aplicaciones tecnológicas.

1.2. *Facilidad de irradiación Central de la Columna Térmica*

La Facilidad Central de Columna Térmica (FCCT) del reactor RA-3 es un dispositivo de irradiación que permite la entrada o salida de muestras al canal central de la Columna Térmica (CT) con el reactor operando a plena potencia; mediante un sistema especial de blindajes fijos y móviles.

En la Figura 1 se muestra una vista superior de la CT, en corte longitudinal a la altura del canal central de irradiación de la misma y su ubicación con respecto al núcleo del reactor.

El campo de radiación de la FCCT está compuesto principalmente de neutrones térmicos con una componente gamma asociada (campo mixto).

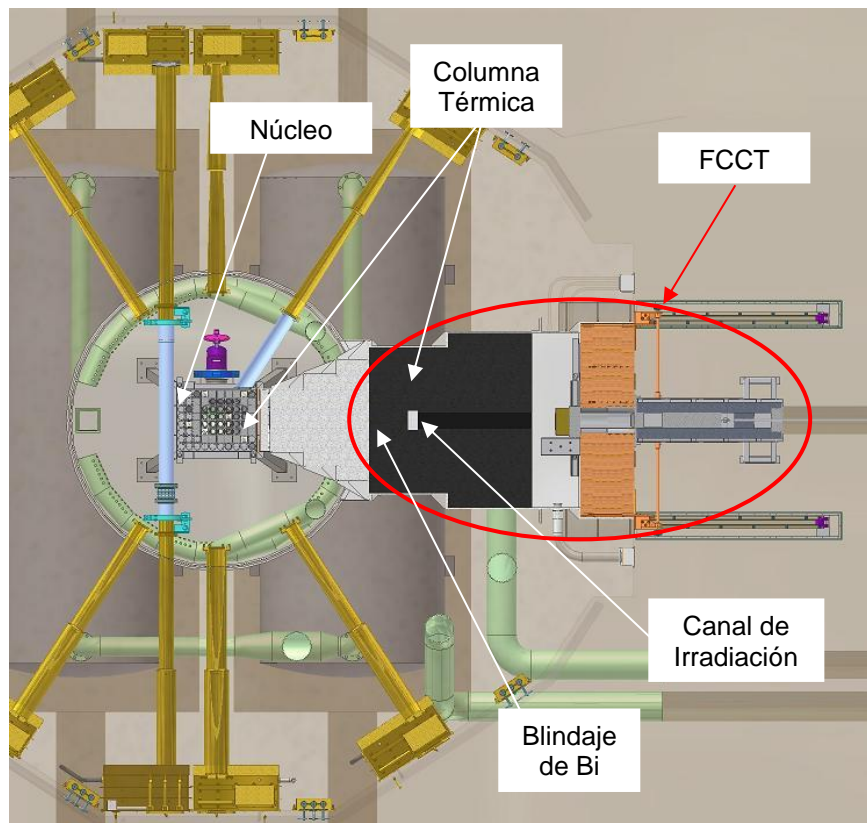


Figura 1. Vista superior del núcleo y la columna térmica a la altura del canal de irradiación central. En rojo se circunscriben las partes que conforman la Facilidad Central de la Columna Térmica (FCCT).

La CT consiste en una estructura de bloques de grafito de pureza nuclear ubicados en un sector del blindaje de concreto del reactor y tiene por objeto disminuir la energía cinética de los neutrones provenientes del núcleo a fin de obtener un flujo termalizado.

En la Figura 2 se muestra un dibujo de un corte longitudinal en vista lateral con referencia de algunas de las partes fundamentales de la FCCT.

Por sus características constructivas, la FCCT permite la irradiación de muestras de diferentes geometrías, siendo el volumen máximo de la cavidad porta muestras de 200 mm de largo x 140 mm de ancho x 110 mm de alto. Dentro de la CT las muestras se exponen a un campo cuasi isotrópico de neutrones térmicos y a un campo de radiación gamma conformado por una componente proveniente directamente del núcleo del reactor y otra, producto de la activación de los materiales estructurales de la columna o de la misma muestra que se expone al flujo de neutrones. El espectro neutrónico se encuentra muy bien caracterizado y la componente de neutrones de otras energías que no sean térmicas es prácticamente despreciable (al menos 3 órdenes de magnitud menor). El flujo térmico medio en aire que se puede obtener en la posición de la bandeja a tope del canal de irradiación (la posición más cercana al

núcleo que se puede alcanzar dentro del canal), es del orden de $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ (Miller et al. 2009).

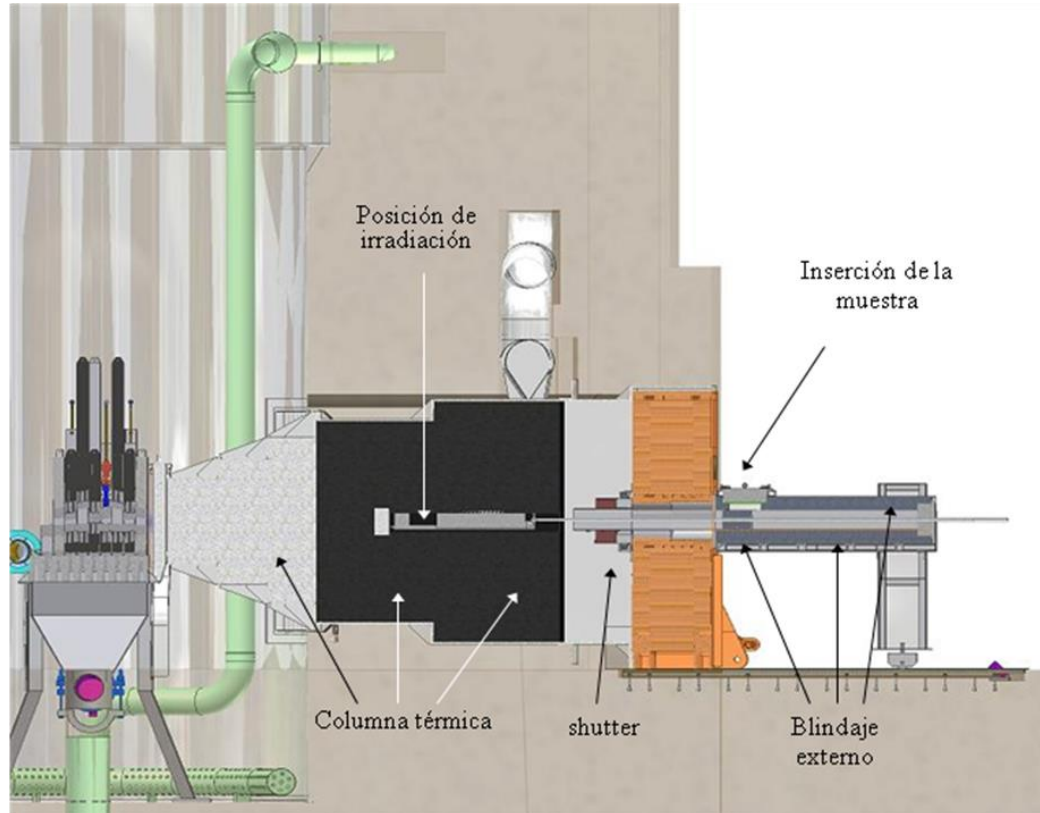


Figura 2. Dibujo en vista lateral de la FCCT en corte longitudinal a la altura del canal de irradiación. En este esquema la bandeja porta-muestras se encuentra en posición de irradiación “a tope”.

El sistema de blindajes de la FCCT consiste en una estructura de hierro que sostiene un blindaje de plomo unido a la puerta de la CT del reactor del lado externo, y un blindaje móvil (shutter), que se encuentra colocado en la puerta de la CT del lado interno, compuesto de un bloque de parafina borada, láminas de cadmio y plomo. El blindaje externo de plomo rodea un tubo de sección rectangular de acero inoxidable por donde se desplaza un sistema de dos bandejas yuxtapuestas que permiten introducir las muestras de forma segura dentro del canal central de la CT.

La bandeja de adelante (stringer), que es de Zircaloy-4, material de baja activación neutrónica, se encuentra preparada para poder desplazar la muestra dentro del canal central de la columna térmica, y se comanda por un caño de tracción/empuje también de Zircaloy-4 (Figura 3). La bandeja de atrás es la que porta el blindaje de plomo.

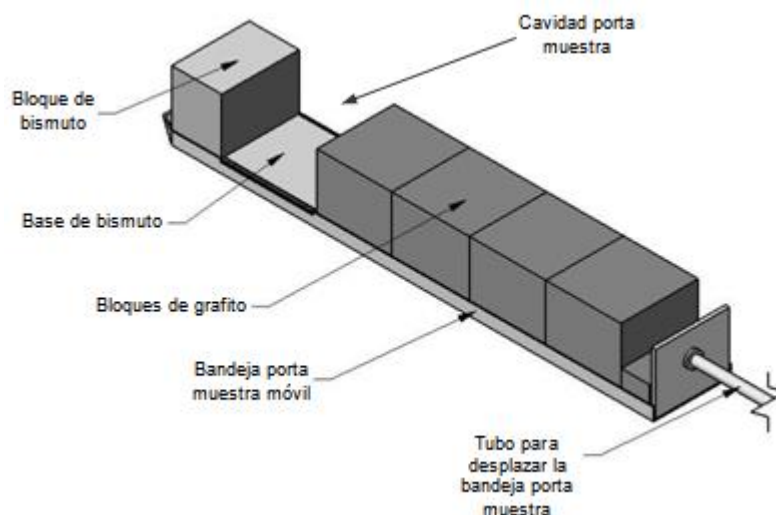


Figura 3. Detalle de la bandeja porta muestras, los blindajes de bismuto adicionales y los grafitos. La configuración de bloques de grafito es variable y se define según las necesidades de cada experiencia.

En su extremo más cercano al núcleo, la bandeja posee un primer bloque de 10 cm de espesor de bismuto con las dimensiones máximas para el ingreso en el canal, colocado con el objetivo de agregar un blindaje gamma extra en la posición de irradiación (Figura 1 y Figura 3). Pegado a este bloque de bismuto se encuentra la cavidad para contener la muestra a ser irradiada, blindada por debajo por otro bloque de bismuto de 3 cm de alto, que ocupa la superficie de la cavidad de la muestra. Esta base de bismuto posee dos funciones principales. Por un lado, blindar la radiación gamma que ingresa a la cavidad porta muestras desde el plano inferior. Por otro, mantener separado el bloque de bismuto de los bloques de grafito de manera de evitar una posible compresión de la muestra durante el movimiento de la bandeja (Crawley y Gadan 2007).

Por detrás de la cavidad porta muestras, la bandeja está preparada para contener una serie bloques de grafito (los grafitos son removibles de acuerdo a las necesidades de irradiación) (Figura 3). Los bloques de grafito están ubicados en el otro extremo de la bandeja para que en posición de irradiación aumente la homogeneidad y la isotropía del flujo neutrónico por reflexión de los neutrones en el grafito (Crawley y Gadan 2007).

La colocación de la muestra a irradiar en la bandeja se realiza a través de la apertura de una puerta blindaje deslizable de entrada de muestras, que se encuentra sobre la cavidad reservada para la misma (Figura 4).



Figura 4. Puerta blindaje de acceso a la cavidad porta muestras. Ésta se desplaza lateralmente para introducir o extraer las muestras de dicha cavidad.

Cuando la bandeja que porta la muestra se encuentra en posición extraída, el shutter se encuentra bloqueando el canal de la FCCT. La apertura del shutter desde un tablero de control remoto permite el ingreso de la bandeja porta muestras a dicho canal. Desde el mismo tablero se procede a su cierre una vez retirada la bandeja. La colocación de la muestra a irradiar en la cavidad de la bandeja se realiza a través de la apertura de una puerta blindaje deslizable que se habilita cuando el shutter se encuentra cerrado por un sistema de enclavamiento.

1.3. Aplicación de la FCCT

Originalmente la FCCT fue diseñada y construida para obtener un campo de radiación de características adecuadas para una futura aplicación clínica de tratamiento de órganos ex-situ por la terapia BNCT. La terapia por captura neutrónica en boro (BNCT), es una modalidad de radioterapia diseñada para entregar selectivamente radiación de partículas pesadas cargadas de alto LET en los tumores a tratar, preservando el tejido normal (IAEA-TECDOC-1223, 2001). Es una técnica binaria que requiere la presencia simultánea de un flujo de neutrones con energía adecuada (neutrones térmicos $\sim 0,025$ eV), y un compuesto borado, conteniendo el isótopo estable ^{10}B . La técnica se basa en la elevada sección eficaz de captura de neutrones que posee el isótopo natural ^{10}B . Este núcleo interactúa con neutrones lentos o “térmicos” desencadenando una reacción de captura que da lugar a la formación de un núcleo compuesto de ^{11}B , que inmediatamente se desintegra en una partícula alfa de 1,47 MeV y un núcleo de ^7Li de 0,84 MeV. Estas partículas se liberan en la misma dirección y sentidos opuestos, poseen un alcance combinado en tejido de 12-13 micrómetros (comparables con las dimensiones de una célula) (Figura 5).

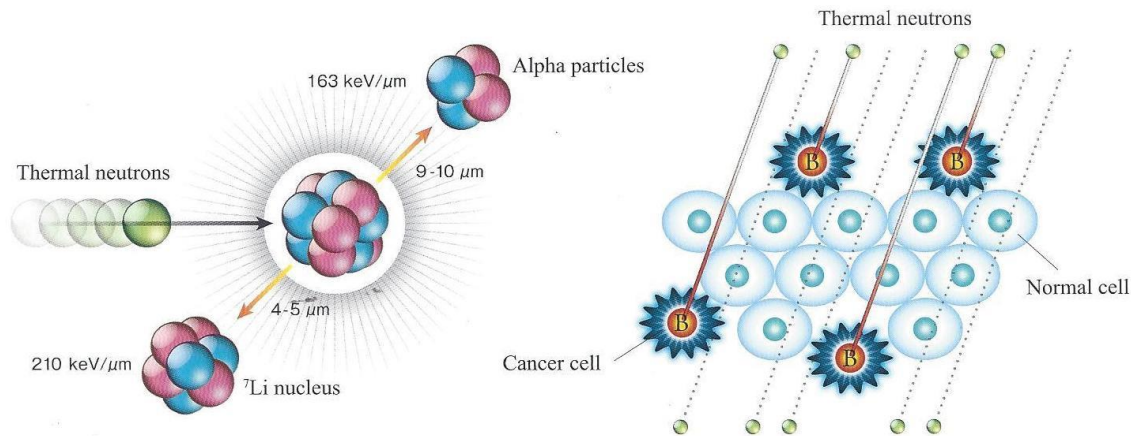


Figura 5. Reacción neutrónica de captura del ^{10}B , en la cual se emite un núcleo de ^4He (partícula alfa) y un núcleo de ^7Li , para destruir células cancerosas (Locher 1936). El rango de estas partículas emitidas es extremadamente corto y no excede el diámetro de una célula típica. Adaptado de una publicación de la Sociedad para la Promoción e Investigación en BNCT de Japón.

1.4. Dosimetría en BNCT

La radiación entregada en BNCT se compone de un campo mixto complejo que involucra radiación de alto y bajo LET, que depende de las características espectrales y espaciales de la fuente de neutrones utilizada, y de la composición del blanco que se irradia.

Si bien la componente de principal interés es la dosis boro que se genera por el depósito de energía que llevan los productos de la reacción $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, la interacción de los neutrones con los núcleos de otros elementos presentes en el volumen irradiado, inevitablemente también entregarán una dosis de fondo. En particular, más allá de la importancia de conocer las dosis asociadas a las reacciones nucleares con neutrones, también resulta de gran interés poder discriminar la inevitable componente de dosis gamma asociada a la fuente con que se irradia, objetivo que se aborda en este trabajo para el caso de la FCCT.

Actualmente la caracterización de tasa de dosis gamma en la FCCT se realiza mediante el uso de una cámara de ionización (CI) de grafito, de volumen sensible de aire de aproximadamente $0,1 \text{ cm}^3$, calibrada con fuente de ^{60}Co . La zona sensible de la cámara de ionización se cubre con un blindaje de ^6LiF (95% enriquecido en ^6Li), a fin de descontar la contribución producida por las reacciones con neutrones, en especial la reacción $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$. La tasa de dosis gamma en aire medida por este método actualmente es del orden de 6 Gy/h . Sin embargo, es interés contar con un

sistema alternativo e independiente de medición de la componente gamma de la fuente, que permita la corroboración y/o contrastación de los resultados obtenidos.

En los últimos años, a través de varias colaboraciones con diversos grupos de trabajo, se han comenzado a probar diferentes métodos para la estimación de dosis gamma: dosímetros termoluminiscentes (TLD) (par TLD 600 y TLD 700), dosimetría basada en transistores MOSFET, dosímetros de alanina, métodos físico-químicos de determinación mediante el empleo de sustancias químicas (dosímetros Fricke) y modelado computacional.

1.5. Dosímetro Fricke

El sistema dosimétrico Fricke está reconocido como patrón secundario de referencia para dosimetría de altas dosis en campos gamma puros de radiación (ASTM E1026-04, 2004), es poco costoso y de fácil preparación, no tiene necesidad de conexionado de cables y las técnicas de cuantificación son relativamente sencillas.

El dosímetro en su versión acuosa, consta de una solución levemente ácida (0,4 M de H₂SO₄) de Fe(NH₄)₂(SO₄)₂·6H₂O (sulfato ferroso de amonio o sal de Mohr), y es utilizado mayormente en la determinación de dosis absorbida en campos puros de radiación gamma. Está basado en la oxidación de la especie Fe⁺² a Fe⁺³ por los radicales libres que produce la radiólisis del agua, debida a la interacción con la radiación. La concentración de iones Fe⁺³ presentes en la muestra es directamente proporcional a la dosis absorbida. La cuantificación del cambio químico se realiza generalmente por determinación espectrofotométrica de la absorbancia de la solución en el rango ultravioleta del espectro electromagnético.

La ecuación básica (1) para el cálculo de la dosis absorbida en la solución dosimétrica, D_F, es la que sigue:

$$D_F = \frac{\Delta A}{\varepsilon \cdot G \cdot \rho \cdot d} \quad (1)$$

donde:

D_F = dosis absorbida por la solución Fricke (Gy),

ΔA = absorbancia neta a la longitud de onda óptima (302 a 305 nm),

ρ = densidad de la solución dosimétrica, igual a 1,024 x 10³ kg.m⁻³,

G = rendimiento químico de radiación para iones férricos (Fe⁺³), mol/J,

ε = coeficiente de absorción molar de iones férricos (Fe⁺³) m²/mol,

d = distancia del paso de luz por la solución dosimétrica en la cubeta, en este caso igual a 0,01 m.

Los valores recomendados de ϵ y G a 25°C son: $\epsilon_{25} = 219 \text{ m}^2 \times \text{mol}^{-1}$ y $G_{25} = 1,61 \times 10^{-6} \text{ mol} \times \text{J}^{-1}$.

Como la respuesta del dosímetro Fricke depende de la temperatura de irradiación (T_{irrad}) y de la temperatura de medición (T_{med}), se aplican correcciones al rendimiento químico de radiación (G) y al coeficiente de absorción molar (ϵ).

Por lo tanto, la ecuación (2) con correcciones de temperatura para el cálculo de la dosis absorbida es la siguiente:

$$D_F = \frac{\Delta A (1 + 0,0069 (25 - T_{\text{med}})) (1 + 0,0012 (25 - T_{\text{irrad}}))}{\epsilon_{25} \cdot G_{25} \cdot \rho \cdot d} \quad (2)$$

Para obtener la dosis absorbida en agua (D_W), la dosis obtenida del dosímetro Fricke debería ser corregida según la relación de los coeficientes de absorción másico de energía (μ_{en}/ρ) entre los diferentes medios, según la norma ASTM a 25°C es:

$$D_W = D_F \cdot 1,004 \quad (3)$$

1.6. Antecedentes

En experiencias previas se logró reemplazar el envase que conforma un dosímetro tradicional (ampolla de vidrio), por un envase de plástico (criotubo de polipropileno) cuyos componentes no se activan al ser expuestos a neutrones térmicos. Se comprobó que al menos por 70 días estos dosímetros son aptos para su uso y que no hay diferencias significativas en la oxidación en la solución contenida en los mismos respecto a las ampollas de vidrio. Además, se definió un método de mediciones de temperatura dentro de los tubos para considerar la corrección de la dosis, y se efectuaron las primeras mediciones con el sistema en la FCCT (Curotto 2011, 2012, 2013, 2014).

Las primeras irradiaciones de dosímetros en la FCCT (flujo neutrónico térmico $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, tasa de dosis gamma en aire aprox. 6 Gy/h), demostraron que la solución es sensible a la irradiación con neutrones térmicos. En la Tabla 1 se muestra la comparación de la dosis medida con el sistema Fricke, con la medición con la

cámara de ionización de grafito (Curotto 2012-2013), en configuración “Aire”, configuración en la que menos se perturba el campo mixto de la FCCT.

Tabla 1. Tabla de los resultados obtenidos en las experiencias previas realizadas en la FCCT en configuración Aire.

Configuración	Flujo neutrónico (n cm² s⁻¹)	Tasa CI (aire) (Gy/h)	Tasa Fricke (Aire) (Gy/h)	Tasa Fricke/ Tasa CI
Aire	(1,04 ± 0,08)E+10	6,8 ± 0,7	8,88 ± 0,13	+31 %

Los resultados de dichas experiencias demostraron que el dosímetro Fricke es sensible a la exposición con neutrones térmicos, quedando pendiente el desafío de tratar de definir un factor de sensibilidad que permita discriminar la contribución de la dosis debida a cada componente (dosis gamma y dosis debida a neutrones).

1.7. Objetivo

El objetivo de este trabajo fue estimar un factor de sensibilidad de los dosímetros Fricke a los neutrones térmicos, para evaluar si es factible usar esta técnica dosimétrica para la medición de dosis gamma en la FCCT.

2. Desarrollo

2.1. Preparación de solución Fricke

La preparación de la solución Fricke se realizó de acuerdo a la Norma ASTM E 1026-04 en los laboratorios del Departamento de Radiobiología del Centro Atómico Constituyentes.

Se preparó la solución de H_2SO_4 0,4 M utilizando agua Milli-Q mantenida en heladera (temperatura aprox. 4°C). Se pesaron las cantidades requeridas de NaCl (usado para reducir cualquier efecto adverso en la respuesta del dosímetro debido a trazas de impurezas orgánicas) y sal de Mohr en una balanza de precisión, para luego trasvasarse a un matraz aforado donde se disolvieron en el volumen correspondiente de solución de H_2SO_4 previamente preparada. Se cubrió el matraz con papel de aluminio para evitar su exposición a radiación lumínica y se dejó en agitación magnética aproximadamente 15 minutos. Después que la solución hubo alcanzado una temperatura comparable con el ambiente, se procedió al enrase.

Por último, para chequear que cumpliera con los límites impuestos por la norma ASTM ($\text{abs} < 0,1$), se tomó una muestra de la solución final para medir su absorbancia en un espectrofotómetro.

La solución dosimétrica se almacenó en envases de vidrio borosilicato limpio, en la oscuridad.

2.2. Preparación de los dosímetros

A partir de la solución dosimétrica se prepararon lotes de dosímetros utilizando los criotubos de polipropileno. Estos tubos tienen una capacidad de 2,4 ml y fueron cargados mediante micropipeta o directamente de un vaso de precipitados, tratando de minimizar la presencia de aire remanente dentro del tubo. Estos dosímetros se conservaron en heladera hasta su requerimiento en las experiencias.

2.3. Experiencias en la FCCT

Para cada experiencia de irradiación en la FCCT se utilizó un set de dosímetros que consistió en una cierta cantidad para ser irradiados y otra para la obtención de valores de blancos (tubos a los cuales se los sometió a la misma manipulación, pero no se irradiaron).

La determinación espectrofotométrica de la absorbancia de los dosímetros Fricke irradiados y de los blancos, se realizó utilizando un espectrofotómetro Perkin Elmer

UV VIS establecido en la longitud de onda de 303 nanómetros (según norma ASTM 1024-04, 2004).

Luego de obtener la absorbancia, mediante la ecuación (2) se calcula la dosis absorbida por la solución Fricke (D_F) y, dividiendo por el tiempo de irradiación, se obtuvo la tasa de dosis.

Asumiendo que la tasa de dosis absorbida en el dosímetro Fricke debida a cada componente (gamma o neutrones) son independientes entre sí, la tasa de dosis total obtenida con el dosímetro se considera igual a:

$$TD_T = TD_\gamma + TD_n \quad (4)$$

Donde:

TD_T = tasa de dosis absorbida total del dosímetro

TD_γ = tasa de dosis absorbida debida a la componente gamma

TD_n = tasa de dosis absorbida debida a la componente de neutrones térmicos.

A su vez, la componente neutrónica térmica se puede considerar determinada por:

$$TD_n = S_n \cdot \phi_{th} \quad (5)$$

Donde:

S_n = factor de sensibilidad a neutrones térmicos [$Gy\ cm^2\ s$]

ϕ_{th} = flujo neutrónico térmico.

Es decir, se considera que a partir de conocer TD_n y ϕ_{th} , se puede obtener un factor de sensibilidad que permita predecir la respuesta del dosímetro a esa componente.

De acuerdo con las ecuaciones (4) y (5), para evaluar la respuesta de los dosímetros a la irradiación con neutrones, se seleccionó una configuración que pudiera cumplir con los siguientes requisitos:

- Que permita variar el flujo neutrónico en el punto donde se irradian los dosímetros.
- Que la tasa de dosis gamma en ese mismo punto sea constante.

Se considera que, si se cumplen estas condiciones, se podría obtener el valor de sensibilidad de neutrones a partir de dos irradiaciones de dosímetros expuestos a diferentes flujos:

$$TD_{T1} = TD_\gamma + TD_{n1}$$

$$TD_{T2} = TD_{\gamma} + TD_{n2}$$

$$TD_{T1} - TD_{T2} = TD_{n1} - TD_{n2} \quad (6)$$

Considerando la ecuación (5)

$$TD_{n1} - TD_{n2} = S_n \cdot (\theta_{th1} - \theta_{th2}) \quad (7)$$

De esta forma, definiendo una configuración que cumpla con dichos requisitos, se puede estimar el valor de S_n a partir de valores de flujos conocidos.

2.4. Experiencia en configuración “Blindaje N° 1”

Para esta experiencia se utilizó una configuración que consiste en la adaptación de un blindaje de neutrones diseñado para otra aplicación, que a los fines de este trabajo se define como configuración “Blindaje N° 1”. Este blindaje consiste en una caja rectangular con tapa, con paredes dobles de acrílico conteniendo un relleno ininterrumpido de ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ de 6 mm de espesor (95% enriquecido en ${}^6\text{Li}$, absorbente de neutrones térmicos) de dimensiones acordes a las de la cavidad porta-muestra de la FCCT. La tapa tiene la misma composición y que presenta una abertura que permite la exposición de la muestra (Figura 6). (Pozzi, 2016).

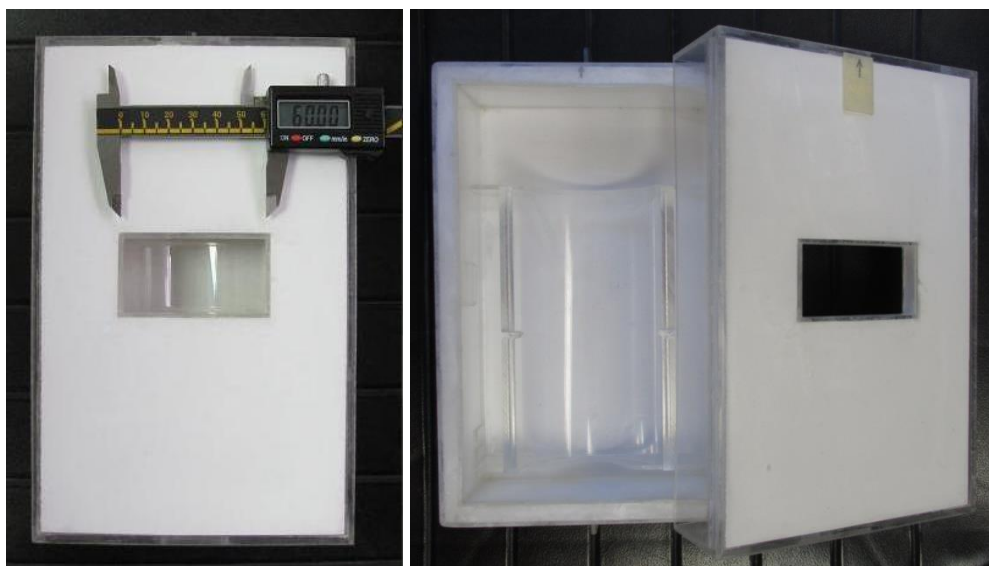


Figura 6. Imágenes del Blindaje N° 1. El blindaje de neutrones de ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ fue desarrollado para la irradiación de un modelo experimental de cáncer *in vivo* en la FCCT. La tapa superior presenta una abertura o ventana colimada (de 60 mm x 30 mm) que permite exponer un dosímetro.

La adaptación consistió en el diseño de una serie de paredes de diferentes espesores de blindaje para cubrir la abertura de la tapa, de forma de variar localmente el flujo neutrónico térmico a la que se expusieron los dosímetros (Figura 7).

Supuesto: el cambio de configuración con las diferentes paredes en la abertura no modifica la tasa de dosis gamma a la que se exponen los dosímetros (tasa de dosis gamma constante).

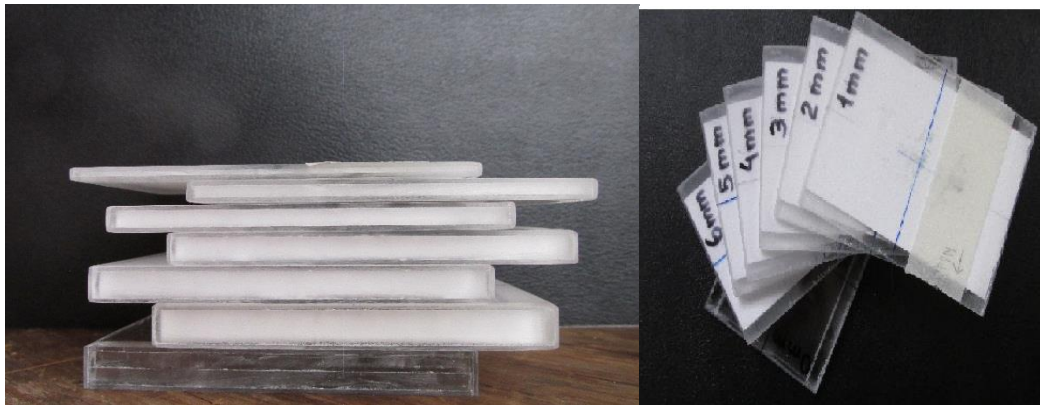


Figura 7. Paredes de diferentes espesores de blindaje de ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$.

El flujo neutrónico fue caracterizado previamente en el “Blindaje N° 1” a partir de la medición con alambres de Mn/Cu por la técnica de análisis por activación neutrónica (ANEXO I). En las Figuras 8 y 9 se muestran las ubicaciones de los alambres en el “Blindaje N° 1” con las paredes adicionales ubicadas por encima (configuración A) o por debajo (configuración B) de la abertura, respectivamente.

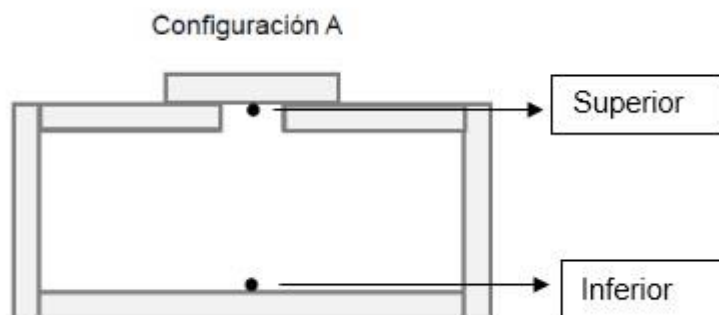


Figura 8. Configuración pared arriba con las posiciones respectivas de los alambres para medición de flujo neutrónico.

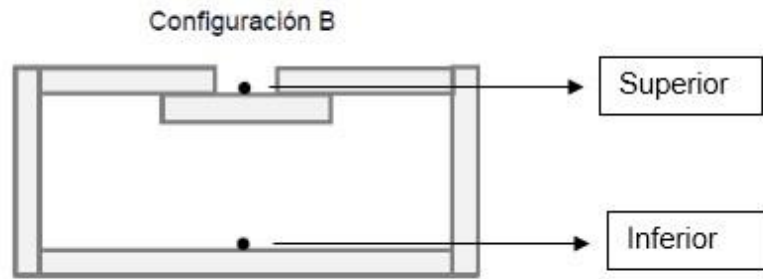


Figura 9. Configuración pared abajo con las posiciones respectivas de los alambres para medición de flujo neutrónico.

En la Tabla 2 se muestran los valores promedio de flujo neutrónico térmico (Φ_{th}) caracterizados para cada uno de los espesores de pared del “Blindaje N° 1” en la configuración B. Con respecto a la configuración A, se disponía solamente de dos mediciones (paredes de 5 y 6 mm), con valores similares en la posición inferior a los de la configuración B (los datos no se muestran).

Tabla 2. Flujo neutrónico (Φ_{th}) para las configuraciones B de acuerdo al espesor de pared para una potencia de reactor 8 MW.

Blindaje N° 1, Configuración B		
Espesor pared [mm]	Φ_{th} [$n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$]	
	Superior	Inferior
1	1,24E+08	5,90E+07
2	5,01E+07	2,56E+07
3	2,01E+07	1,31E+07
4	1,06E+07	8,48E+06
6	5,75E+06	6,13E+06

Debido a que en la configuración B no se tenían mediciones con las paredes de 0 y 5 mm de espesor, se realizó un ajuste “spline” con el programa Matlab para poder extrapolar los datos. En la Figura 10 se muestra el perfil de flujo en la posición inferior, es decir, sobre el piso del blindaje a la altura del centro de la abertura, en función del espesor de pared adicional.

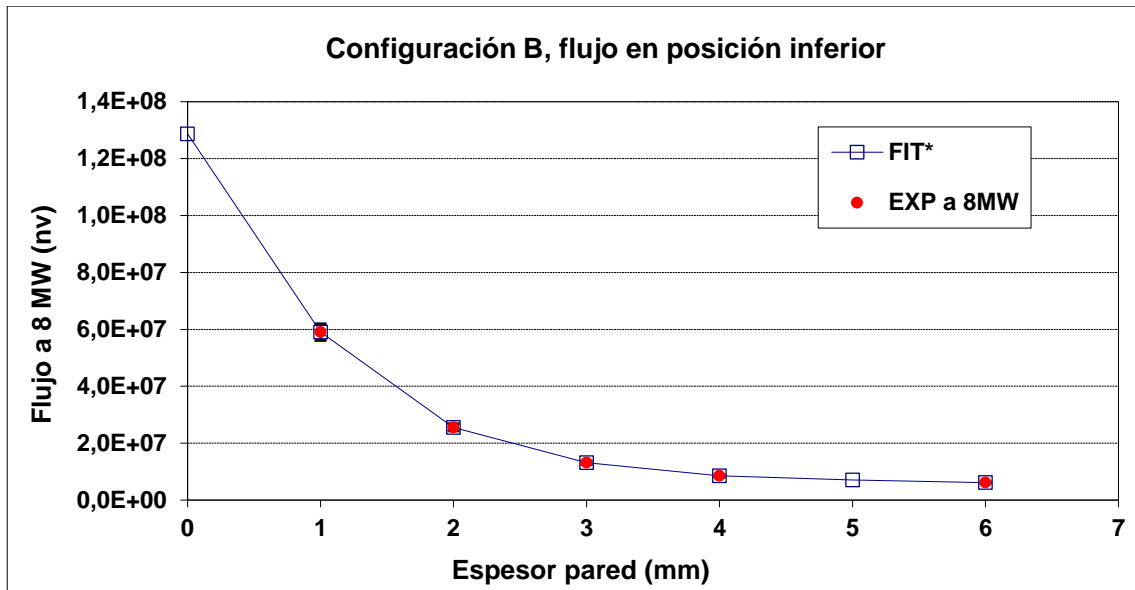


Figura 10. Variación de flujo neutrónico térmico dentro del Blindaje N°1 a la altura del centro de la abertura en función del espesor de pared ubicada según la configuración B. Se muestra el flujo extrapolado para los puntos que no fueron medidos (pared de 5 y 0 mm de ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$).

Esta caracterización previa se tomó como referencia para iniciar los ensayos en este trabajo, con la idea inicial de repetir y completar las mediciones de flujo neutrónico en ambas configuraciones. Lamentablemente, estas mediciones no se completaron debido a problemas técnicos que dejaron fuera de servicio la cadena de espectrometría disponible para tal fin. Más allá de este inconveniente, los resultados de las experiencias de irradiación de dosímetros demostraron la necesidad de un cambio a otro diseño experimental (Blindaje N° 2, descrito más adelante), con lo cual no fue necesario realizar nuevas mediciones de flujo.

En esta experiencia se emplearon cinco tubos (excepto en la primera irradiación que se emplearon cuatro), de los cuales dos fueron blancos y los otros tres dosímetros se irradiaron dentro del “Blindaje N° 1”. En cada experiencia se colocó de irradiación, dentro del blindaje, un tubo con agua para poder medir (con un termómetro digital) la temperatura a la que se encontraron expuestos los dosímetros durante el tiempo que duró la irradiación (Thorp, Curotto, Informe interno, 2015). También se realizó una prueba a fin de evaluar la influencia de la temperatura durante el manejo de los dosímetros Fricke, (Anexo II). Tanto el valor de temperatura de irradiación como el de la temperatura de medición de las absorbancias, son necesarios para efectuar las correcciones correspondientes según la ecuación (2).

Con la configuración A se realizaron 6 irradiaciones utilizando las paredes de 0, 1, 2, 3, 4 y 6 mm de espesor (Figura 11).

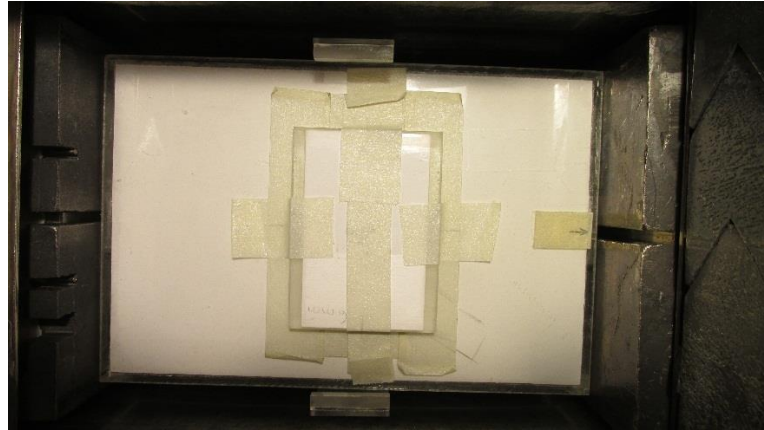


Figura 11. Vista superior del “Blindaje N° 1”, configuración A, con la pared sobre la tapa del blindaje cubriendo la abertura, inserto en la cavidad de portamuestras de la FCCT.

Se definió posicionar los tubos de la forma que se esquematiza en la Figura 12: un dosímetro pegado en la cara de la pared que quedó orientada hacia el interior del blindaje, posición que se denominó “Centrado arriba”, otro dosímetro pegado sobre el piso del blindaje centrado a la altura de la abertura, posición que se denominó “Centrado abajo” (posición equivalente a la inferior del alambre de la configuración A y B que se muestra en las Figuras 8 y 9) y un dosímetro sobre el piso, “Adelante abajo”, sobre el extremo del blindaje más cercano al núcleo del reactor.

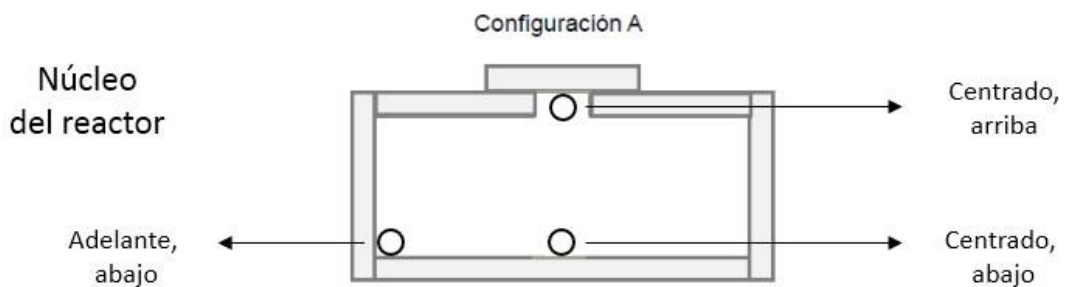


Figura 12. Esquema del posicionamiento de los dosímetros en el Blindaje N° 1 en la configuración A.

En las Figuras 13 y 14 se pueden apreciar imágenes que muestran a los dosímetros posicionados en el blindaje en la configuración A.

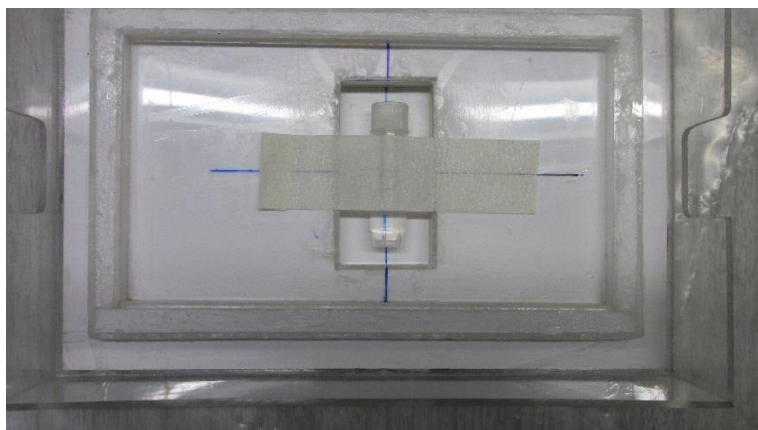


Figura 13. Dosímetro Fricke dispuesto en la cara de la pared que quedó orientada hacia el interior del blindaje. Se puede observar la abertura totalmente cubierta por la misma.

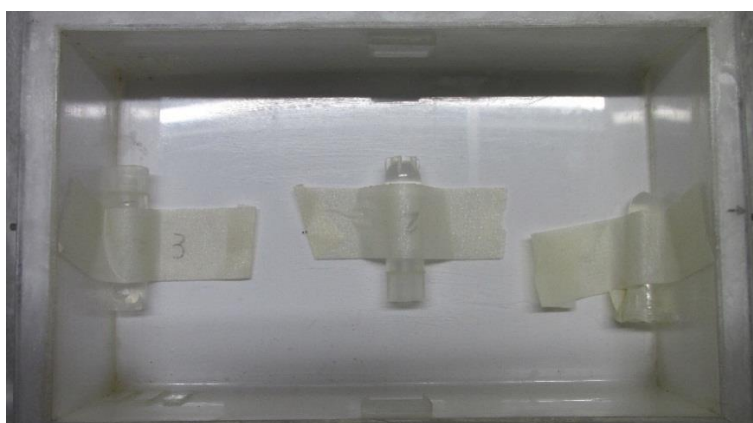


Figura 14. Disposición de los dosímetros “Adelante abajo” (izquierda) y “Centrado abajo” (centro), y el tubo con agua (derecha), dentro del Blindaje N° 1.

Dada su posición, el dosímetro “Adelante abajo” siempre quedaría blindado, es decir, no se vería afectado por los cambios de pared sobre la abertura y se consideró como un control interno para ser comparado entre las diferentes irradiaciones.

Con posterioridad a la realización de la experiencia, el dosímetro en la posición inferior se consideró como el más representativo para evaluar la respuesta a los neutrones, ya que se evitan posibles in-homogeneidades de flujo debido a interrupciones en la unión de las paredes con la abertura (por ejemplo, en la posición superior de la configuración A, ver Figura 8).

Se definió un tiempo de irradiación de 300 minutos, para alcanzar una dosis absorbida superior a 20 Gy, mínimo en el rango de dosis absorbida recomendado según la norma ASTM E1026-04. Considerando un valor de referencia de tasa de dosis gamma de 6 Gy/h (0,1 Gy/min), en 300 minutos se alcanzarían unos 30 Gy.

Como era de interés poder realizar experiencias con tiempos de irradiación más cortos, se realizó una prueba con la pared de 6 mm de espesor irradiando a los tiempos de: 62 y 180 minutos. Se compararon los resultados para verificar si existían diferencias significativas.

En la configuración B, en donde la pared se encontraba debajo de la tapa del blindaje, se realizaron en total 4 irradiaciones. En la Figura 15 se observa un esquema de las posiciones de los dosímetros en este caso.

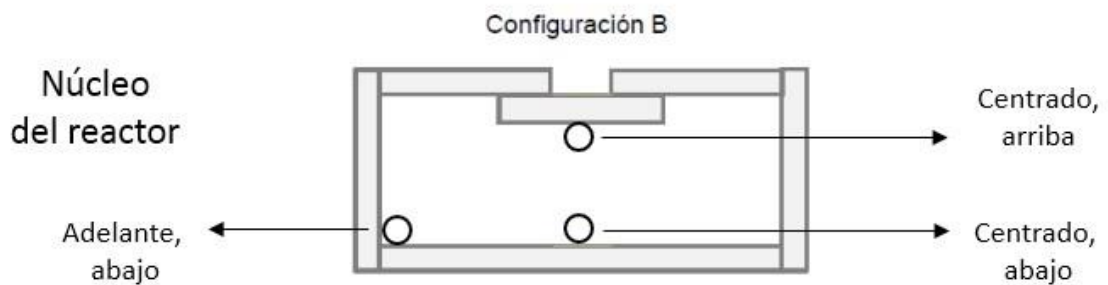


Figura 15. Esquema del posicionamiento de los dosímetros en el Blindaje N° 1 en la configuración B.

En la Figura 16 se muestra el posicionamiento del Blindaje N° 1 con la configuración B, posicionado dentro de la cavidad portamuestras de la FCCT, se puede apreciar en este caso la pared posicionada debajo de la tapa del blindaje, quedando introducida dentro del mismo. En la Figura 17 se observa el lado interno de la tapa con esta configuración.

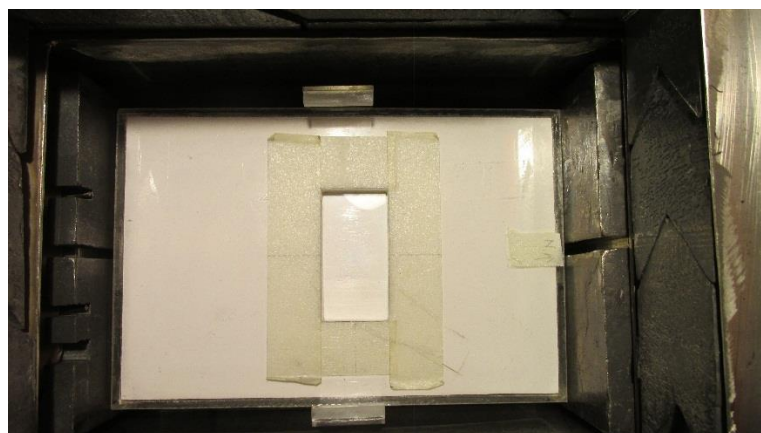


Figura 16. Vista superior del "Blindaje N°1" con pared debajo de la abertura, inserto en la cavidad de portamuestras de la FCCT.

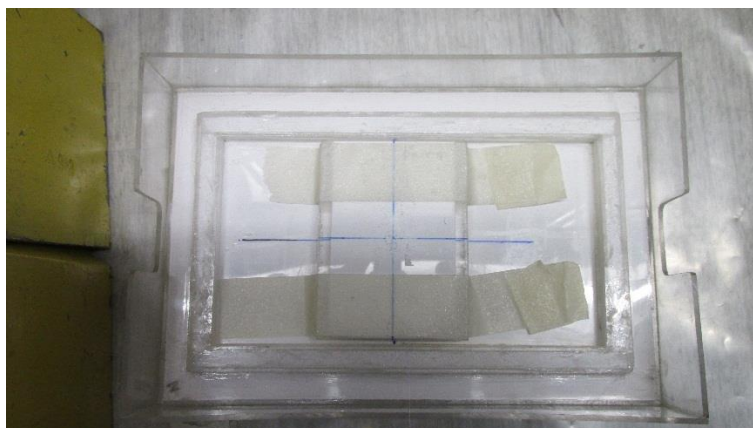


Figura 17. Vista superior de la parte interior de la tapa del "Blindaje N°1" con pared debajo de la abertura.

En la Tabla 3 se resumen las irradiaciones realizadas con el Blindaje N° 1.

Tabla 3. Experiencias de irradiación con los dosímetros Fricke en el "Blindaje N° 1".

Configuración	Espesor de pared (mm)	Tiempo de irradiación (min)
A, pared arriba	6	300
	4	300
	3	300
	2	300
	1	300
	0	300
A, pared arriba	6	180
	6	62
B, pared abajo	6	155
	2	256
	1	270
	0	271

Debido a que en diferentes días de irradiación la potencia del reactor no es siempre la misma, todas las mediciones de los dosímetros se normalizan a una potencia del reactor de 8MW para que las mediciones de diferentes días sean comparables entre sí. Esto se realizó ajustando cada medición con el valor promedio de potencia durante la irradiación del dosímetro, obtenido a partir de los datos del sistema de adquisición del reactor. Se considera una relación directa entre la potencia del reactor y las condiciones de irradiación en la FCCT.

2.4.1. Resultados

En la Tabla 4 se presentan los resultados de las mediciones de la absorbancia en los dosímetros expuestos en las diferentes configuraciones, de acuerdo con el espesor de pared agregada y el tiempo de irradiación utilizado.

Tabla 4. Valores de absorbancias netas para los distintos espesores de la configuración A “Centrado, arriba”, “Centrado abajo” y “Adelante, abajo”, posiciones de los dosímetros dentro del blindaje.

Configuración	Tiempo de irradiación (min)	Espesor de pared (mm)	Absorbancia neta (ΔA)		
			Centrado, arriba	Centrado, abajo	Adelante, abajo
A, pared arriba	300	6	0,093 ± 0,001	0,0846 ± 0,0007	0,095 ± 0,002
	300	4	0,095 ± 0,001	0,0823 ± 0,0007	0,092 ± 0,001
	300	3	0,0940 ± 0,0007	0,082 ± 0,002	0,091 ± 0,000
	300	2	0,0978 ± 0,0007	0,0818 ± 0,0007	0,091 ± 0,000
	300	1	0,098 ± 0,002	0,084 ± 0,002	0,090 ± 0,002
	300	0	0,119 ± 0,001	0,0908 ± 0,0007	0,0958 ± 0,0007
	180	6	0,056 ± 0,000	0,049 ± 0,000	0,0555 ± 0,0007
	62	6	0,022 ± 0,001	0,0198 ± 0,0007	-
B, pared abajo	155	6	-	0,0455 ± 0,0007	0,050 ± 0,000
	256	2	-	0,0783 ± 0,0007	0,085 ± 0,001
	270	1	-	0,0783 ± 0,0007	0,085 ± 0,001
	271	0	-	0,081 ± 0,000	0,0815 ± 0,0007

Luego de obtener la absorbancia, mediante la ecuación (2) se calculó la dosis absorbida (D_F). Para que sean comparables, estos valores fueron normalizados para una potencia del reactor de 8 MW.

Considerando el tiempo de irradiación, se obtuvo la tasa de dosis absorbida total. En la Tabla 5 se muestran los valores de dosis absorbida obtenidas en las experiencias con configuración A, utilizando diferentes espesores de blindaje sobre la abertura del Blindaje N° 1. La incerteza del método se definió del 10%, (ver ANEXO IV).

Con posterioridad a la realización de la experiencia, se decidió no considerar los tubos Centrados arriba para estimar valores de S_n , por las posibles inhomogeneidades de flujo mencionadas anteriormente (por este motivo no se colocaron dosímetros en la posición en la configuración B).

Tabla 5. Dosis Fricke medida normalizada a la potencia de 8 MW, para la configuración A con el Blindaje N°1. “Adelante, abajo”, “Centrado, arriba” y “Centrado abajo”, definen la posición de los dosímetros dentro del blindaje. La incerteza para las dosis medidas se considera 10%. La incerteza del valor de fluencia es del 9%.

Configuración	Tiempo de irradiación (min)	Espesor pared (mm)	Dosis normalizada (Gy)			Fluencia aprox. ¹ [n cm ⁻²]
			Adelante, abajo	Centrado, arriba	Centrado, abajo	
A, pared arriba	300	6	24,2	24,2	22,0	1,1 E+11
	300	4	23,6	24,3	21,1	1,5 E+11
	300	3	23,1	24,0	21,0	2,4 E+11
	300	2	23,4	25,0	20,9	4,6 E+11
	300	1	23,1	25,2	21,6	1,1 E+12
	300	0	24,4	30,4	23,1	2,4 E+12

Considerando la incerteza del método, no se observaron diferencias entre las mediciones de las posiciones Adelante abajo y Centrado abajo. Se aplicó un test de Grubbs, que sirve para comparar el valor más extremo de una serie de datos con respecto al resto. El resultado fue no significativo para todos los espesores de pared en esas dos posiciones evaluadas dentro del Blindaje N° 1 ($p > 0,05$).

En particular, este resultado era esperable para el dosímetro ubicado adelante dentro del blindaje (control entre irradiaciones), dado que se considera que esta posición no se ve afectada por los cambios en el espesor de pared de ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ sobre la abertura. Por el contrario, se esperaba una diferencia en la dosis absorbida en los dosímetros expuestos a la variación de flujo de la abertura en la tapa. En particular, los dosímetros irradiados en la posición centrado abajo, recibieron fluencias de neutrones térmicos en un rango de aproximadamente (1×10^{11} a 2×10^{12}) n cm⁻² (Tabla 5). Sin embargo, no se observa una diferencia en la dosis total absorbida asociada con este rango de variación fluencia (Figura 18).

¹ Se tabula la fluencia estimada en forma aproximada a partir de los valores de flujo obtenidos medidos para la configuración B (ver apartado 2.3.1) ajustados por un factor obtenido de la medición en la misma posición (centrado, abajo) utilizando la pared de 6 mm en ambas configuraciones. Si bien las configuraciones no son exactamente las mismas, el flujo asociado a la posición centrada sobre el piso del blindaje es similar (para esa posición se hizo una corrección de un 5% entre configuraciones, siendo del mismo orden que la incerteza del método de medición de flujo utilizado). De esta forma, se considera que la aproximación es válida y sirve para una primera evaluación considerando la imposibilidad técnica de realizar nuevas mediciones de flujo en la configuración A (ver apartado 2.3.1).

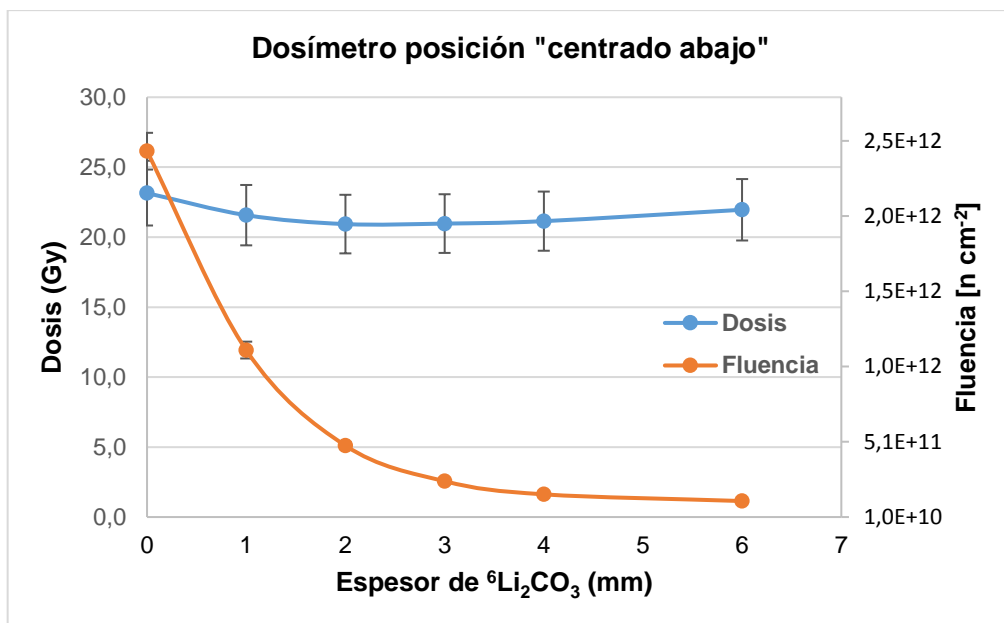


Figura 18. Valores de dosis Fricke del dosímetro pegado sobre el piso del blindaje N°1 centrado a la altura de la abertura “centrado abajo” en función del espesor de pared de ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ (configuración A). Las dosis se expresan con una incertidumbre del 10%. En el eje secundario de la derecha se muestra la fluencia (incerteza 9%), correspondiente a la misma posición para cada espesor de blindaje cubriendo la abertura de la tapa del blindaje.

Con la finalidad de evaluar la posibilidad de acortar los tiempos de irradiación de las experiencias (lo que implica una menor dosis integrada que la recomendada por la norma), se realizó una prueba piloto con la configuración A realizando dos de las irradiaciones a dos tiempos de menores. Considerando el tiempo de irradiación, se obtuvo la tasa de dosis absorbida total. En la Tabla 6 se muestran los resultados de mediciones en la configuración A, a tres tiempos de irradiación diferentes.

El dosímetro irradiado a menor tiempo (62 min), mostró un valor casi un 25% más alto que el valor promedio de los otros dosímetros en esa posición (Centrado abajo). A su vez, el valor de absorbancia medido fue muy cercano a los valores de medición de absorbancia de un blanco (Tabla 4), con una dosis asociada de menos de la mitad de la dosis límite recomendada por la norma, encontrándose en las cercanías del límite de detección del método (>20 Gy). En el caso del dosímetro irradiado durante 180 minutos, no se observaron diferencias apreciables y se alcanzaron dosis totales de más de 15 Gy. Debido a estas consideraciones, se definió como mínimo tiempo de irradiación entre 2 y 3 horas.

Tabla 6. Tasas de dosis Fricke normalizada a la potencia de 8 MW, medida en la posición del centro de la abertura de la tapa, sobre el piso del Blindaje N° 1 (Centrado abajo). La incerteza para las dosis medidas se considera 10%.

Configuración	Tiempo irradiación (min)	Espesor pared (mm)	Tasa de dosis normalizada (Gy/h)
A	300	6	4,4
	180	6	4,1
	62	6	5,3

Los resultados de las mediciones de tasa de dosis en la configuración B (pared de ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ cubriendo la abertura de la tapa del blindaje por debajo) (Tabla 7), tampoco mostraron una diferencia significativa, confirmando la tendencia observada con la Configuración A.

Tabla 7. Tasas de dosis Fricke normalizada a la potencia de 8 MW, medida en la posición del Centrado abajo y Adelante abajo del Blindaje N° 1. La incerteza para las dosis medidas se considera 10%.

Configuración	Tiempo de irradiación (min)	Espesor de pared (mm)	Tasa de dosis normalizada (Gy/h)	
			Centrado, abajo	Adelante, abajo
B	155	6	4,52	4,97
	256	2	4,59	4,97
	270	1	4,39	4,76
	271	0	4,52	4,54

En la Figura 19 se muestran los resultados de tasa de dosis medida para la ubicación del dosímetro “Centrado abajo” en la configuración B. En este caso los resultados (tasa de dosis en vez de la dosis) se comparan con el valor de flujo (en vez de fluencia) medido en la misma posición en función del espesor de pared de ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ utilizada para blindar la abertura.

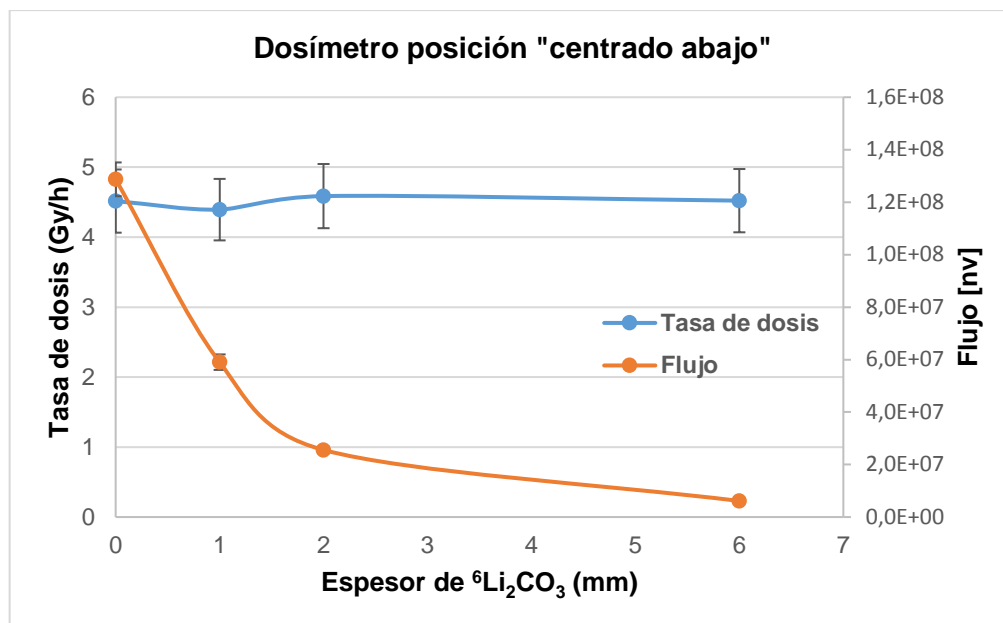


Figura 19. Tasa de dosis Fricke medida en la posición del dosímetro “centrado abajo” para la configuración B. La incerteza de la medición corresponde al 10%. En el eje secundario de la derecha se muestra el flujo (incerteza 5%), correspondiente a la misma posición para cada espesor de blindaje cubriendo la abertura de la tapa del blindaje.

2.4.2. Discusión

Se irradió una serie de dosímetros Fricke utilizando un blindaje de neutrones que permite asumir una dosis gamma constante, a la vez que se expuso a los dosímetros en un rango de fluencias de neutrones térmicos de aproximadamente $(1,1 \pm 0,1) \times 10^{11} \text{ n cm}^{-2}$ a $(2,3 \pm 0,2) \times 10^{12} \text{ n cm}^{-2}$ (Tabla 5). Se esperaba poder discriminar la dosis debida a neutrones para cada punto de fluencia evaluado. En base los resultados, no se pudieron establecer diferencias significativas entre las dosis absorbidas totales integradas por los dosímetros para las configuraciones estudiadas (Tablas 5 y 7, y Figuras 18 y 19). Por lo tanto, no se pudo discriminar la tasa de dosis debida a neutrones para flujos neutrónicos menores a $1,4 \cdot 10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ (máximo flujo al que se expusieron los dosímetros). Esto se debería a que la sensibilidad del dosímetro a neutrones (S_n) sería de un orden que hace despreciable la dosis integrada debida a neutrones frente a la dosis gamma de la fuente ($D_n \ll D_\gamma$), es decir, la dosis absorbida total que se está integrando en el dosímetro Fricke es casi toda debida a la componente gamma.

Si bien los resultados no fueron los esperados en cuanto a la respuesta del dosímetro a la variación de la fluencia en el rango estudiado, en la configuración A la mayor dosis Fricke medida coincidió con los dosímetros expuestos a mayor fluencia en la abertura sin blindaje (Tabla 5). Como una aproximación, se realizó una

estimación de la sensibilidad evaluando la diferencia de tasa de dosis promedio medida con todos los dosímetros blindados en la posición “Centrado abajo” (espesores de 1 a 6 mm de ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$) vs la tasa de dosis medida sin blindaje en la abertura (0 mm espesor de ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$) (Tabla 6). Adoptando el supuesto que el cambio de configuración con las diferentes paredes en la abertura no modifica la tasa de dosis gamma a la que se exponen los dosímetros (TD_γ constante), se estimó un valor de sensibilidad a partir de la ecuación (8):

$$S_n = \frac{TD_{T(0\text{mm})} - TD_{T\text{promedio}(6,4,3,2,1\text{ mm})}}{\theta_{\text{th}(0\text{mm})}} \quad (8)$$

Donde, $TD_{T(0\text{mm})}$ es la tasa de dosis del punto a mayor flujo (espesor de pared de 0 mm de ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$, componente gamma y componente neutrones), $TD_{T\text{promedio}(6,4,3,2,1\text{ mm})}$ es el valor promedio de la tasa de dosis del resto de los puntos (componente gamma, “componente neutrones despreciable frente al resultado con espesor 0 mm”) y $\theta_{\text{th}(0\text{mm})}$ es el flujo neutrónico a 0 mm de espesor.

El valor de sensibilidad obtenido según la ecuación (8) se muestra en la Tabla 8.

Tabla 8. Valores de tasa de dosis Fricke y flujo en la posición “Centrado abajo” de la configuración A, considerados para realizar una estimación de la sensibilidad.

Configuración	Espesor pared	Tasa de dosis (Gy)	Φ_{th} [$\text{n cm}^{-2} \text{s}^{-1}$]	S_n ($\text{n}^{-1} \text{Gy cm}^2$)
A, pared cubriendo por debajo de la abertura	1 a 6 mm	$4,3 \pm 0,5^a$	(según Tabla 2)	$7,5 \text{ E}-13$
	0 mm	$4,6 \pm 0,5$	$(1,4 \pm 0,1) \text{ E}+08$	

^aTasa de dosis promedio medida con todos los dosímetros blindados (espesores de 1 a 6 mm de ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$).

La incerteza asociada con la sensibilidad estimada con esta experiencia fue muy alta. Esto es esperable dado que se calcula a partir de una diferencia de dosis del mismo orden de la incerteza con que se mide.

La sensibilidad estimada, permite predecir que la tasa de dosis debida a neutrones sería significativa para flujos neutrónicos del orden de $10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Sin embargo, la tasa de dosis esperable para flujos del orden de $10^{10} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ sería tan alta, que no tendría sentido físico de acuerdo a las mediciones previas (Tabla 1). En la siguiente parte del trabajo se parte de estas consideraciones para lograr una mejor aproximación en el cálculo de la sensibilidad deseado.

2.4.3. Conclusiones

La tasa de dosis absorbida Fricke debida a neutrones sería despreciable frente a una componente gamma de aproximadamente 5 Gy/h (FCCT), cuando el dosímetro se expone a flujos neutrónicos menores a $10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. El valor de sensibilidad a neutrones aproximado en la experiencia con Blindaje N° 1, predice que la dosis por neutrones sería significativa a flujos mayores a $10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, aunque se espera un valor mucho menor al estimado para que tenga sentido físico y se pueda predecir la dosis medida a partir de flujos neutrónicos más altos ($10^{10} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$).

2.5. Experiencia en configuración “Blindaje N°2”

A partir de los resultados obtenidos con la experiencia “Blindaje N° 1” se decidió realizar una segunda experiencia con la configuración “Blindaje N° 2” (Figura 20) que permite exponer los dosímetros a un flujo mayor.



Figura 20. Imagen del Blindaje N° 2.

La configuración “Blindaje N° 2”, blindaje de neutrones diseñado para otra aplicación, tiene características constructivas similares al del Blindaje N° 1, varía sólo en la forma: la tapa no posee abertura y en uno de los extremos de la caja presenta dos aberturas que interrumpen el blindaje. También varía la disposición de bloques de grafitos y bismutos que se ordena sobre la bandeja porta-muestras de la FCCT, para realizar irradiaciones con este blindaje, (Figura 21).

Esta experiencia consistió en realizar irradiaciones en el blindaje con tapa y sin tapa, de manera de poder discriminar la contribución de la dosis de neutrones sobre la de la dosis gamma.

La configuración con el Blindaje N° 2 permitiría comparar los resultados obtenidos con otros métodos de estimación de dosis gamma (Tabla 9): cámara de ionización² (CI), dosímetros termoluminiscentes (TLD) (par TLD 600 y TLD 700), dosímetros de alanina, y modelado computacional por código de cálculo MCNP, estudiados en esa misma configuración. La configuración con el Blindaje N° 2, se encontraba previamente caracterizada en cuanto al flujo neutrónico en tres condiciones: blindaje con tapa, blindaje sin tapa y sin la presencia del blindaje (se establece un rango más grande de variación de flujo: 10^7 , 10^9 y 10^{10} n cm⁻² s⁻¹, respectivamente), (Farías, 2015).

² Para mayor detalle sobre este detector ver la Introducción.

Tabla 9. Valores de dosis gamma en la FCCT utilizando la configuración Blindaje N° 2, medidos por diferentes métodos dosimétricos (Cámara de Ionización, TLD, dosímetros de alanina) y estimado por modelado por código MCNP. Datos extraídos de Farías, 2015.

Config. Blindaje N°2	Flujo neutrónico (n cm ² s ⁻¹)	Tasa gamma normalizada a 8 MW (Gy/h)			
		CI	TLD	Alanina	MCNP
Blin. Con tapa	(2,2 ± 0,2)E+07	4,6	3,4	4,5	3,2
Blin. Sin tapa	(1,9 ± 0,2)E+09	4,8	3,4	4,5	3,3
AIRE	(1,04 ± 0,08)E+10	6,4	5,3	5,7	5,4

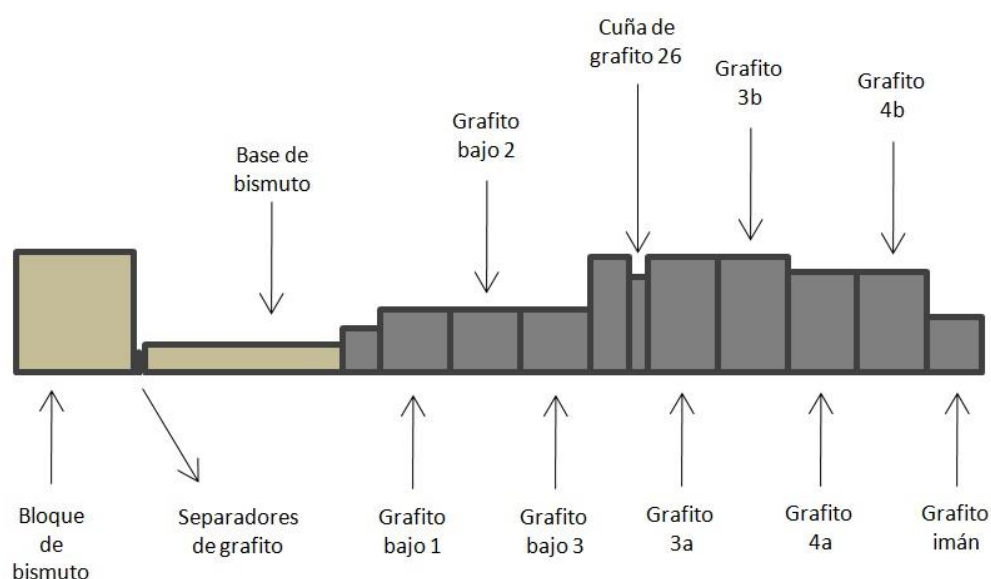


Figura 21. Estructura de bloques de grafito y bismuto sobre la bandeja porta-muestras de la FCCT para la configuración "Blindaje N° 2".

Supuesto: la dosis gamma en la configuración "Blindaje N° 2", con tapa y sin tapa se puede considerar constante dados los resultados de las mediciones con diferentes métodos.

Si se cumple el supuesto y considerando los resultados obtenidos con utilizando el Blindaje N° 1, la configuración con el Blindaje N° 2 serviría para evaluar el sistema dosímetro Fricke y tratar de discriminar la contribución de la dosis por neutrones a mayores flujos ((10⁹ – 10¹⁰) n cm⁻² s⁻¹).

En cada experiencia de blindaje con y sin tapa se emplearon cinco dosímetros Fricke de los cuales dos fueron blancos y los otros tres fueron ubicados dentro del blindaje.

Las temperaturas de irradiación (T_{irrad}) y de medición (T_{med}) de las experiencias se midieron como en la experiencia “Blindaje N° 1”.

Se definió posicionar los tubos de la siguiente forma (Figura 22): un dosímetro pegado sobre el piso del blindaje, posición que se denominó “Centrado abajo” (del extremo del blindaje más lejano al núcleo del reactor), otro dosímetro pegado sobre la pared del extremo izquierdo del blindaje más cercano al núcleo del reactor, posición “Adelante izquierda” y un dosímetro sobre la pared del extremo derecho del blindaje más cercano al núcleo del reactor posición “Adelante derecha”. Se ubicó un cuarto tubo con agua dentro del blindaje para la medición de temperatura de irradiación (mediante el mismo método descrito anteriormente).

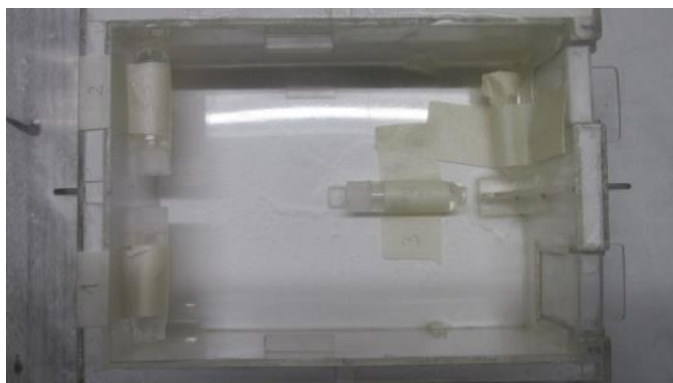


Figura 22. Vista superior de Blindaje N° 2 sin tapa. Disposición de los dosímetros “Adelante izquierda” (izquierda), “Adelante derecha” (izquierda) y “Centrado abajo” (centro), y el tubo con agua (derecha), dentro del Blindaje N° 2.

De los tubos más cercanos al núcleo se obtienen dos mediciones equivalentes, que pueden ser comparadas con los diferentes métodos de medición utilizados en la misma posición (Tabla 9). Sin embargo, la ubicación de los dosímetros en la altura de la pared del blindaje puede introducir una incerteza extra en el flujo que reciben los dosímetros en la condición “sin tapa” (el flujo se ve afectado localmente por la cercanía de la pared). Por este motivo el tercer dosímetro se ubicó en el centro del blindaje en una ubicación reproducible que sirva para evaluar la sensibilidad a neutrones.

En las configuraciones sin tapa y con tapa (Figuras 22 y 23), se irradiaron dosímetros a diferentes tiempos (diferentes dosis), de forma de evaluar el rango de linealidad que presenta el método y estimar la tasa de dosis a partir de un ajuste lineal.



Figura 23. Vista superior de Blindaje N° 2 con tapa, inserto en la cavidad portamuestras de la FCCT.

También se realizó una irradiación de dosímetros en la configuración sin blindaje (Aire), ubicando tres dosímetros en una caja de acrílico, sobre la cara que queda más cerca del núcleo dentro de la FCCT (Figura 24). Como se puede observar en la Tabla 9, en esta configuración la dosis gamma en la posición aumenta, y el flujo neutrónico al que se exponen los dosímetros es mayor ($10^{10} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$). Es decir, si bien se mantiene la disposición de bloques de grafito y bismuto (Figura 21), cambia la componente gamma y neutrónica al no tener blindaje neutrónico. Dado que esta posición se encontraba caracterizada para diferentes métodos, esta experiencia se realizó para comparar el valor de dosis medida con el sistema dosimétrico Fricke, descontando el valor de dosis debida a neutrones a partir de la sensibilidad obtenida.

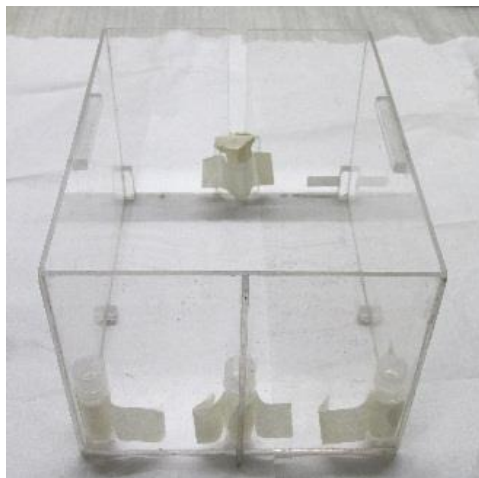


Figura 24. Dosímetros introducidos en configuración sin blindaje.

La Tabla 10 resume las experiencias que se llevaron a cabo en esta configuración “Blindaje N° 2”.

Tabla 10. Experiencias realizadas en configuración Blindaje N° 2 y Sin Blindaje.

Experiencias	Tiempo de irradiación (min)
Blindaje N° 2 con tapa	120
	180
	222
	258
	305,5
	385
	1143
Blindaje N° 2 sin tapa	126
	303
	180
	480
	1122
	240
Sin Blindaje (Aire)	214

Luego de las irradiaciones, se realizó la determinación espectrofotométrica de la absorbancia de la solución de los dosímetros Fricke irradiados (como se mencionó anteriormente para las experiencias en el Blindaje N° 1).

Todas las mediciones de los dosímetros se normalizaron a una potencia del reactor de 8MW para que las mediciones de diferentes días sean comparables entre sí (se calcularon de la misma manera que para el “Blindaje N° 1”).

2.5.1 Caracterización del flujo neutrónico mediante SPND dispuestos en criotubos

A fin de poder estimar un valor de sensibilidad en la configuración Blindaje N° 2 sin tapa, se planteó una experiencia que permitió obtener datos de flujo neutrónico en las posiciones de los dosímetros Fricke, utilizando un par de detectores un par de detectores neutrónicos autoenergizados (SPND (Self Powered Neutron Detector) de rodio (Rh) de 10 mm de longitud sensible, modelo CNEA SPND Rh-10 (Miller et al.

2004) (ver Anexo III), asociado con un electrómetro Keithley Modelo 6514. La configuración con tapa no fue evaluada debido a que el valor de flujo neutrónico se encuentra por debajo del límite de detección de los SPND. Sin embargo, se contaba con mediciones de flujo obtenidas previamente por otro método (activación neutrónica, Anexo I) (Tabla 9). En base a los resultados obtenidos en la experiencia previa con la configuración del Blindaje N° 1 y considerando el bajo valor de flujo conocido ($\Phi \ll 10^8 \text{ n cm}^{-2}\text{s}^{-1}$), resulta válido despreciar la contribución de dosis debida a neutrones frente a la componente gamma, supuesto adoptado para la evaluación de esta configuración.

Dado que el SPND no se puede sumergir en agua, se modificaron criotubos de polipropileno perforando la tapa de los mismos de manera de insertar una tapa de jeringa que permitiera ubicar un detector SPND dentro de los criotubos rellenos con agua, de forma segura. En la Figura 25 se observan el criotubo adaptado y el detector SPND posicionado dentro del mismo, en la configuración Blindaje N° 2.



Figura 25. Se observa a la izquierda criotubo modificado y en la parte derecha el SPND inserto dentro del mismo en la configuración Blindaje N° 2.

También se caracterizó el flujo en la posición de los dosímetros para la configuración sin blindaje (Aire) (Figura 24).

Se efectuaron tres irradiaciones de 25 minutos a fin de caracterizar el flujo neutrónico en cada una de las posiciones de los dosímetros. En cada irradiación se colocó un SPND dentro de un tubo y otro SPND en la posición de referencia³.

³ De este modo, se puede obtener un factor a partir de la relación de corrientes medidas con los SPND en ambas posiciones en forma simultánea. A partir de este factor y del valor obtenido para cualquier experiencia donde se mide en la posición de referencia, se puede estimar retrospectivamente el valor de flujo al que se expuso cualquier dosímetro ubicado en una misma posición.

Los valores de flujo en las distintas posiciones de las Configuraciones Blindaje N° 2 y Sin Blindaje se presentan en la Tabla 11.

Tabla 11. Valores de flujo térmico en las distintas posiciones (Adelante izquierda, Adelante derecha, Centro, Vertical izquierda, Vertical centro, Vertical derecho) del dosímetro en las configuraciones para Blindaje N° 2.

Configuración	Ubicación dosímetro	Flujo ($n \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)
Blindaje N°2 sin tapa	Adel. Izq.	$(2,2 \pm 0,2) 10^9$
	Adel. Der.	$(2,1 \pm 0,2) 10^9$
	Centro	$(2,3 \pm 0,2) 10^9$
Sin Blindaje	Vert. Izq.	$(1,04 \pm 0,08) 10^{10}$
	Vert. Centr.	$(1,02 \pm 0,08) 10^{10}$
	Vert. Der.	$(1,03 \pm 0,08) 10^{10}$
	Promedio	$(1,03 \pm 0,09) 10^{10}$

2.5.2 Resultados

En la Tabla 12 se presentan los resultados de las mediciones de la absorbancia de los dosímetros expuestos en las configuraciones Blindaje N° 2.

Tabla 12. Valores de absorbancia neta para la configuración Blindaje N° 2 con tapa y sin tapa.

Blindaje N° 2	Tiempo de irradiación (min)	Absorbancia neta(ΔA)		
		Adelante, izquierda	Adelante, derecha	Centro, abajo
Con tapa	120	0,041 \pm 0,000	0,032 \pm 0,002	0,046 \pm 0,001
	180	0,052 \pm 0,001	0,066 \pm 0,001	0,048 \pm 0,001
	222	0,064 \pm 0,001	0,065 \pm 0,002	0,061 \pm 0,000
	258	0,082 \pm 0,004	0,066 \pm 0,002	0,062 \pm 0,001
	306	0,094 \pm 0,001	0,101 \pm 0,001	0,089 \pm 0,001
	385	0,111 \pm 0,000	0,113 \pm 0,001	0,107 \pm 0,001
	1143	0,348 \pm 0,002	0,328 \pm 0,000	0,311 \pm 0,001
Sin tapa	126	0,042 \pm 0,000	0,042 \pm 0,000	0,045 \pm 0,001
	180	0,054 \pm 0,001	0,061 \pm 0,001	0,064 \pm 0,002
	240	0,097 \pm 0,014	0,073 \pm 0,000	0,078 \pm 0,002
	303	0,098 \pm 0,001	0,101 \pm 0,001	0,100 \pm 0,001
	480	0,151 \pm 0,002	0,157 \pm 0,000	0,166 \pm 0,001
	1122	0,349 \pm 0,002	0,355 \pm 0,001	0,368 \pm 0,000

Luego de obtener la absorbancia, mediante la ecuación (2) se calcularon las dosis absorbidas (D_F) como se describió para el Blindaje N° 1. Los resultados se muestran en la Tabla 13.

Tabla 13. Valores de la dosis Fricke absorbida (D_F) de los dosímetros en la posición de adelante y del centro (incerteza = 10%). Las dosis se encuentran normalizadas a una potencia de 8 MW.

Blindaje N°2	Tiempo de irradiación (min)	Dosis Total promedio adelante (Gy)	Dosis Total centro abajo (Gy)
Con tapa	120	9,26	11,62
	180	14,87	12,10
	222	16,31	15,49
	258	18,60	15,52
	306	24,74	22,48
	385	27,97	26,72
	1143	85,17	78,42
Sin tapa	126	10,72	11,35
	180	14,62	16,33
	240	19,76	19,44
	303	25,34	25,53
	480	38,96	41,94
	1122	89,64	93,85

Se comprobó la respuesta lineal del dosímetro en función del tiempo de irradiación, para todas las posiciones y configuraciones. En las Figuras 26 y 27, se muestran los gráficos de Dosis Fricke vs tiempo de irradiación para los tubos ubicados en la posición Centro, sin y con tapa respectivamente; y en las Figuras 28 y 29 se muestran los gráficos de Dosis Fricke vs tiempo de irradiación para los tubos ubicados Adelante, sin y con tapa respectivamente.

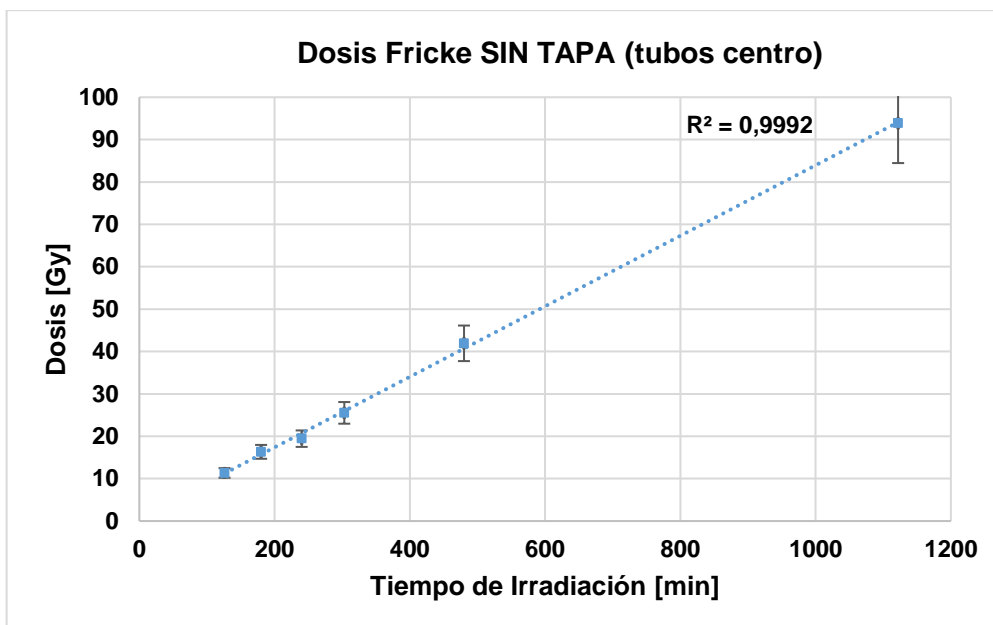


Figura 26. Valores de dosis Fricke en función del tiempo, medidas en los tubos posicionados en el centro del Blindaje N° 2 en configuración SIN TAPA. Se muestra la tendencia del ajuste lineal. Las dosis se expresan con una incertidumbre del 10%.

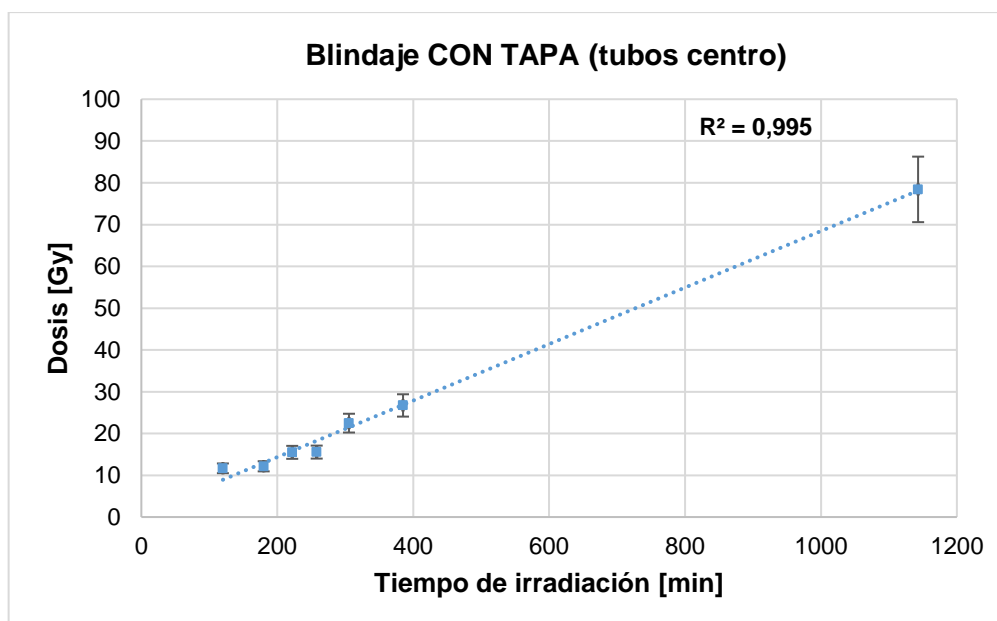


Figura 27. Valores de dosis Fricke en función del tiempo, medidas en los tubos posicionados en el centro del Blindaje N° 2 en configuración CON TAPA. Se muestra la tendencia del ajuste lineal. Las dosis se expresan con una incertidumbre del 10%.

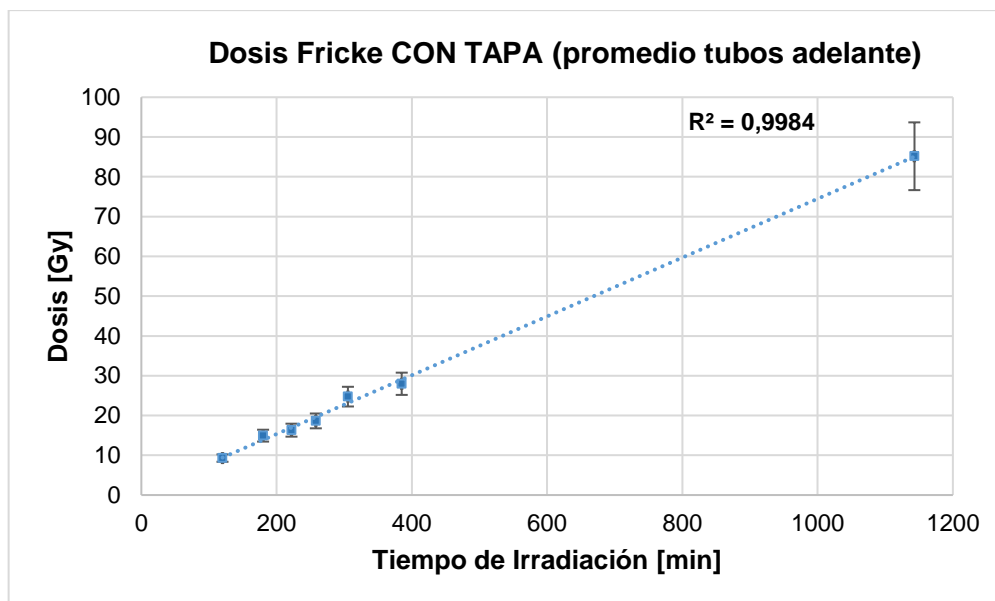


Figura 28. Valores de dosis Fricke en función del tiempo, medidas en los tubos posicionados en el adelante en el Blindaje N° 2 en configuración CON TAPA. Se muestra la tendencia del ajuste lineal. Las dosis se expresan con una incertidumbre del 10%.

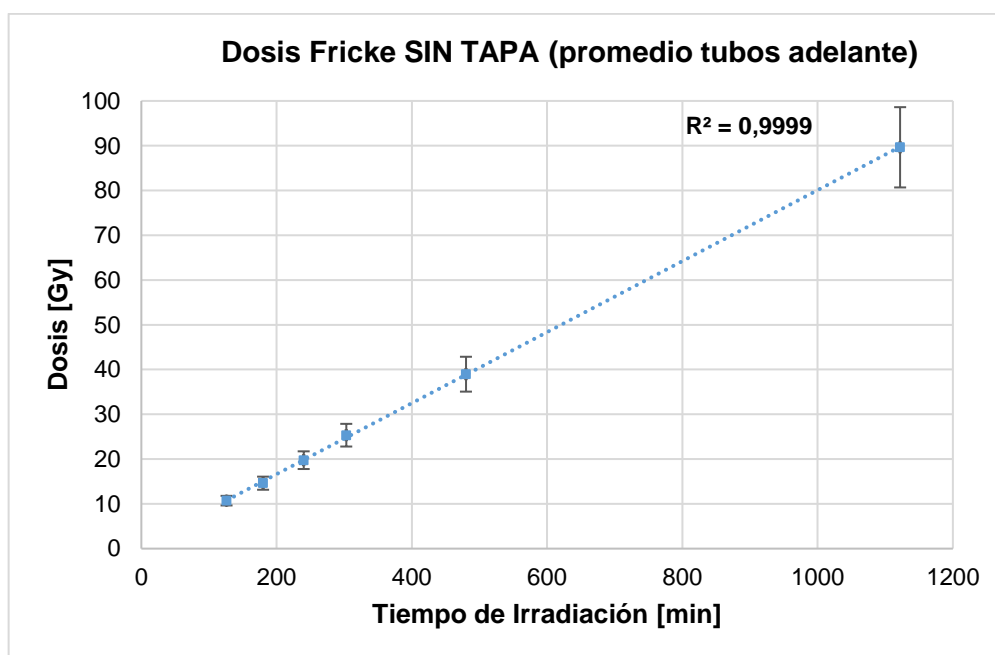


Figura 29. Valores de dosis Fricke en función del tiempo, medidas en los tubos posicionados en el adelante en del Blindaje N° 2 en configuración SIN TAPA. Se muestra la tendencia del ajuste lineal. Las dosis se expresan con una incertidumbre del 10%.

En líneas generales se observó una mayor variabilidad entre las mediciones en la posición de adelante que en el centro del blindaje. No se pudo atribuir ninguna causa aparente que explique este comportamiento. Sin embargo, se considera que el posicionamiento de los tubos adelante (a mitad de altura de la pared del blindaje), es menos reproducible que en el centro. Y que a en las cercanías de la pared del blindaje

se pueden presentar perturbaciones. En la Tabla 14 se comparan los valores de Tasa de dosis calculados de dosis formas: como el promedio de las tasas de dosis medidas y a partir de la pendiente del ajuste lineal de la dosis total absorbida en función del tiempo de irradiación. En el caso de los tubos posicionados adelante, no se observaron diferencias significativas (prueba t-student), entre las tasas de dosis absorbidas Fricke en las diferentes configuraciones (Con y Sin Tapa), para ninguno de los métodos de estimación. Sin embargo, se observó una diferencia significativa ($p < 0,01$) entre la tasa de dosis medida en la configuración Con y Sin tapa para los tubos posicionados en el centro del blindaje).

Tabla 14. Valores de tasa de dosis absorbida Fricke, calculados a partir del promedio de las mediciones o a partir de la pendiente del ajuste lineal (Figuras 26, 27, 28 y 29). Se presenta el resultado de la comparación (prueba t-student) de los resultados entre configuraciones Con y Sin Tapa para una misma posición (Adelante o Centro) del dosímetro.

Config./Posición	Tasa de dosis (Gy/h) (a partir del promedio)		Tasa de dosis (Gy/h) (a partir de la pendiente del ajuste lineal)	
	Adelante	Centro	Adelante	Centro
Con Tapa	4,6 ± 0,5	4,3 ± 0,4	4,4 ± 0,4	4,1 ± 0,4
Sin Tapa	4,9 ± 0,5	5,2 ± 0,5	4,8 ± 0,5	5,0 ± 0,5
t-test	N.S.	p<0,01	N.S.	p<0,01

Considerando despreciable la contribución a la dosis total debida a neutrones en la configuración con tapa ($D_n \ll D_\gamma$), y aceptando el supuesto de que la tasa de dosis gamma en la configuración con tapa y sin tapa se puede considerar constante (TD_γ constante), se estimaron valores de sensibilidad a partir del cociente de la diferencia de la tasa de dosis absorbida total en el Blindaje sin tapa (componente gamma y neutrónica) con respecto a la tasa de dosis absorbida total en el Blindaje con tapa (componente gamma), sobre por el flujo neutrónico.

$$S_n = \frac{TD_{\text{Blindaje sin tapa}} - TD_{\text{Blindaje con tapa}}}{\theta_{\text{thBlindaje sin tapa}}} \quad (9)$$

Los valores de la sensibilidad obtenidos según la ecuación (9) para los dosímetros ubicados en el centro del Blindaje N° 2, fueron $1,03 \text{ E-}13 \text{ n}^{-1} \text{ Gy cm}^2$ y $1,16 \text{ E-}13 \text{ n}^{-1} \text{ Gy cm}^2$, calculados a partir del promedio de tasa de dosis o de la pendiente del ajuste lineal de las mediciones, respectivamente (Tabla 15). En el caso de los dosímetros

de adelante (diferencia con y sin tapa no significativa), los valores estimados fueron $4,63 \text{ E-14 n}^{-1} \text{ Gy cm}^2$ (promedio) y $4,24 \text{ E-14 n}^{-1} \text{ Gy cm}^2$ (pendiente).

Tabla 15. Valores de sensibilidad estimados para los dosímetros ubicados en centro abajo del Blindaje N°2.

Método Estimación	D_n (Gy/h)	Flujo neutrónico ($\text{n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)	Sensibilidad ($\text{n}^{-1} \text{ Gy cm}^2$)
Promedio	0,83	$(2,3 \pm 0,2)\text{E}+09$	1,03 E-13
Ajuste pendiente	0,94		1,16 E-13

Con respecto a la configuración Sin Blindaje “(Aire)”, los resultados se muestran a continuación (Tabla 16):

Tabla 16. Valores de tasa de dosis absorbida Fricke, Flujo, y tasa de dosis gamma para la configuración Sin Blindaje.

Configuración sin Blindaje	Ubicación dosímetro		
	Vertical izquierda	Vertical centrado	Vertical derecho
Tasa de dosis Total (Gy/h)	11,3	10,5	11,4
Flujo SPND ($\text{n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)	$(1,04 \pm 0,08) \text{ E}+10$	$(1,02 \pm 0,08) \text{ E}+10$	$(1,03 \pm 0,08) \text{ E}+10$
Tasa de dosis gamma (Gy/h)	7,5	6,7	7,6

Como se puede observar, los tres dosímetros reciben el mismo flujo, resultado coherente con la distribución conocida de flujo en la FCCT⁴. Sin embargo, se observan diferencias en las dosis Fricke absorbida en los tubos externos con respecto al tubo central. Esta diferencia se debería a un cambio real en la dosis gamma en esas posiciones, debido a que el tubo central se encuentra mejor blindado que los tubos de los extremos, por los bloques de bismuto ubicados para tal fin en la bandeja porta-muestra.

Considerando la sensibilidad estimada (S_n) y el flujo al que se exponen los dosímetros, es posible descontar la dosis debida a neutrones (D_n) y cuantificar la dosis gamma (Tabla 16).

⁴ El flujo decae dentro de la cavidad porta muestras al aumentar la distancia con el núcleo del reactor (longitudinalmente), pero se mantiene para cada distancia en los planos paralelos al mismo (trasversalmente).

Para poder comparar las dosis estimadas por otros métodos de medición (Tabla 9, Figura 30), es necesario aplicar un factor de corrección para obtener la tasa de dosis en aire a partir de la dosis absorbida por los dosímetros Fricke (ASTM E 1026-04 2004 Soares et al. 1987).

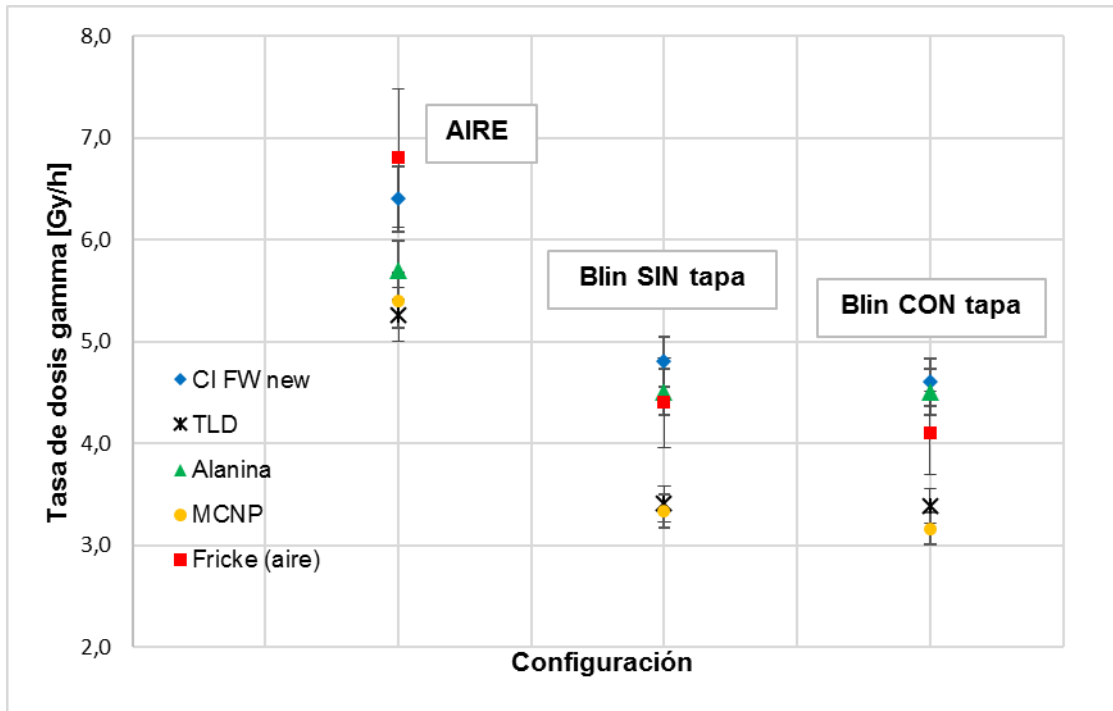


Figura 30. Tasa de dosis de las irradiaciones en “Blindaje N° 2”. Los valores de tasa gamma con los que se comparan los del método Fricke, fueron extraídos de Farías, 2015

Dicho factor resulta de considerar los factores kerma para fotones en función de la energía para el rango de 0,1 MeV a 2 MeV, y realizar los cocientes aire/agua (ecuación 10).

$$f_{\text{corrección}} = \frac{\textit{kerma}_{\text{aire}}}{\textit{kerma}_{\text{agua}}} \quad (10)$$

$$f_{\text{corrección}} = 0,9009 \pm 0,004$$

Por lo tanto, de acuerdo a la sensibilidad calculada y aplicando este factor de corrección al dosímetro más representativo para la comparación (promedio de tubos

externos) obtenemos la tasa de dosis gamma en aire (Tabla 17 y Figura 30, con datos Fricke).

Tabla 17. Tasa de dosis gamma en aire de los distintos métodos de medición. Los valores de los métodos: CI, TLD, alanina y MCNP fueron extraídos de Farías, 2015.

Config. Blindaje Nº2	Flujo neutrónico (n cm ² s ⁻¹)	Tasa gamma normalizada a 8 MW (Gy/h)				
		CI	TLD	Alanina	MCNP	Fricke (aire)
Blind. Con tapa	(2,2 ± 0,2)E+07	4,6	3,4	4,5	3,2	4,1
Blind. Sin tapa	(1,9 ± 0,2)E+09	4,8	3,4	4,5	3,3	4,4
Sin Blindaje (Aire)	(1,04 ± 0,08)E+10	6,4	5,3	5,7	5,4	6,8

2.5.3 *Discusión y conclusiones*

Se pudo comprobar una respuesta lineal de la dosis medida en función del tiempo en las dos configuraciones con blindaje (Con Tapa y Sin Tapa, flujo neutrónico 10⁷ n cm⁻² s⁻¹ y 10⁹ n cm⁻² s⁻¹, respectivamente). A partir de los resultados, se pudieron estimar, por primera vez, valores de sensibilidad del dosímetro Fricke a la exposición con neutrones en el espectro de la FCCT, que permiten discriminar la contribución neuutrónica a la dosis total integrada por el dosímetro, cumpliendo el objetivo de este trabajo. La tasa de dosis gamma medida por el método Fricke para diferentes configuraciones, fueron comparables a las mediciones obtenidas por otros métodos en la FCCT (Figura 30). Sin embargo, la dosis gamma en la configuración de mayor flujo, sigue siendo la más alta entre los métodos comparados, lo que sugiere que la sensibilidad a neutrones podría estar siendo subestimada. En este sentido, es necesario realizar una repetición de la estimación, que por cuestiones de tiempo y disponibilidad de fuente no pudo ser abordada en este trabajo.

3. Discusión Final

Inicialmente se irradiaron una serie de dosímetros Fricke, para obtener una estimación de la sensibilidad, utilizando un blindaje de neutrones “Blindaje N°1” que permite asumir una dosis gamma constante, a la vez que se expone a los dosímetros en un rango de fluencias de neutrones térmicos de aproximadamente $(1,1 \pm 0,1) \times 10^{11} \text{ n cm}^{-2}$ a $(2,3 \pm 0,2) \times 10^{12} \text{ n cm}^{-2}$. Pero en esta experiencia no se pudieron establecer diferencias significativas entre las dosis absorbidas totales integradas por los dosímetros Fricke. Por consiguiente, no se pudo discriminar la contribución de la dosis debida a neutrones de la dosis total integrada por el dosímetro Fricke. Es decir, la tasa de dosis absorbida Fricke debida a neutrones sería despreciable frente a una componente gamma de aproximadamente 5 Gy/h como el de la FCCT, para flujos neutrónicos menores a $1,4 \cdot 10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

En una segunda etapa se utilizó otra configuración (Blindaje N° 2), de manera de exponer los dosímetros a mayores fluencias. Con este diseño se pudo comprobar una respuesta lineal de la dosis total medida en función del tiempo, y se estimó la sensibilidad de los dosímetros Fricke a neutrones térmicos.

Los valores de sensibilidad obtenidos permitieron descontar la contribución neutrónica y comparar la dosis gamma medida por el método Fricke con otras mediciones obtenidas por otros métodos. Sin embargo, la dosis gamma en la configuración de mayor flujo, siguió siendo la más alta entre los métodos comparados, lo que sugiere que la sensibilidad a neutrones podría estar siendo subestimada.

Como la incerteza en las determinaciones hasta el momento es muy alta, sería deseable disponer de un diseño experimental que permita exponer dosímetros Fricke a flujos más altos para una misma condición de tasa de dosis gamma, de manera de poder medir una componente de dosis por neutrones mayor. También sería deseable poder modelar el dosímetro y evaluar la respuesta en la FCCT por simulación computacional (MCNP). Esta herramienta también podría servir para diseñar un blindaje a medida que permita medir un dosímetro descontando la componente de neutrones más exacta, perturbando lo menos posible el campo de la FCCT.

4. Reseñas Bibliográficas

ASTM E 1026-04 Standard Practice for Using the Fricke Reference-Standard Dosimetry System (2004).

Crawley V, Gadan M. Caracterización preliminar de la facilidad de irradiación de muestras biológicas del reactor RA-3 para la implementación del tratamiento de metástasis en hígado con BNCT. Trabajo Final de Tesis de la Carrera Ingeniería en Física Médica; Universidad Favaloro, 2007.

Ciesielski B. and Wielopolski L. Application of Fricke dosimetry for BNCT. Advances in Neutron Capture Therapy, edited by Soloway AH et al., Plenum Press, New York, 1993.

Curotto P. Informe de Beca CNEA tipo B-1: "Operación de facilidades de Irradiación en el RA-3", período 2011.

Curotto P. Informe de Beca CNEA tipo B-1: "Operación de facilidades de Irradiación en el RA-3", período 2012.

Curotto P. Informe de Beca CNEA tipo B-1: "Operación de facilidades de Irradiación en el RA-3", período 2013.

Curotto P. Informe de Beca CNEA tipo B-1: "Operación de facilidades de Irradiación en el RA-3", período 2014.

Farías, RO. Dosimetría y modelado computacional para irradiaciones extracorpóreas en humanos en el marco de la terapia por captura neutrónica en boro, Farías, RO Tesis Doctoral, Universidad Nacional de General San Martín, 2015.

Fricke, H. & Hart E. J., Chemical Dosimetry, Radiation Dosimetry (Edited by Attix F.H. and Roesch W.C.), Academic Press, New York, 1966.

Gambarini G., Colli V., Gay S., Petrovich C., Pirola L., Rosi G., In-phantom imaging of all dose components in boron neutron capture therapy by means of gel dosimeters, Appl. Rad. Isot., 61 (2004) 759-763.

<http://miciencia.info/mecanica/puj/DATOS/promedio.htm>

IAEA-TECDOC-1223. Current status of neutron capture therapy, International Atomic Energy Agency (IAEA), (2001).

Knoll, GF. Radiation Detection and Measurement. Wiley, New York, (1989). Mangueira T.F., Silva C.F., Coelho P.R.P., Campos L.L. Gamma/neutron dose

evaluation using Fricke gel and alanine gel dosimeters to be applied in boron neutron capture therapy Applied Radiation and Isotopes 68 (2010) 791–794.

Mangueira T.F., Silva C.F., Coelho P.R.P., Campos L.L. Gamma/neutron dose evaluation using Fricke gel and alanine gel dosimeters to be applied in boron neutron capture therapy Applied Radiation and Isotopes 68 (2010) 791–794.

Miller M, Quintana J, Ojeda J, Langan S, Thorp S, Pozzi E, Szejnberg M, Estrzyk G, Nosal R, Saire E, Agrazar H, Graiño F. New irradiation facility for biomedical applications at the RA-3 reactor thermal column. Appl Radiat Isot 67(7-8 Suppl): S226-229, 2009.

Miller M, González S, Thorp S. Rhodium self-powered neutrón detector as a suitable on-line thermal neutron flux monitor in BCNT treatments, 2011.

Miller et al., Implantable self-powered detector for on-line determination of neutron flux in patients during NCT treatment, Appl Radiat. Isot, 2004.

Neutron Standards and Applications , Issue 493

Olszanski A., Klassen NV, Ross CK and Shortt KR. The IRS Fricke Dosimetry System, Report PIRS-0815, National Research Council, Ionizing Radiation Standards. Institute for National Measurement Standards, Ottawa, Ontario. K1A 0R6, Canada, 2002.

Pozzi, E. C. C. Diseño y caracterización de un Nuevo blindaje neutrónico para la aplicación de BNCT en un modelo experimental de cancer bucal en el reactor RA-3. Tesis final de la carrera Especialización en Radioquímica y Aplicaciones nucleares del Instituto Dan Beninson, CAE, CNEA, 2012.

Pozzi, ECC “Estudios radiobiológicos de la Terapia por Captura Neutrónica en Boro (BNCT) para el tratamiento de cáncer bucal y metástasis hepáticas a nivel experimental”. Tesis de doctorado de la Universidad de Buenos Aires, 2016.

PO14EO04 “Irradiación de muestras en la Columna Térmica del RA-3”, RA-3, CAE, GAATN.

Soares CG, Bright EL y Ehrlich M. Fricke Dosimetry in High-Energy Electron Beams. National Bureau of Standards (U.S.), Special Publication 250-4:54pp, (1987).

Sztejnberg ML “Detector autoenergizado, implantable en pacientes sometidos a NCT, para medición de flujo en tiempo real”, Proyecto Final, Universidad Favaloro, 2004.

Thorp S y Curotto P,” Medición de temperatura en la FCCT con termocuplas y tubos de agua”. Informe interno, 2015.

5. Anexos

ANEXO I: Técnica de Activación Neutrónica para determinación de flujos térmicos (Knoll, 1989)

La medición de neutrones puede llevarse a cabo indirectamente a través de la radioactividad que se genera en algunos materiales por las interacciones con neutrones. Una muestra de determinado material puede ser expuesta a un flujo de neutrones por un período de tiempo, y luego se puede cuantificar la actividad que se induce por activación en el mismo. Los tipos de decaimientos y la actividad medida pueden ser utilizados para deducir información acerca del número y/o distribución de energía de los neutrones en el campo original. Este tipo de materiales se denominan “detectores de activación”, y sus aplicaciones son ampliamente conocidas.

Debido a que las secciones eficaces son máximas en las energías de neutrones bajas, los detectores de activación son comúnmente utilizados para la medición de neutrones térmicos. Para alcanzar un alto grado de sensibilidad, se eligen materiales con altas secciones eficaces para una reacción neutrónica que produzca una forma de radiactividad medible. Debido a que el camino libre medio de los neutrones en materiales de alta sección eficaz es pequeño, el espesor de los materiales debe ser muy pequeño para evitar la perturbación del flujo neutrónico durante la medición. De esta manera, la forma geométrica más común de los materiales utilizados por esta técnica, son hojuelas delgadas o alambres de pequeño diámetro.

Activación y Decaimiento

En el caso más simple, la hojuela o alambre es tan fino que la probabilidad de una interacción es pequeña para cualquier neutrón específico. Luego, el flujo neutrónico permanece sin perturbar, y la tasa de interacciones (R), que ocurren dentro de la hojuela está dada por el producto del flujo neutrónico promediado sobre la superficie de la hojuela (ϕ), la sección eficaz de activación promediada sobre el espectro neutrónico (Σ_{act}) y el volumen de la hojuela (V):

$$R = \phi \Sigma_{act} V$$

Por lo tanto, conocidas las características geométricas de la hojuela y midiendo de algún modo esta tasa de interacciones, es posible obtener un parámetro que es un indicador directo de la magnitud del flujo neutrónico.

Cuando la hojuela se irradia, las especies nucleares radiactivas que se forman decaen radiactivamente. La tasa de decaimiento viene dada simplemente por λN , donde λ es la constante de decaimiento y N es el número total de núcleos radiactivos presentes. La tasa de cambio en N está dada por la diferencia entre la tasa de formación y la tasa de decaimiento

$$\frac{dN}{dt} = R - \lambda N$$

Asumiendo que la tasa R es una constante (considerando que el flujo no varía durante la exposición, y despreciando cualquier “quemado” o disminución del número de núcleos blanco durante la medición), la solución de la ecuación anterior para la condición $N = 0$ a tiempo = 0 es:

$$N(t) = \frac{R}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t})$$

La actividad A de la hojuela está dada por λN , o por:

$$A(t) = R(1 - e^{-\lambda t})$$

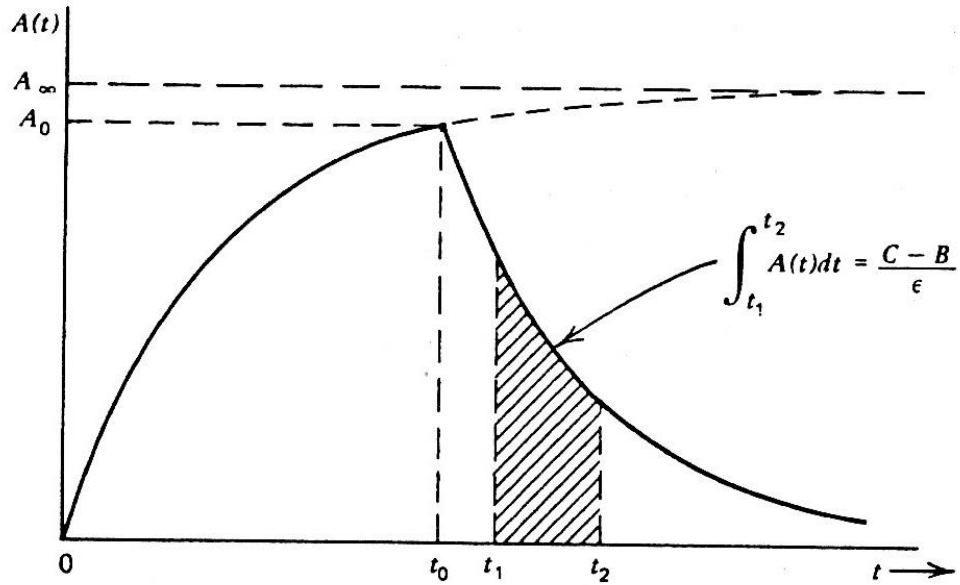
Por lo tanto la actividad crece con el tiempo, como se muestra en la Ilustración 1, y alcanza una asíntota o “actividad de saturación” para tiempos de irradiación infinitamente largos dada por:

$$A_{\infty} = R = \varphi \Sigma_{act} V$$

Si la irradiación procede por un tiempo t_0 , momento en el cuál se retira la hojuela, la actividad A_0 será:

$$A_0 = A_{\infty}(1 - e^{-\lambda t_0})$$

Ilustración 1 Actividad de un detector de activación después de la inserción en un flujo constante a un tiempo = 0 y retirado al tiempo = t_0 . El número de cuentas medidas es proporcional al área bajo la curva de decaimiento entre t_1 y t_2 . Todos los tiempos se miden desde el comienzo de la irradiación.



Luego de la irradiación, se mide la actividad de la hojuela en un detector apropiado. Se debe ser muy cuidadoso al determinar los tiempos involucrados en cada paso, debido a que la actividad de la muestra se encuentra decayendo continuamente. Si el conteo se realiza en un intervalo entre t_1 y t_2 , el número de cuentas (C) será:

$$\begin{aligned}
 C &= \epsilon \int_{t_1}^{t_2} A_0 e^{-\lambda(t-t_0)} dt + B \\
 &= \epsilon \frac{A_0}{\lambda} e^{\lambda t_0} (e^{-\lambda t_1} - e^{-\lambda t_2}) + B
 \end{aligned}$$

Donde, ϵ es la eficiencia total de conteo y B es el número de cuentas del fondo esperado entre (t_2-t_1) .

Reemplazando $A_0 = A_\infty (1 - e^{-\lambda t_0})$ en la expresión anterior, se puede obtener la actividad de saturación de la cual puede ser calculada la magnitud del flujo neutrónico.

$$A_x = \frac{\lambda(C - B)}{\epsilon(1 - e^{-\lambda t_0})e^{\lambda t_0}(e^{-\lambda t_1} - e^{-\lambda t_2})}$$

Las hojuelas de activación son detectores integradores y, por lo tanto, no pueden proveer información acerca de ninguna variación del flujo neutrónico durante el tiempo de exposición. Este tipo de detectores tiene las ventajas de poseer un tamaño pequeño, ser insensibles a radiación gamma y ser de bajo costo. Tampoco requieren conexiones eléctricas y pueden tolerar un amplio rango de las condiciones en que se mide (por ej. variaciones de temperatura).

Anexo II: Prueba de Influencia de la temperatura en los dosímetros

Se realizó una prueba a fin de evaluar la influencia de la temperatura durante el manejo de los dosímetros Fricke (por ejemplo, tiempos previos y posteriores a una irradiación) y la irradiación propiamente dicha; y de esta forma definir si es una variable crítica de control durante las experiencias. Se procedió de la siguiente manera: se separaron 15 dosímetros en total, de los cuales a seis se los dejó expuestos a temperatura ambiente (24,8 °C) en un laboratorio, seis fueron dejados en una heladera (control, a 8,8 °C) y los otros seis en una estufa a una temperatura de 40,0 °C por un lapso de 2 horas.

En la Figura 1 se pueden apreciar los dosímetros Fricke ubicados en la estufa.



Figura 1. Dosímetros Fricke puestos en una estufa.

Trascurridas las 2 horas, se midió la absorbancia (según norma ASTM 1024-04, 2004) de los 15 dosímetros, utilizando un espectrofotómetro Perkin Elmer UV VIS en la longitud de onda de 303 nanómetros.

El análisis de resultados se realizó mediante una comparación de los grupos de tratamiento frente al control, utilizando un test Anova . El nivel de significancia se estableció en $p = 0,05$.

En la Tabla 1 se presentan los resultados obtenidos a partir de la medición de la absorbancia de la solución de los dosímetros Fricke.

Tabla 1. Valores de absorbancia de los dosímetros Fricke y las respectivas temperaturas.

Ubicación dosímetro Fricke	Temperatura incubación (°C)	Temperatura medición (°C)	Absorbancia	
			Medición 1	Medición 2
Laboratorio	18,8 ± 0,1	23,7 ± 0,1	0,012	0,011
			0,014	0,012
			0,012	0,013
			0,013	0,011
			0,011	0,011
			0,010	0,010
Heladera	8,8 ± 0,1	18,5 ± 0,1	0,010	0,010
			0,009	0,010
			0,008	0,009
			0,010	0,009
			0,008	0,008
			0,009	0,010
Estufa	40,0 ± 0,1	19,2 ± 0,1	0,015	0,015
			0,014	0,015
			0,016	0,013
			0,016	0,014
			0,013	0,014
			0,013	0,016

La comparación de los resultados mostró que no existen diferencias significativas entre la absorbancia medida en dosímetros mantenidos a temperatura ambiente (18.8 °C) o en estufa a 40 °C, con respecto a dosímetros mantenidos bajo refrigeración ($p > 0,05$).

En base a dichos resultados se concluyó que, para el manejo de rutina de los dosímetros, la influencia de la variable temperatura en el rango evaluado (9 °C a 40 °C), es no significativa.

ANEXO III: Cálculo de flujo neutrónico térmico en la FCCT, mediante el uso de detectores autoenergizados de rodio (SPND, Self Powered Neutron Detector).

Los detectores SPND modelo CNEA SPND Rh-10, Miller et al. 2004 [1], cuentan con un emisor de ^{103}Rh de 15 mm y 1 mm de largo y diámetro respectivamente (σ térmica igual a 134 a ^{104}Rh y 11 barns a $^{104\text{m}}\text{Rh}$), una vaina aislante de acrílico de 20 mm y 1,5 mm de largo y diámetro externo, y un colector de Zircaloy-4 de 20 mm y 1,9 mm de largo y diámetro externo.

Esta combinación le otorga al sistema una sensibilidad neutrónica en estado estacionario de $2,2 \times 10^{-21} \text{ A/n/cm}^2\text{s}$ y una sensibilidad gamma de $2 \times 10^{-14} \text{ A/mGy/s}$. Esto implica que se obtendrían 3 pA y 0,02 pA de respuesta para una irradiación típica con flujo neutrónico de $10^9 \text{ n/cm}^2\text{s}$ y tasa de dosis gamma de 1 mGy/s (3,6 Gy/h). Es decir, que la respuesta gamma es menor al 1% de la respuesta neutrónica bajo las condiciones mencionadas. Las corrientes de fuga resultan del orden del femtoamper, aún menor que la contribución por radiación gamma, [2].

En la Figura 1 puede observarse una imagen del detector SPND, a modo de ejemplo de dichos detectores.



Figura 1. Fotografía de un detector SPND. En ella pueden observarse las vainas externas del sistema: la vaina de Zircaloy-4, en el cuerpo del detector; la vaina termocontraíble, cubriendo la conexión cable-detector; y la vaina aislante del cable. También se puede apreciar una escala que denota las dimensiones del detector.

Cuando un detector SPND de rodio es expuesto a neutrones térmicos, permite medir una corriente proporcional al flujo neutrónico luego de un tiempo mínimo de irradiación de 20 minutos. Este tiempo está asociado con el principio de funcionamiento del detector ya que las cargas que se generan provienen de la activación y decaimiento β – del rodio. Mediante una calibración previa contra un método de medición absoluto

(por ejemplo, medición por activación de hojuelas) se obtiene un factor de sensibilidad que permite traducir la corriente medida al valor de flujo al que se expuso el SPND. Comparado con el método de medición de hojuelas, el SPND permite obtener una medición de flujo en el punto de interés en corto tiempo y con un procesamiento de datos muy sencillo. A su vez, el SPND no requiere de alimentación eléctrica para su funcionamiento y su tamaño es muy pequeño, permitiendo medir en espacios reducidos sin afectar significativamente al sistema. Estos detectores fueron diseñados para realizar mediciones de flujo en la superficie expuesta de pacientes sometidos a tratamientos de BNCT en Argentina, [1].

La cadena de medición se completa con electrómetros no resultando significativos los tiempos de integración asociados.

Para los cálculos de flujo neutrónico con SPND en las posiciones en las distintas configuraciones en que fue de interés caracterizarlo para las experiencias llevadas a cabo en este trabajo, se realizaron irradiaciones en la FCCT del RA-3 con el detector en dichas posiciones. Primeramente, se adquirió por el tiempo de unos minutos, valores de la corriente de fondo para luego obtener su promedio. Se realizó la irradiación de cada configuración por un tiempo mayor a 20 minutos, adquiriéndose los valores de corriente durante la misma. Se calculó el promedio de los últimos 120 valores de corriente obtenidos, que representan aproximadamente los 120 segundos finales de la irradiación, tiempo en que se considera alcanzada la estabilidad y superado el 99% de la respuesta del detector. El promedio de esos 120 valores de corriente restado el valor del promedio de los valores de la corriente de fondo, se consideró la Corriente neta obtenida (I_{net}). Dicho valor de corriente se tradujo a un valor de corriente de un detector SPND patrón que se encuentra calibrado en flujo térmico (sensibilidad, $S = (1,98 \pm 0,16) 10^{-21} \text{ A/cm}^{-2}\text{s}^{-1}$). El cociente entre el valor de I_{net} y la sensibilidad del detector patrón, para cada irradiación, resultó el valor de flujo neutrónico térmico al que fue expuesto el SPND en cada caso.

En la Figura 2 puede observarse el gráfico de la corriente medida por el detector vs el tiempo transcurrido para una irradiación típica para medición de flujo neutrónico.

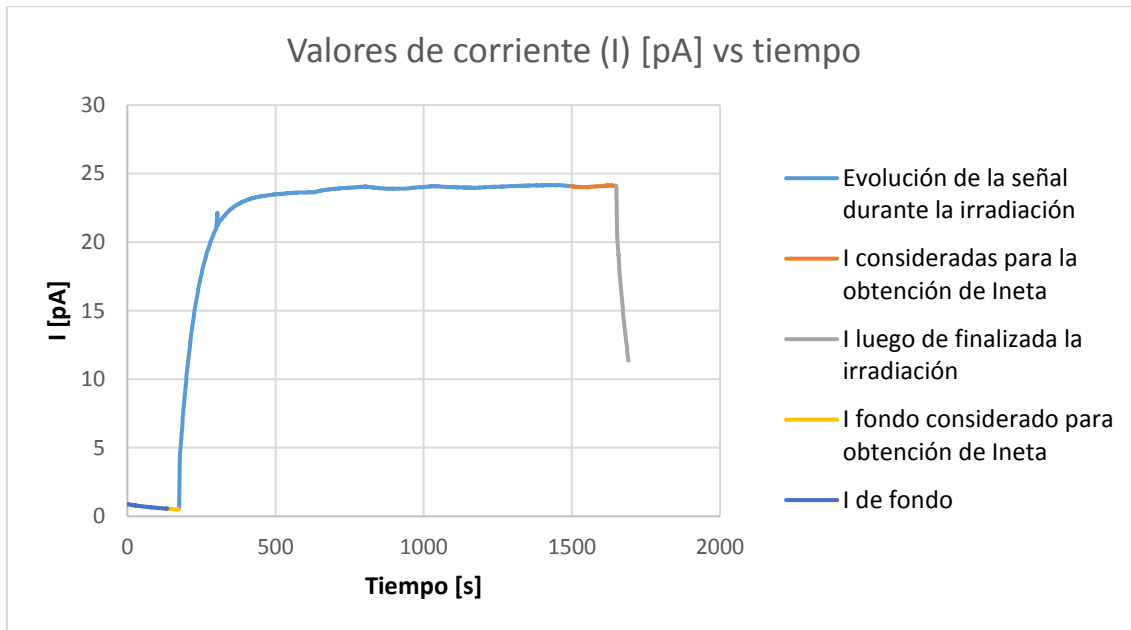


Figura 2. Gráfico de la corriente (I) medida por el detector SPND en una irradiación típica para cálculo de flujo neutrónico en la FCCT.

En las experiencias de irradiación realizadas para este trabajo se utilizaron dos detectores SPND (SPND A0 y SPND A1), que son los comúnmente utilizados para la medición de flujo neutrónico en la FCCT.

Referencias

- [1] *Implantable self-powered detector for on-line determination of neutron flux in patients during NCT treatment*, Applied Radiation and Isotopes, Miller et al., 2004.
- [2] Proyecto Final, *Detector autoenergizado, implantable en pacientes sometidos a NCT, para medición de flujo en tiempo real*, L. E. Mariani, M. Skumanic, M. L. Sztejnberg, 2004.

ANEXO IV: Cálculo de Incertidumbre

La incerteza experimental de las dosis fue considerada de dos formas. Por un lado, se consideró la dispersión estadística observada en una serie de mediciones repetidas. Por otro lado, se consideró la incertidumbre asociada al método Fricke que se encuentra publicada en la literatura, la cual se asumió como mínima incertidumbre para el uso del sistema en nuestro laboratorio⁵.

Al respecto, Soares y col. [1] abordan el cálculo de incertidumbre por dos métodos:

- Primer método: arriban a una incerteza experimental exponiendo dosímetros en un campo de radiación conocido y caracterizado, y evalúan la desviación estándar entre el valor de dosis medido y el de calibración. La incerteza total la definen como tres veces esa desviación estándar, considerando un intervalo de confianza de 99%. El resultado es un desvío estándar de 1,5% y una incerteza total de +/-4,5%.
- Segundo método: en este caso la incerteza total fue estimada a partir de multiplicar la incertidumbre combinada, resultante de realizar la suma cuadrada de las varianzas asociadas a las diferentes etapas del procedimiento, por un factor igual a tres. La incertidumbre combinada resultó igual a 1,6%, por lo que la incerteza total resultó igual a 4,8%.

De esta forma el resultado de ambos métodos sería comparable.

En el presente trabajo se obtuvo la incerteza estadística de las dosis (normalizadas por potencia), a partir de la desviación estándar de las mediciones de los dosímetros ubicados dentro del Blindaje N° 1 en la posición “adelante abajo” (Tabla 5). Se consideran los dosímetros en esta posición como un control interno de esta serie de experiencias, dado que no se verían afectados significativamente por la variación del espesor de blindaje de ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ que cubre la abertura. La incertidumbre relativa (desvío/media) calculada para esta serie de datos fue 2,3%. Si se considera un factor de cobertura $k = 3$ (3 desvíos estándar, que permite establecer un intervalo

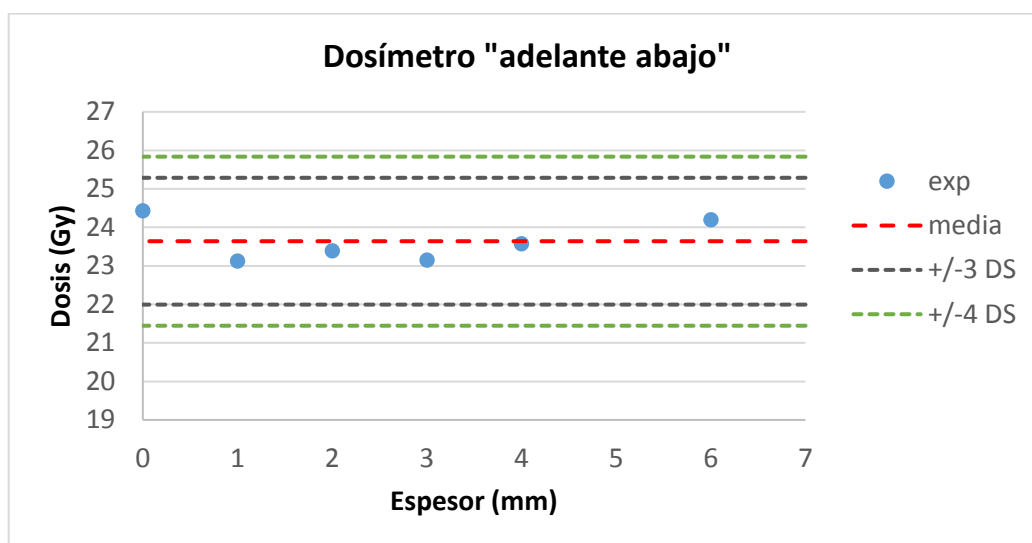
⁵ Sería óptimo realizar un tratamiento considerando todas las fuentes de incertidumbre asociadas al proceso de medición dosimétrica Fricke, como todo lo relevante a los pasos de preparación de la solución dosimétrica, instrumentos de medición utilizados (espectrofotómetro, balanza, termómetro, etc.), así como de las constantes tomadas de la norma para el cálculo de la dosis absorbida. Sin embargo, abordar este tratamiento excedía los tiempos planteados para este trabajo final. La implicancia de su falta de tratamiento se considera en la discusión final del trabajo.

de confianza que incluya al 99% de los datos obtenidos), la incerteza total a considerar en las mediciones sería del 7%.

Por otro lado, de la publicación "Neutron Standards and Applications" [2] se obtuvo como referencia que la incerteza total en la determinación de dosis absorbidas por el método Fricke, en un campo mixto (gamma más neutrones), no sería menor al 8%.

Finalmente, a los fines prácticos de poder comparar los resultados en las experiencias de este trabajo, se consideró un mayor factor de cobertura, $k = 4$, asumiendo que la incertidumbre real del método debería ser mayor a la que se estimó estadísticamente, y debería cubrir el mínimo de incertidumbre observado en la literatura. De esta forma, se estableció un valor de incertidumbre para las mediciones igual al 10%.

En la siguiente Figura se muestra la serie de datos experimentales considerados en la estimación de incerteza (se muestran la media y los intervalos correspondientes a 3 y 4 desvíos estándar (DS)).



[1] Soares CG, Bright EL y Ehrlich M. Fricke Dosimetry in High-Energy Electron Beams. National Bureau of Standards (U.S.), Special Publication 250-4:54pp, (1987).

[2] Symposium of the Neutron Standards and Applications, Gaithersburg, 1977.

Agradecimientos

Agradezco a todas aquellas personas que de alguna u otra manera participaron en la concreción de este proyecto.

Infinitamente a mi Director Emiliano Pozzi y a mi Co-directora Paula Curotto por su aporte invaluable, dedicación y por compartir desinteresada e incondicionalmente sus conocimientos.

A la CNEA y al Instituto Dan Beninson por haberme brindado la oportunidad de realizar esta especialidad.

A Ariel Novello por alentarme e impulsarme a ampliar mi horizonte de conocimientos.

A Silvia Thorp por su aporte e interés en este proyecto.

A Lucila Rogulich y Gabriel Carus por haber participado.

A todo el personal del sector Patología de la Radiación del Centro Atómico Constituyentes, por haberme facilitado el uso de su instalación y equipamiento.

A mis compañeros de Fisión por su apoyo y comprensión.

A mi compañero de ruta y confidente Emilio.