

Neutron Flux Measurement with Indium Flakes in the IPN Subcritical Nuclear Reactor

Itzel Adriana Olguín Rodríguez, Edmundo Leonardo Serrano Hernández, Gustavo Alonso Vargas, Alonso Álvaro Sánchez Ríos, Edmundo del Valle Gallegos and Arturo Delfín Loya

EasyChair preprints are intended for rapid dissemination of research results and are integrated with the rest of EasyChair.

July 8, 2023

Medida de Flujo de Neutrones con Laminillas de Indio en el Reactor Nuclear Subcrítico del IPN

Itzel Adriana Olguín Rodríguez, Edmundo Leonardo Serrano Hernández, Gustavo Alonso Vargas, Alonso Álvaro Sánchez Ríos, Edmundo del Valle Gallegos

Instituto Politécnico Nacional, Escuela Superior de Física y Matemáticas Av. IPN s/n, Col. Lindavista, Ciudad de México, 03020, México. iolguinr1400@alumno.ipn.mx; eserranoh1500@alumno.ipn.mx; gustavoalonso3@gmail.com; asanchez@ipn.mx;_evalle@ipn.mx

Arturo Delfín Loya

International Journal of Nuclear Energy Science and Technology Route de Pre-Bois, 14. 1216 Cointrin-Geneva Switzerland arturodlfn@gmail.com

Resumen

La distribución del flujo de neutrones en la región central del reactor subcrítico del Instituto Politécnico Nacional se mide de manera experimental mediante el método de activación de laminillas. Se tiene un soporte sujetador de muestras y una herramienta para introducir y retirar el montaje de las muestras a irradiar en el núcleo. Las laminillas se analizan en un sistema multicanal con detector de ioduro de sodio. Los resultados de las laminillas de Indio medidas aportan la actividad de estas que, a través de un programa en Fortran adecuado por el área de ingeniería nuclear del Departamento de Física, proporciona los valores calculados del flujo promedio de neutrones subcádmico, epicádmico y total, los valores obtenidos para el subcrítico son: 1.7575E+03, 1.8033E+03 y 3.56E+03 n/cm²-seg respectivamente.

1. INTRODUCCIÓN

El flujo de neutrones en los reactores nucleares subcríticos de entrenamiento difiere significativamente entre ellos. Al efecto se deben tener en cuenta varias consideraciones para garantizar una comparación adecuada como son: características y diseño del combustible, arreglo geométrico del núcleo, contención, moderador, etc.

El Instituto Politécnico Nacional (IPN), cuenta con una instalación que alberga un reactor subcrítico denominado Chicago 9000 [1], donde se llevan a cabo técnicas de medición para evaluar parámetros nucleares del mismo. La determinación de la distribución del flujo de neutrones subcádmico, epicádmico y total en el subcrítico, es importante para el funcionamiento de éste. La técnica de análisis por activación neutrónica se basa en la medición de la radiación liberada por el

decaimiento de los núcleos radiactivos formados al irradiar los materiales con neutrones y permite por este método indirecto determinar el flujo de neutrones. Esta técnica requiere dedicarle tiempo en la irradiación y en el proceso de medición.

En el presente trabajo se presentan los resultados obtenidos por el método de activación de laminillas de Indio que fueron ubicadas en cuatro direcciones cardinales y justo a la altura media del subcrítico para medir indirectamente el flujo de neutrones.

2. TEORÍA

La actividad absoluta de las láminas irradiadas se determina mediante el método de espectrometría gamma, y el flujo de neutrones se obtiene a partir de la actividad de la laminilla correspondiente después de aplicar las correcciones necesarias. Se utiliza la técnica del corte del cadmio para separar los flujos subcádmico y epicádmico, de acuerdo con los materiales que se tienen en el Laboratorio del Reactor Nuclear de Departamento de Física (LRN-DF) de la ESFM-IPN. Para la medición de los perfiles de flujo axial y radial en el núcleo, se divide el arreglo de combustibles en secciones verticales y radios equidistantes horizontalmente.

2.1. Detección de Neutrones

Los neutrones son partículas que no ionizan directamente la materia, por lo que se tienen que detectar por medio de efectos secundarios que den lugar a interacciones con medios detectores, los cuales se pueden utilizar para determinar su intensidad, su energía y sus efectos de dosis. Para neutrones térmicos: (0 a \gg 5 KT), los principales efectos de este tipo son:

- 1. Reacciones de captura que dan lugar a partículas ionizantes pesadas que se pueden detectar rápidamente.
- 2. Reacciones de activación que dan lugar a radiactividad inducida que se puede detectar un tiempo después de la exposición.

La activación por neutrones térmicos y rápidos de laminillas se emplea para mapear los flujos de neutrones, dentro y fuera de los núcleos de los reactores, y cerca de otras fuentes de interés. Los materiales más usados son el Indio y el Oro, debido a que estos materiales se pueden obtener en forma pura, su maleabilidad permite obtener espesores uniformes, tienen vidas medias cortas y secciones eficaces altas. En este trabajo se utiliza el ¹¹⁵In que tiene una abundancia de 95.7% y una sección eficaz de activación térmica de 161±5 barns [2]; en la reacción (n, γ) genera el ^{116m}In con vida media de 54.29 min, y la energía característica que se utiliza para determinar las actividades inducidas por la activación de neutrones es de 1293.56 (84.8%) keV.

Al activar laminillas detectoras, se encuentra que la rapidez de producción del isótopo radiactivo es proporcional al flujo de neutrones y a la sección eficaz de activación de la reacción (n, γ) . Para una muestra delgada, se puede considerar que la probabilidad de una interacción es mucho menor que uno para un neutrón específico, al efecto el flujo de neutrones no se perturbará y la rapidez *R* [3-6] a la cual ocurren las interacciones de activación dentro de la laminilla se expresa como sigue:

$$R = \Sigma_{ac} \varphi V \tag{2.1}$$

donde:

- Σ_{ac} : Sección eficaz macroscópica de activación promedio sobre el espectro de neutrones. Sólo se considera la reacción (n, γ) .
- φ : Flujo de neutrones promediado sobre la superficie de la laminilla.
- *V*: Volumen de la muestra sometida a la irradiación por neutrones

Si el isótopo producido es estable, la cantidad del isótopo en cualquier tiempo es el producto de la rapidez dada por la ecuación (2.1) y el tiempo de irradiación. Aunque, en el caso de la producción de isótopos radiactivos, la formación y el decaimiento del isótopo radiactivo se efectúan casi simultáneamente. La rapidez de decaimiento está dada por $-\lambda N$, donde λ es la constante de decaimiento y N es el número total de núcleos radiactivos presentes o que sobreviven del isótopo en el tiempo t. La rapidez neta de cambio en N ó de crecimiento (producción) del isótopo radiactivo, dN/dt, está dada por:

$$dN/dt = \Sigma_{ac}\varphi V - \lambda N \tag{2.2}$$

Suponiendo que el flujo de neutrones es invariable durante la exposición (R= constante) y despreciando el decrecimiento del número de núcleos blanco durante la medición, "quemado". La solución para la ecuación (2.2) se obtiene de:

$$dN/dt + \lambda N = R \tag{2.3}$$

al multiplicar la ecuación (2.3) por el factor integrante $e^{\lambda N}$, se tiene:

$$e^{\lambda N} [dN / dt + \lambda N] = R e^{\lambda N}$$
(2.4)

$$d(Ne^{\lambda t}) = Re^{\lambda t} \tag{2.5}$$

integrando

$$\int d(Ne^{\lambda t}) = \int Re^{\lambda t} dt + C \tag{2.6}$$

$$Ne^{\lambda t} = Re^{\lambda t} / \lambda + C \tag{2.7}$$

empleando las condiciones iniciales: N = 0, para t = 0, se tiene:

$$C = -R/\lambda \tag{2.8}$$

en particular, para un número de átomos N_1 en el tiempo t_1 .

$$N_1 = (R/\lambda) (1 - e^{-\lambda t_1})$$
(2.9)

$$N_1 = (\Sigma_{ac} \varphi V / \lambda) (1 - e^{-\lambda t_1})$$
(2.10)

Así la actividad absoluta de la laminilla está dada por:

Itzel Adriana Olguín Rodríguez et al, Medida de Flujo de Neutrones con Laminillas de Indio en el Reactor Nuclear Subcrítico del IPN

$$\lambda N_1 = \Sigma_{ac} \varphi V (1 - e^{-\lambda t_1}) \tag{2.11}$$

Ajustando un contador para obtener la actividad indicada por la ecuación (2.11), la actividad de conteo A_1 estará dada entonces por:

$$A_1(t) = k\lambda N_1 = k\Sigma_{ac}\varphi V(1 - e^{-\lambda t_1})$$
(2.12)

La actividad inducida va creciendo con el tiempo y se aproxima a una asíntota (k > 0 constante de proporcionalidad). Por lo que para un tiempo de irradiación (t_1) infinito, se obtendrá la actividad límite llamada "actividad de saturación" A_s .

$$A_S = k\Sigma_{ac}\varphi V \tag{2.13}$$

y así:

$$A_1(t) = A_s(1 - e^{-\lambda t_1})$$
(2.14)

Por lo general, después de que se retira la muestra o laminilla de la fuente de irradiación, transcurre un cierto tiempo antes de iniciar el conteo, si el conteo se inicia en t_2 , entonces la actividad de la laminilla en t_2 , estará dada por:

$$A_2 = A_s (1 - e^{-\lambda t_1}) e^{-\lambda (t_1 + t_2)}$$
(2.15)

para la actividad de saturación, A_S , resulta:

$$A_{S} = A_{2} / \left[(1 - e^{-\lambda t_{1}}) e^{-\lambda (t_{1} + t_{2})} \right]$$
(2.16)

En general, el tiempo de conteo no es corto comparado con la vida media y la expresión apropiada se obtiene por integración, la cual dará el número total de cuentas (C) sobre cualquier tiempo de conteo desde cero hasta $(t_3 - t_2)$, como la ecuación (2.15) representa la actividad cuando se inicia el conteo, el intervalo de conteo se extenderá de algún tiempo cero $(t_2 - t_2)$ a $(t_3 - t_2)$, donde t_2 marca la terminación del tiempo de espera y el inicio del tiempo de conteo, este intervalo termina en t_3 . Los tiempos t_1 , t_2 y t_3 se registran a partir de que se inicia la irradiación. Bajo las condiciones anteriores, el número total de cuentas C, está dado por:

$$C = \int_0^{t_3 - t_2} A_2 dt \tag{2.17}$$

$$C = A_{S}(1 - e^{-\lambda t_{1}})e^{-\lambda(t_{1} + t_{2})} \int_{0}^{t_{3} - t_{2}} e^{-\lambda t} dt \qquad (2.18)$$

la solución de la ecuación (2.18) es:

$$C = [A_S/\lambda] \ (1 - e^{-\lambda t_1})e^{-\lambda(t_1 + t_2)}(1 - e^{-\lambda(t_3 - t_2)})$$
(2.19)

una variante de la Ecuación (2.19) es:

$$A_{S} = C\lambda / \left[(1 - e^{-\lambda t_{1}}) e^{-\lambda (t_{1} + t_{2})} (1 - e^{-\lambda (t_{3} - t_{2})}) \right]$$
(2.20)

Memorias digitales La Paz BCS 2023

Aun cuando las ecuaciones descritas son válidas para usarlas con cualquier sustancia radiactiva, bajo condiciones apropiadas, son de valor particular en estudios experimentales de radiactividad que involucren el uso de laminillas. El siguiente ejemplo ilustra el uso en este caso. Suponiendo que se desea calcular el flujo de neutrones asociado a un cierto conteo de actividad. La rapidez de interacción R, de los neutrones con los núcleos de la muestra está dada por la ecuación (2.1) es:

$$R = \Sigma_{ac} \varphi V = \sigma_{ac} N m \varphi / \rho \tag{2.21}$$

donde:

 σ_{ac} : sección eficaz microscópica de activación.

- φ : flujo de neutrones.
- *N*: numero de núcleos de la muestra $/cm^2$.
- *m*: masa de la laminilla, en gramos.
- ρ : densidad de la laminilla, en g/cm³.

La rapidez de interacción en términos de la actividad de conteo es entonces:

$$R = A_S \varepsilon = \lambda C_S \varepsilon \tag{2.22}$$

donde ε es la eficiencia de conteo y C_S es el conteo total a saturación (o sea $C_S = A_S/\lambda$), véase la ecuación (2.20). De las ecuaciones (2.20), (2.21) y (2.22) se tiene:

$$\phi = C\lambda / \left[\varepsilon \, \sigma_{ac} \, N(m/\rho) (1 - e^{-\lambda t_1}) e^{-\lambda (t_1 + t_2)} (1 - e^{-\lambda (t_3 - t_2)}) \right]$$
(2.23)

Por lo general, los materiales que se irradian no son puros, sino que están compuestos por varios isótopos, sin embargo, por conveniencia sólo uno de ellos será importante para considerarlo en la activación, por lo que hay que tomar en cuenta la abundancia natural, F, de este único isótopo.

También se acostumbra a medir la actividad de un sólo tipo de radiación. Por ejemplo, para el caso en que desee medir sólo la actividad debida a radiación gamma, entonces cada material del blanco seleccionado dará lugar a ciertos rayos gamma específicos, cuya fracción de producción se puede denotar por P_{γ} , en unidades de gammas por desintegración. Entonces, para determinar un flujo de neutrones desconocido se requiere activar una laminilla, de masa y composición conocidas, y contar la actividad en un sistema cuya eficiencia se haya previamente determinado para una geometría dada. Por lo que finalmente se tendrá:

$$\phi = \lambda(C-B)/[F \operatorname{P}_{\gamma} \varepsilon \,\sigma_{ac} \,N \,(\,m/\rho)(1-e^{-\lambda t_i}) \,e^{-\lambda t_e} \,(1-e^{-\lambda t_c})]$$
(2.24)

donde:

(C - B): Número de cuentas netas de la muestra, (B es el conteo de fondo).

- *F*: Abundancia del núcleo blanco en %.
- P_{γ} : Fracción de producción de rayos gamma específicos (γ /des).
- ε : Eficiencia del detector para los rayos gamma específicos de energía E, en cuentas/ γ .
- t_i : tiempo de irradiación t_1 .
- t_e : tiempo de espera $t_1 + t_2$.
- t_c : tiempo de conteo $t_3 t_2$.

Finalmente se consideran los factores de autoblindaje por flujo rápido para energías térmicas en laminillas de Cd que se utilizan para el corte del cadmio F_{Cd} , y el factor de corrección por flujo térmico F_P , resultando las siguientes expresiones

$$\phi_{sub} = \lambda F_p(C-B)[1-F_{Cd}] / \left[F \operatorname{P}_{\gamma} \varepsilon \,\sigma_{ac} \,N \,\frac{m}{\rho} (1-e^{-\lambda t_i}) \,e^{-\lambda t_e} \left(1-e^{-\lambda t_c}\right) \right]$$
(2.25)

$$\phi_{epi} = \lambda F_p F_{Cd} (C - B) / \left[F P_{\gamma} \varepsilon \sigma_{ac} N \frac{m}{\rho} (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_e} (1 - e^{-\lambda t_c}) \right]$$
(2.24)

3. METODOLOGÍA

Para alcanzar los objetivos planteados, se procede de la siguiente manera.

- a) En la balanza analítica se pesan las laminillas de Indio y se registran los valores. (ver Figura 3.1)
- b) Se genera un arreglo de laminillas y se identifica con etiquetas (desnudas y cubiertas con cadmio), (ver Figura 3.2).
- c) En un bastidor, se monta el arreglo de laminillas e introduce en el reactor, repitiendo este proceso para cada una de las direcciones donde se proyecta colocar laminillas (ver Figura 3.3).
- d) Se extrae la fuente de neutrones de PuBe del Howitzer y se introduce en el centro del núcleo del reactor subcrítico (Ver Figura 3.4), en este momento se registra la hora de inicio de la irradiación.
- e) Después de un tiempo determinado de irradiación, se extrae la fuente de neutrones del centro del núcleo del reactor subcrítico y se introduce en el Howitzer, en este momento se registra la hora de fin de la irradiación.
- f) Se enciende el sistema de conteo, tomando en cuenta que la estabilidad electrónica del equipo se suele alcanzar después de unos 10 minutos de calentamiento. (ver Figura 3.5)
- g) Con las fuentes calibradas de rayos gamma de cobalto y cesio, se calibra el espectrómetro en energía.
- h) Obtener y registrar las eficiencias del sistema de conteo para cada una de las energías de los fotópicos de interés.
- i) Para cuando empiece la medición, las laminillas de Indio ya se habrán irradiado.
- j) Extraer los bastidores del núcleo del subcrítico y desarmar los arreglos para separar los porta-laminillas etiquetados.
- k) Comenzar el conteo en el multicanal y registrar la integral bajo la curva de la región de interés determinada para el ^{116m}In, repetir este paso para cada laminilla.
- 1) Registrar en cada medición los tiempos involucrados (irradiación, espera y conteo).
- m) Cuidar que cada medición vaya acompañada de una medición del fondo.
- n) Realizar un archivo de entrada en un formato especifico que contempla los registros que se realizan en el procedimiento.
- o) Ejecutar el programa que se tiene en el LRN-DF y que contiene las ecuaciones desarrolladas en la sección de teoría.
- p) Obtener y analizar los resultados que se obtienen en el archivo de salida.

34 Congreso Anual de la Sociedad Nuclear Mexicana Reactores Modulares Pequeños, una nueva perspectiva para la Energía Nuclear en México La Paz, Baja California Sur, del 27 al 30 de agosto de 2023



Figura 3.1 Pesado de laminillas



Figura 3.3 Introducción del arreglo en el subcrítico



Figura 3.2 Arreglo de laminillas



Figura 3.4 Fuente de neutrones a introducirse en el subcrítico



Figura 3.5 Sistema de análisis multicanal

4. RESULTADOS

El flujo de neutrones del reactor de subcrítico Chicago 9000 obtenidos en el presente trabajo, para energías de neutrones por debajo de ~ 0.5 eV (energía de corte de cadmio, ¹¹³Cd), denominados subcádmicos, y para energías mayores a la descrita denominados epicádmicos, sus errores porcentuales, así como los flujos promedio de neutrones y total, se presentan en la Tabla I.

Las Figuras 4.1 y 4.2 muestran los flujos de neutrones subcádmicos y epicádmicos tomando como referencia en el eje x, cero el centro del núcleo del reactor subcrítico y se desplaza hacia la frontera del núcleo, de lado derecho de las gráficas se muestran los respectivos errores porcentuales. La Figura 4.3 representa el flujo total, con un ajuste polinomial de orden 2.

Tubla il Tiujo de neutrones subcadimeo, epicadimeo y total					
Posición	Flujo Subcádmico	% Error	Flujo Epicádmico	% Error	Flujo Total
[cm]	n/cm ² -seg	Subcádmico	n/cm ² -seg	Epicádmico	n/cm ² -seg
2.54	3.2982E+03	1.4670E+01	2.8687E+03	1.4521E+01	6.17E+03
7.62	3.0082E+03	1.4154E+01	2.5363E+03	1.5666E+01	5.54E+03
12.70	2.5534E+03	1.5045E+01	2.2596E+03	1.6487E+01	4.81E+03
17.78	1.7150E+03	1.8340E+01	2.0386E+03	1.8399E+01	3.75E+03
22.86	1.1344E+03	1.9315E+01	2.0710E+03	1.7010E+01	3.21E+03
27.94	1.0793E+03	1.6858E+01	1.7637E+03	1.1176E+01	2.84E+03
33.02	9.1600E+02	1.6986E+01	7.5869E+02	1.4723E+01	1.67E+03
38.10	3.5576E+02	2.4742E+01	1.2974E+02	5.2288E+01	4.86E+02
Promedio	1.7575E+03		1.8033E+03		3.56E+03

Tabla I. Flujo de neutrones subcádmico, epicádmico y total



Figura 4.1 Flujo subcádmico del reactor subcrítico del IPN

34 Congreso Anual de la Sociedad Nuclear Mexicana Reactores Modulares Pequeños, una nueva perspectiva para la Energía Nuclear en México La Paz, Baja California Sur, del 27 al 30 de agosto de 2023



Figura 4.2 Flujo epicádmico del reactor subcrítico del IPN



Figura 4.3 Flujo total del reactor subcrítico del IPN

Finalmente, en la Figura 4.4 y 4.5, se presentan el flujo extrapolado subcádmico y epicádmico en 3D siendo el centro del núcleo el origen (0, 0).



Figura 4.4 Flujo subcádmico extrapolado en 3D del reactor subcrítico del IPN



Figura 4.5 Flujo epicádmico extrapolado en 3D del reactor subcrítico del IPN

4. CONCLUSIONES

Se determina el flujo de neutrones subcádmico, epicádmico y total del reactor subcrítico del IPN mediante la técnica de activación de laminillas de ¹¹⁵In. A partir de la medición del área bajo la

curva de la región de interés seleccionada en el analizador multicanal para la energía del ^{116m}In y el fondo en la misma región, además de los parámetros involucrados de tiempos de irradiación, espera y conteo, así como de los pesos de cada una de las laminillas, se ejecuta el programa que contiene las ecuaciones planteadas que calcula tanto la actividad neta y los flujos subcádmico, epicádmicos y total.

Los valores que se obtienen muestran que en el centro del reactor subcrítico el flujo es mayor que en la frontera, esto se debe a que la fuente de PuBe está colocada en el tubo central del núcleo y contribuye a incrementar el conteo en esta zona. El comportamiento de flujo subcádmico y epicádmico, muestran inflexiones aproximadamente a la mitad del núcleo, aunque la suma de ambos que relaciona el flujo total se ajusta muy bien a una curva polinomial de grado 2, El factor R-cuadrado que es la medida estadística de qué tan cerca están los datos de la línea de regresión ajustada, nos aporta el valor de 98.4% que nos indica que los datos de respuesta están en torno a su media.

Notamos una relación de aumento en el error porcentual esperado para los flujos subcádmico y epicádmico mayormente en los puntos más alejados del centro debido a que mientras más nos alejamos de la fuente, hay menos neutrones y por tanto menos reacciones de activación que puedan ser detectadas en las laminillas.

En futuros trabajos se puede mejorar la técnica, incrementando el número de laminillas a irradiar y realizar el experimento a diferentes alturas y direcciones del reactor subcrítico, esto permitiría también ofrecer una vista más suave de los flujos en 3D.

REFERENCIAS

- 1. Members of the Staff of Nuclear-Chicago Corporation and Consultants, *Experiments for Nuclear Chicago Model 9000 Experimental Manual*. Nuclear Chicago Corporation. (1959).
- 2. International Atomic Energy Agency, Handbook on Nuclear Activation Cross Section. Technical Report Series No. 156, Viena (1976)
- 3. É.M. Zsolnay, "Determination of Thermal Neutron Flux in the Core of the Reactor", *BME Training Reactor, Exercise BME-01, European Nuclear Experimental Educational Platform* (2020).
- 4. Byung-Gun Park *et al.*, "Measurement of the Neutron Flux Distribution in a Research Reactor by Neutron Activation Analysis", *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry V. 330* pp.501–512, (2021).
- 5. F. Molina *et al.*, "Energy Distribution of the Neutron Flux Measurements at the Chilean Reactor RECH-1 using Multi-foil Neutron Activation and the Expectation Maximization unfolding Algorithm", *Applied Radiation and Isotopes*, V. 129, pp. 28-34, (2017).
- 6. Pho-Shein Young, "Experiments for Nuclear-Chicago Student Training Reactor", *Nuclear-Chicago Corporation, January* (1959).