

## Estimación de los parámetros de flujo neutrónico $f$ y $\Phi_{th}$ a partir de la irradiación de suelos de referencia y monitores de Al-Au

### Estimation of neutron flux parameters $f$ and $\Phi_{th}$ by using both reference soil materials and Al-Au alloy Irradiation

O.A. Sierra, G.A. Parrado, D.L. Alonso, D.C. Herrera, M.L. Peña, A.F. Porras

Servicio Geológico Colombiano, Dirección Asuntos Nucleares, Carrera 50 No. 26-20, Bogotá, D.C., Colombia

Autor para correspondencia: [osierra@sgc.gov.co](mailto:osierra@sgc.gov.co)

#### Resumen

En este trabajo se miden los parámetros de relación de flujo neutrónico térmico a epitérmico ( $f$ ) y flujo neutrónico térmico ( $\Phi_{th}$ ) (asumiendo  $\alpha = 0$ ), para la posición de irradiación (G3-G4) en la periferia del núcleo del Reactor Nuclear de Investigación IAN-R1 del Servicio Geológico Colombiano. Esta medición se realizó a partir de las actividades inducidas por reacciones de captura neutrónica ( $n, \gamma$ ), en 4 réplicas de dos suelos de referencia, las cuales fueron irradiadas en conjunto con monitores de Al-Au. Para los suelos de referencia, se consideraron cuatro reacciones de captura para isótopos de elementos de fracción de masa certificada y con comportamiento  $1/v$  para la variación de la sección eficaz en el rango de energía correspondiente a neutrones térmicos. Se encontró un valor promedio de 33 para el parámetro  $f$ , en las 8 posiciones del contenedor en donde se ubicaron los suelos de referencia (CV = 9%), valor que es comparable con mediciones realizadas en canales de irradiación en la periferia de reactores tipo TRIGA. El flujo neutrónico térmico promedio determinado para las 8 posiciones del contenedor fue de  $1,5 \times 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  (CV = 4 %).

**Palabras clave:** Análisis por Activación Neutrónica Instrumental, Flujo Neutrónico, Espectrometría Gamma, Parámetros de Flujo de Neutrones ( $f, \alpha$ ).

#### Abstract

In this paper, the parameters thermal to epithermal neutron flux ratio ( $f$ ) and thermal neutron flux ( $\Phi_{th}$ ) are estimated (assuming  $\alpha = 0$ ) for the periphery irradiation positions (G3-G4) available at Nuclear Research Reactor IAN-R1 that belongs to the Colombian Geological Survey. This estimation was performed by measuring the induced activity, from neutron capture reactions ( $n, \gamma$ ) in two reference soils, which were irradiated ( $n = 4$ ) together with Al-Au monitors. Four reference capture reactions were considered in soils, which involve isotopes of elements with certified mass fraction and  $1/v$  behavior for cross section variation in the range of thermal neutron energy. An average value of 33 (CV = 9%) for  $f$  was found, considering 8 positions in the irradiation container; this value is comparable with measurements reported for periphery irradiation channels of TRIGA type reactors. The average thermal neutron flux determined for the 8 position of the container resulted in  $1,5 \times 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  (CV = 4 %).

**Keywords:** Instrumental Neutron Activation Analysis, validation, gamma spectrometry, neutron flux parameters ( $f, \alpha$ ).

## 1. INTRODUCCIÓN

El flujo de neutrones en las diferentes posiciones de irradiación de un Reactor Nuclear de Investigación se encuentra caracterizado por 2 parámetros principales. El primero, conocido como  $f$ , se define como la relación entre el flujo neutrónico térmico a epitérmico ( $\phi_{th}/\phi_{epi}$ ); el segundo, se conoce como el parámetro  $\alpha$ , el cual mide la desviación del comportamiento  $1/E$  para los neutrones en la región epitérmica del espectro de neutrones [1, 2]. La determinación de estos 2 parámetros, involucra la calibración del canal de irradiación.

En la literatura se encuentran 3 metodologías básicas para la calibración experimental de los canales de irradiación: 1) el método de relación de cadmio multi-monitor, 2) el método de tres monitores no cubiertos (típicamente  $^{197}\text{Au}$ ,  $^{94,96}\text{Zr}$ ), y 3) el método de multimonitor cubierto con Cd [1, 3-5]. Aunque otras alternativas también han sido exploradas como el uso de un sistema multimonitor de (Au, Cr, Mo) [6]. Cada una de estas metodologías, implica la irradiación de sistemas de múltiples monitores y estrictas rutinas de medición, con el fin de obtener la menor incertidumbre en la estadística de conteo.

La importancia de la calibración de los canales de irradiación reside en que el desarrollo de métodos avanzados de calibración para el Análisis por Activación Neutrónica, como  $K_{0\text{Au}}$ , requiere de la determinación experimental de  $f$  y  $\alpha$ . Por otra parte, el conocimiento de estos parámetros, permite establecer, las posibles aplicaciones que se pueden desarrollar en determinado canal de irradiación (ej. Análisis por Activación Neutrónica Instrumental-INAA, Análisis por Activación Neutrónica con neutrones epitérmicos-ENAA, Huellas de Fisión-FT y Conteo de Neutrones Retardados-DNC, entre otros) [7].

Para el caso del Reactor Nuclear IAN-R1 colombiano, se han realizado experimentos para la determinación del flujo térmico y su distribución axial, mediante el

uso de una sonda auto energizada de Vanadio (*Self Powered Neutron Detector, SPND*), en las posiciones de irradiación *in core*, en los elementos reflectores de grafito y en la posición de irradiación en periferia [8]. El flujo neutrónico máximo determinado en este trabajo, se encontró en los canales *in core*, con un valor cercano a  $7,8 \times 10^{11} \text{ n cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ .

Finalmente, en el presente trabajo se realizó la determinación preliminar de los parámetros  $f$  y  $\Phi_{th}$ , suponiendo, como primera aproximación, un valor de  $\alpha = 0$ . Con esta premisa, es posible realizar el cálculo, mediante la medición de la actividad inducida en suelos de referencia, irradiados en conjunto con monitores de Al-Au, en la posición de irradiación en periferia del IAN-R1.

## 2. DESCRIPCIÓN DEL MÉTODO

### 2.1. Modelo Empleado

Con el fin de relacionar la actividad inducida en los materiales irradiados por reacciones de captura de neutrones, con el principio físico del proceso de Activación Neutrónica, se empleó el modelo matemático descrito en la Ec. 1 [2].

Parámetros nucleares como  $I_0(\alpha)$  y  $\sigma_{th}$  se encuentran disponibles en la literatura [9, 10]. Durante el análisis de los materiales sometidos a irradiación, es posible determinar experimentalmente los valores de  $A$ ,  $t_p$ ,  $t_d$ , mientras que, los valores de  $N_0$  son determinados a partir de las fracciones de masa certificada. Por lo tanto, permanecen como incógnitas los valores de  $f$  y  $\Phi_{th}$ .

$$A = N\lambda = \Phi_{th} \sigma_{eff} N_0 (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} \quad (1)$$

Esta ecuación involucra los parámetros descritos en la Tabla 1.

**Tabla 1. Descripción de los parámetros considerados en la Ecuación 1**

Parámetro	Descripción
$A$	Actividad inducida
$t_i$	Tiempo de irradiación
$t_d$	Tiempo de decaimiento
$\phi_{th}$	Flujo de neutrones térmicos
$\sigma_{eff} = \sigma_{th} \left( 1 + \frac{I_o(\alpha)}{\sigma_{th} * f} \right)$	Sección eficaz efectiva
$\sigma_{th}$	Sección eficaz térmica
$I_o(\alpha)$	Integral de resonancia
$f = \phi_{th} / \phi_{epi}$	Relación de flujo térmico a epitérmico
$N$	Núcleos radiactivos formados
$N_o$	Número de núcleos Target al inicio

Al tener 2 incógnitas, se necesita la medición de la actividad inducida en 2 materiales de contenido en fracción de masa conocido. En este trabajo, se emplearon 8 parejas conformadas por un suelo de referencia (NIST 2709a o NIST 2711a) con un monitor de Al-Au 0,1 % (referencia IRMM 530R).

En el caso de la matriz de suelo, es posible la medición de varios radionúclidos formados por las reacciones de captura de neutrones. En el cálculo se seleccionaron aquellos radionúclidos formados a partir de elementos con fracción en masa certificada y de núclidos con claro comportamiento  $1/v$  para la sección eficaz de captura de neutrones térmicos. De acuerdo con lo anterior la Tabla 2 presenta las reacciones de captura de neutrones consideradas.

**Tabla 2. Reacciones de captura consideradas y datos nucleares usados en las estimaciones [10]**

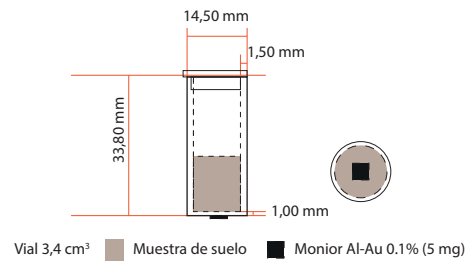
Reacción	$\sigma_{th}$ (b)	$I_o$ (b)
$^{45}\text{Sc} (n, \gamma) ^{46}\text{Sc}$	27,2	12,0
$^{50}\text{Cr} (n, \gamma) ^{51}\text{Cr}$	15,9	7,8
$^{58}\text{Fe} (n, \gamma) ^{59}\text{Fe}$	1,30	1,7
$^{59}\text{Co} (n, \gamma) ^{60}\text{Co}$	37,18	75,9

**2.2. Materiales Irradiados**

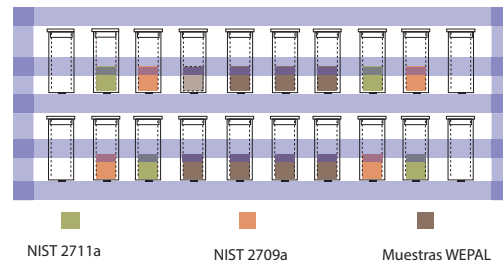
Para este trabajo se tomaron 4 porciones analíticas de un gramo de los suelos de referencia NIST 2711a (Montana

II Soil) y NIST 2709a (San Joaquin Soil). Las muestras fueron acondicionadas en viales de polietileno de 3,4 cm<sup>3</sup>. A cada vial se adhirió aproximadamente 5 mg de monitor de Al-Au 0,1% en forma de lámina (ver Figura 1). Los viales acondicionados con muestra de suelo y monitor, fueron ubicados en la gradilla para su irradiación, acorde a lo mostrado en la Figura 2.

**Figura 1. Acondicionamiento en el vial de los suelos y el monitor**



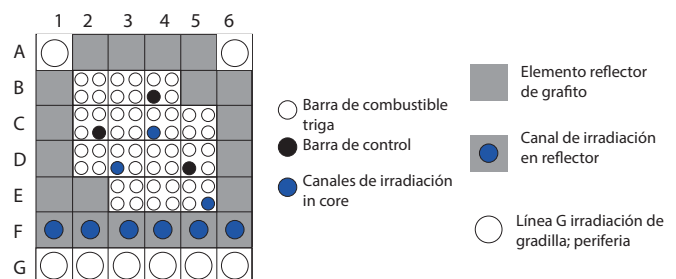
**Figura 2. Ubicación de los viales en el contenedor de gradilla**



**2.3. Irradiación de los Materiales**

La activación de los suelos de referencia y los monitores de flujo se realizó en el Reactor Nuclear de Investigación IAN-R1 (Bogotá, Colombia) en la posición de periferia (G3-G4) (ver Figura 3). Para esta posición se han estimado, en trabajos anteriores, flujos neutrónicos del orden de  $10^{11}$  n cm<sup>-2</sup>s<sup>-1</sup>.

**Figura 3. Diagrama del núcleo del reactor IAN-R1**



## 2.4. Medición de la Actividad Inducida mediante Espectrometría Gamma

Con el fin de determinar la actividad inducida en los suelos de referencia, para radionúclidos de vida media larga, se realizó la medición por espectrometría gamma luego de 3 meses de decaimiento, empleando una geometría de 130,82 mm (distancia fuente-detector). El tiempo de conteo fue de 5 horas. Para estas mediciones se empleó un espectrómetro gamma Canberra® modelo GC 7020, el cual cuenta con el software Genie 2000 (versión 3.3 Canberra®) y analizador digital de señal tipo LYNX.

Por otra parte, los monitores de Al-Au fueron leídos después de 7 días de decaimiento, empleando una geometría de 112,41 mm. El tiempo de conteo empleado fue de 30 minutos y se utilizó, para estas mediciones, un espectrómetro gamma Canberra® modelo GC 3018, con analizador digital de señal tipo LYNX. En este caso la señal de interés corresponde al fotópico de 411,8 keV.

La calibración por eficiencia de los sistemas de espectrometría se realizó, mediante la medición de fuentes puntuales (de actividad certificada CMI *Czech Metrology Institute*), en las geometrías establecidas para la lectura de monitores y suelos de referencia. Las fuentes puntuales de referencia incluyeron los siguientes radionúclidos:  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{133}\text{Ba}$  y  $^{57}\text{Co}$ .

## 3. RESULTADOS Y ANÁLISIS

### 3.1. Uso de la Ecuación 1 para la determinación de $\Phi_{th}$

Como se mencionó en la descripción del modelo, es posible relacionar la actividad inducida en los monitores de Al-Au y en los suelos de referencia con los parámetros  $f$  y  $\Phi_{th}$ , mediante las Ec. 2 y 3.

$$A_{Au} = \Phi_{th} \sigma_{thAu} \left(1 + \frac{I_{oAu}}{\sigma_{thAu} * f}\right) N_{oAu} (1 - e^{-\lambda_{Au} t_i}) e^{-\lambda_{Au} t_d Au} \quad (2)$$

$$A_{Sj} = \Phi_{th} \sigma_{thSj} \left(1 + \frac{I_{oSj}}{\sigma_{thSj} * f}\right) N_{oSj} (1 - e^{-\lambda_j t_i}) e^{-\lambda_j t_d Sj} \quad (3)$$

Donde  $A_{Au}$  es la actividad del  $^{198}\text{Au}$  después de cierto tiempo de decaimiento  $t_{dAu}$  y  $A_{Sj}$  es la actividad del radionúclido  $j$  formado en la irradiación del suelo de

referencia después de un tiempo de decaimiento  $t_{dSj}$ . Resolviendo para el flujo térmico ( $\Phi_{th}$ ), las Ec. 2 y 3, y teniendo en cuenta la definición del parámetro  $f$ , es posible obtener:

$$\Phi_{th} = \frac{\left(\frac{I_{oSj} * A_{Au}}{NDS_{Au}} - \frac{I_{oAu} * A_{Sj}}{NDS_{Sj}}\right)}{(I_{oSj} * \sigma_{thAu} - I_{oAu} * \sigma_{thSj})} \quad (4)$$

Donde  $NDS$  es un factor que incluye, el número de átomos blancos, el factor de saturación, y el factor de decaimiento.

Como para los suelos de referencia se incluyeron 4 reacciones de captura, es posible estimar 4 valores de  $\Phi_{th}$  y  $f$  para cada pareja suelo-monitor.

### 3.2. Actividad determinada en los Suelos de Referencia

Las Figuras 4 y 5 muestran las actividades determinadas para los radionúclidos considerados en los suelos de referencia.

Figura 4. Actividad específica determinada para el suelo NIST SRM 2711a

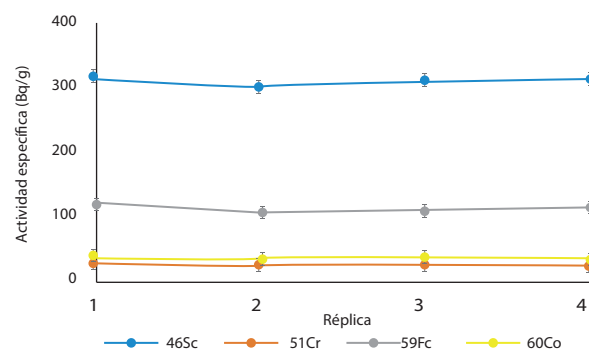
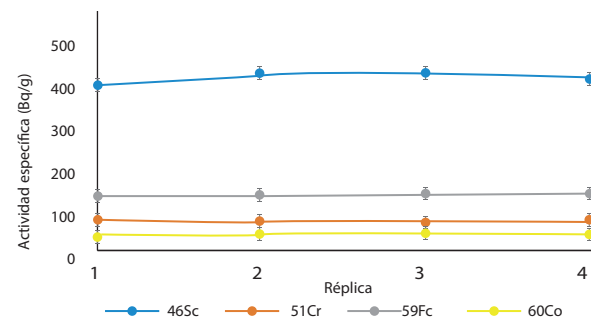


Figura 5. Actividad específica determinada para el suelo NIST SRM 2709a



Para un mismo suelo, se observó baja variación en la actividad específica determinada, tal como se esperaba para un material homogéneo y radionúclidos de vida larga. Dentro de las diferentes réplicas se obtuvieron coeficientes de variación entre el 2 y 10 %, lo que puede ser explicado por la variación en el suelo de la fracción en masa de los elementos considerados, y por la variación espacial del flujo neutrónico dentro del contenedor de irradiación.

3.3. Valores Estimados de  $f$  y  $\Phi_{th}$

La Tabla 3 muestra los valores estimados de  $f$  y  $\Phi_{th}$  para la primera réplica del suelo NIST 2711a-Monitor Al-Au, empleando en cálculo una reacción ( $n, \gamma$ ) diferente.

Tabla 3. Valores estimados para  $f$  y flujo térmico para la primer réplica del suelo Nist 2711a

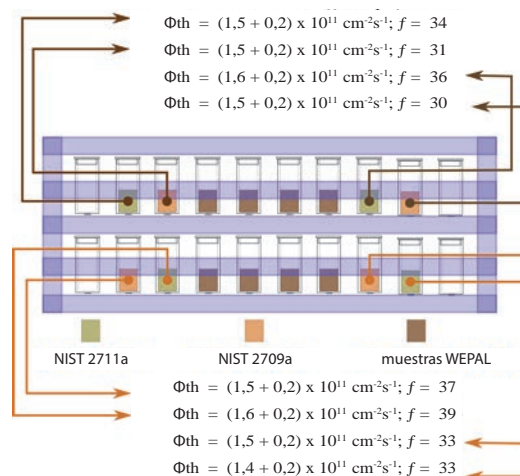
Elemento	Blanco	Producto	$\Phi_{th}$ ( $cm^{-2}s^{-1}$ ) $\pm U$ (k=2)	F
Sc	<sup>45</sup> Sc	<sup>46</sup> Sc	$(1,56 \pm 0,07) \times 10^{11}$	32
Cr	<sup>50</sup> Cr	<sup>51</sup> Cr	$(1,6 \pm 0,4) \times 10^{11}$	34
Fe	<sup>58</sup> Fe	<sup>59</sup> Fe	$(1,7 \pm 0,1) \times 10^{11}$	40
Co	<sup>59</sup> Co	<sup>60</sup> Co	$(1,6 \pm 0,1) \times 10^{11}$	38
		Promedio	$(1,6 \pm 0,2) \times 10^{11}$	36
		CV (%)	3	10

En la Tabla 3, se observa un baja variación para el valor de flujo térmico estimado, causado por el efecto de usar una reacción ( $n, \gamma$ ) diferente (3%). Típicamente, esta variación para el resto de los suelos considerados estuvo entre el 2 y 11 %. Para el caso del parámetro  $f$ , la variación por el cambio de la reacción considerada, resultó entre el 10 y 27% en CV. Con el objetivo de observar la tendencia en los valores de estos parámetros y su variación en el contenedor de irradiación, se reporta para cada posición del contenedor, el promedio de los parámetros estimados a partir de 3 reacciones de captura consideradas, ya que como muestra la tabla 3 el valor estimado a partir de la reacción del <sup>50</sup>Cr, presenta una alta incertidumbre, debido a gran variación de este elemento en el suelo de referencia.

La Figura 6 muestra los valores promedio de  $f$  y  $\Phi_{th}$  para las 8 posiciones del contenedor de irradiación. Según estos resultados, se puede plantear que el promedio de flujo térmico para la posición de irradiación en periferia (G3-G4 figura 3) es de  $1,5 \times 10^{11} n cm^{-2}s^{-1}$  (CV 4 %). De

manera similar en promedio  $f$  tendría un valor de 33 (CV = 9 %). Como se mencionó anteriormente, Sarta y colaboradores [8], informaron para las posiciones C4 y D4 un máximo de flujo de  $7,8 \times 10^{11} n cm^{-2}s^{-1}$ , mientras que mediciones recientes realizadas por Sandoval y colaboradores, usando la misma metodología de Sarta, encontraron para la posición G3-G4, valores de  $2,5 \times 10^{11} n cm^{-2}s^{-1}$ . Si bien existe una diferencia entre los valores de flujo neutrónico térmico estimados en el presente trabajo y lo reportado mediante medición directa con sonda de Vanadio SPND, hay que tener en consideración que, las variaciones pueden producirse como consecuencia de diferencias en los procedimientos de calibración empleados en cada metodología, y las suposiciones de partida de cada modelo de medición.

Figura 6. Valores promedio de  $f$  y  $\Phi_{th}$  estimados en las posiciones del contenedor tipo gradilla



Los resultados anteriores incentivan la realización de experimentos rigurosos para la calibración de los canales de irradiación del IAN-R1 mediante el uso de metodologías estándar [1, 11], indicando que los resultados obtenidos en este trabajo pueden usarse como orientadores de los posibles valores a obtenerse en experimentos elaborados de calibración de canales de irradiación.

Finalmente, comparando los valores estimados de  $\Phi_{th}$  y de  $f$  en el presente trabajo, con los requerimientos para el desarrollo de la técnica de Análisis por Activación Neutrónica en el canal de irradiación de periferia del IAN-R1 [7], es posible argumentar que este canal, es adecuado para el desarrollo de INAA, aunque debe propenderse por migrar a un canal que proporcione un

flujo térmico más alto, con el fin de obtener una mejor sensibilidad en el análisis de elementos traza. En cuanto al valor de  $f$ , se debe mantener un valor mínimo de 10, para favorecer la activación por la captura de neutrones térmicos. Según lo anterior, si en G3-G4 se tiene un valor de 33 se puede suponer que en la fila F se alcance un valor mayor a 10 y se pueda desarrollar INAA en estos canales.

## 4. CONCLUSIONES

En este trabajo se presentó una primera aproximación hacia la determinación de los parámetros de flujo de neutrones térmico ( $\Phi_{th}$ ) y relación de flujo térmico a epitérmico ( $f$ ), para la posición de irradiación en la periferia del núcleo del reactor IAN-R1. Se encontró un flujo de neutrones térmico del orden de  $1,5 \times 10^{11}$  n  $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ , lo que sitúa a este canal de irradiación, en el requerimiento mínimo para el desarrollo de la activación neutrónica instrumental (INAA). El valor del parámetro  $f$  se estimó en 33, lo que indica que en esta posición se presenta una buena termalización de los neutrones. Esto último plantea la posibilidad de que las posiciones de irradiación de los reflectores de grafito se constituyan en el mejor canal para el desarrollo de INAA.

## AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen al grupo del Reactor Nuclear IAN-R1 por el posicionamiento de gradillas e irradiación de muestras; al Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA) por la asesoría y acompañamiento en la formación del personal del laboratorio y finalmente, a los revisores internos y externos, por sus aportes en la obtención de un mejor documento.

## REFERENCIAS

- [1] F. de Corte and A. Simonits, U. Gent, Ed. *Vademecum for k0 Users, Addendum to the Kayzero /Solcoi Report*, R94/11492 ed. Geleen, Belgium: DMS Research 1994, p. 50.
- [2] R. R. Greenberg, P. Bode, and E. A. De Nadai Fernandes, "Neutron activation analysis: A primary method of measurement," *Spectrochimica Acta - Part B Atomic Spectroscopy*, Article vol. 66, no. 3-4, pp. 193-241, 2011.
- [3] M. A. eB.C. Menezes, A. S. Leal, S. P. de Meireles, and R. Jacimovic, "Neutron flux parameters in the Triga Mark I IPR-R1 research reactor, CDTN/CNEN, for -INAA method," in *INAC 2013: International nuclear atlantic conference*, Brazil, 2013.
- [4] K. Embarch, H. Bounouira, M. Bounnakhla, B. Nacir, and R. Jacimovic, "Characterization of typical irradiation channels of CNESTEN's TRIGA MARK II reactor (Rabat, Morocco) using NAA k0-Method," in *6 African conference on research reactor utilization and safety*, Nigeria, 2010.
- [5] I. A. Alnour *et al.*, "Determination of neutron flux parameters in PUSPATI TRIGA Mark II Research Reactor, Malaysia," *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, vol. 296, no. 3, pp. 1231-1237, 2013.
- [6] M. J. J. Koster-Ammerlaan, M. A. Bacchi, P. Bode, and E. A. De Nadai Fernandes, "A new monitor for routine thermal and epithermal neutron fluence rate monitoring in k0 INAA," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 66, no. 12, pp. 1964-1969, 2008.
- [7] IAEA, *Applications of Research Reactors*, Nuclear Energy Series No. NP-T-5.3, 2014.
- [8] J. A. Sarta Fuentes and L. A. Castiblanco Bohórquez, "Neutron flux measurement and thermal power calibration of the IAN-R1 TRIGA reactor," *Proceedings of the 4. World TRIGA Users Conference*, France 2008.
- [9] International Atomic Energy Agency, "Practical Aspects of Operating a Neutron Activation Analysis Laboratory (IAEA-TECDOC). International Atomic Energy Agency," 1990.
- [10] S. Mughabghab, "Thermal neutron capture cross sections resonance integrals and g-factors", Brookhaven National Laboratory INDC-440, 2003.
- [11] ASTM, "Standard Test Method for Determining Thermal Neutron Reaction Rates and Thermal Neutron Fluence Rates by Radioactivation Techniques", ASTM E262-13, 2013.