

# MÉTODO SEMIABSOLUTO DE MEDICIÓN DE SECCIONES MACROSCÓPICAS DE ABSORCIÓN DE NEUTRONES TÉRMICOS EMPLEANDO FUENTES ESTACIONARIAS

Y. Borrego, E. Herrera, L. García-Parra y O. Díaz

Instituto Superior de Ciencias y Tecnología Nucleares, La Habana, Cuba

## RESUMEN

En el presente trabajo se expone un método semi-absoluto para obtener la sección macroscópica de absorción de neutrones térmicos dada una muestra de un material desconocido. Otros parámetros, no menos importante, pueden ser igualmente obtenidos. Tres factores fundamentales y necesarios se combinan en estas mediciones: facilidades experimentales existente, sencillez a la hora de ejecutar los procedimientos de medición y uso de cantidades mínimas de material. Se someten a consideración los resultados obtenidos, aplicando la metodología novedosa para un prisma de grafito que contiene una fuente de Pu-Be cuya intensidad es de  $10^7$  n/s, efectuando las mediciones en muestras de agua ligera envenenada con ácido bórico (~150c.c) y utilizando un detector gaseoso de  $\text{BF}_3$ .

## ABSTRACT

A semi-absolute method to measure the macroscopic absorption cross-section for thermal neutrons using a sample of an unknown material is exposed on present work. Other parameters, less important no, can be equally obtained. Three fundamental and necessary factors combine in this technique: available experimental facilities, simplicity executing the measure procedures and demanding minimum quantities of bulk material. Measurements of light water poisoned with boric acid samples (~150c.c), placed deep in a graphite pile are performed. We have used a Pu-Be neutron source which strength is  $10^7$  n/s and a  $\text{BF}_3$  gassy detector. Results applying the novel methodology will be discussed here.

## INTRODUCCIÓN

Para la geofísica nuclear son de gran interés los macroparámetros que caracterizan el movimiento y la interacción de los neutrones térmicos con la sustancia, en especial, la sección macroscópica de absorción de neutrones térmicos  $\Sigma_a$ , ya sea de las rocas matrices, esquistos o de los fluidos constituyentes. El conocimiento de la misma puede mejorar significativamente la correcta interpretación de cualquier registro litológico. Los valores de  $\Sigma_a$  en diferentes rocas y salmueras son factores importantes en el análisis cuantitativo del tiempo de sondeo neutrónico. Las curvas de calibración confeccionadas a partir de datos sobre la porosidad neutrónica, basadas en la detección de neutrones térmicos dependen de la sección macroscópica de absorción de las rocas, entre otros factores [1-5]. En la caracterización de yacimientos petrolíferos con generadores neutrónicos de pozo es indispensable contar con datos de la  $\Sigma_a$  de las rocas matrices.

La razón que obliga a medir solo mediante vías directas el valor de  $\Sigma_a$  en rocas matrices, es la presencia de elementos de trazas (minoritarios) altamente absorbentes en el material, cuya composición química exacta resulta bastante difícil conocer. Para que se tenga una idea: la variación en el contenido

de tierras raras o boro a niveles de unos pocos ppm (casi indetectable) dentro de la roca, puede contribuir de manera nada despreciable (por encima de un 50%) en el valor de la sección de absorción [1,4]. De manera general, se puede afirmar que la medición experimental de  $\Sigma_a$  es un procedimiento difícil porque presenta ciertos inconvenientes a los cuales no siempre pueden dárseles soluciones adecuadas. Por su parte, los experimentos que se realizan empleando fuentes radioisotópicas de neutrones, a pesar de las consabidas ventajas desde el punto de vista de la simplicidad experimental, tienen ciertos inconvenientes si se quiere establecer de alguna manera una sistemática y unicidad en la metodología a desarrollar.

El primero de los problemas se refiere a que en todos los experimentos para la medición de  $\Sigma_a$ , cuyos neutrones empleados provienen de una, o un conjunto de fuentes estacionarias; la variación de la respuesta del detector, colocado a cierta distancia de una muestra, está asociada tanto a efectos dispersivos como a las absorciones de los neutrones por la propia muestra en estudio. Las ecuaciones de la teoría del transporte para estos casos solo establecen de forma directa una relación de los flujos neutrónicos con las geometría de la instalación y un parámetro conocido como: longitud de difusión de los neutrones  $L$ , el cual tiene de manera

intrínseca una dependencia de  $\Sigma_a$  y a  $\Sigma_s$ . La búsqueda de configuraciones de medición adecuadas para tratar de minimizar o eliminar los efectos dispersivos, ya sea de manera teórica como a través de calibraciones es un problema real cuya solución dependerá de las posibilidades concretas a disponer en la instalación, o de la habilidad del experimentador. Una forma muy elegante e ingeniosa, basada en el principio del LPOM [6] resuelve esta dificultad y fue propuesta para el caso de una medición de  $\Sigma_a$  con una fuente neutrónica de  $^{252}\text{Cf}$  y utilizando un detector diferencial de  $\text{BF}_3$ . [7]

El segundo inconveniente radica en las características propias de los materiales, cuyo rango de valores de  $\Sigma_a$  es muy bajo en comparación con la sección de dispersión  $\Sigma_s$ . Para las rocas matrices, la sección macroscópica de absorción varía entre 4 y 25 unidades de captura ( $1 \text{ c.u.} = 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ ) y es siempre menor que el valor de  $\Sigma_s$  entre 3 y 100 veces. [1].

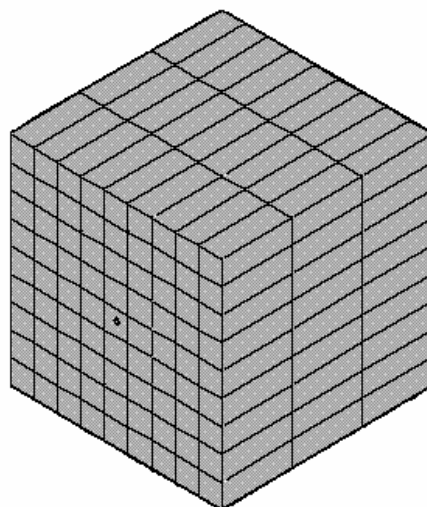
El tercero y último es la imposibilidad de cambiar el tamaño de la muestra geológica manteniendo constante su densidad total (esto puede efectuarse solo en circunstancias muy particulares). Además, la cantidad disponible de material de roca es usualmente bastante limitada (del orden de pocos kilogramos) y la forma de la muestra puede ser regular solo cuando la roca es triturada y puesta en algún contenedor. [1]

Varios métodos han sido desarrollados, bajo el supuesto de obtener una curva de calibración, a partir de un conjunto de muestras de rocas estandarizadas cuyos valores  $\Sigma_a$  son ya conocidos. [8,9]. Ellos tienen su basamento en el hecho de que para cierta instalación existe una configuración fuente-muestra-detector con buena geometría donde se pueden minimizar el efecto que producen las dispersiones de los neutrones térmicos en la muestra. [10]

Nuestro trabajo está basado en el uso de las técnicas de envenenamiento, las cuales son empleadas indistintamente en muchos de estos experimentos. A diferencia, aquí será el soporte que permite establecer una dependencia lineal de la variación de la longitud de difusión de una muestra dada, cuando a ella se le adicionan pequeñas cantidades bien determinadas de un material absorbente de los neutrones cuya  $\Sigma_a$  es bien conocida [11, 12]. La muestra a estudiar está rodeada de un medio moderador cuya función es mantener confinado en un volumen del espacio el campo neutrónico provocado por una fuente puntual. De forma teórica y sin necesidad de una curva previa de calibración cuyo carácter casi siempre es empírico, se puede obtener el valor de la  $\Sigma_a$  de la muestra en estudio, entre otros parámetros.

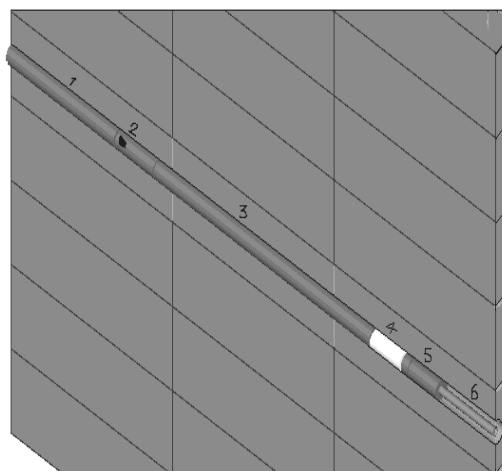
## MATERIALES Y MÉTODOS

La metodología se ha desarrollado para una instalación experimental donde es posible confinar un campo neutrónico en un régimen estacionario y en alguna zona del mismo existe una cantidad apreciable de neutrones bien termalizados. En nuestro caso se trata de un clásico Prisma de Grafito. Este dispositivo está compuesto por bloques monolíticos de grafito de alta pureza o de reactor ( $\rho = 1.674 \text{ g/cm}^3$ ). Ellos se disponen de tal manera que conforman un cubo perfecto de 180 cm de arista como se aprecia en la Figura 1. El prisma dispone de



**Figura 1.** Esquema a escala del prisma que muestra la disposición de los bloques de grafito.

un canal central horizontal cuyo diámetro es de 43 mm para la introducción de la fuente, piezas cilíndricas de grafito, la muestra (120 ml) y el detector (ver Figura 2).



**Figura 2.** Disposición relativa de la fuente, la muestra y el detector para un experimento en el interior del prisma:  
 1,3,5. Cilindros o tacos de grafito,  
 2. Porta fuente (El punto negro representa la fuente de Pu-Be);  
 4. Pomo con agua;  
 6. Detector de  $\text{BF}_3$ .

El cálculo teórico de la distribución de flujo neutrónico a lo largo del canal central, suponiendo que el prisma es lo suficientemente grande y el moderador elegido, en este caso grafito, permiten garantizar el establecimiento de un equilibrio térmico de los neutrones provenientes de la fuente con los átomos del medio; conduce a la solución de la ecuación de transporte neutrónico siguiente [11]:

$$\bar{D}(\nabla^2 \Phi(r)) - \bar{\Sigma}_a \cdot \Phi(r) + Q\delta(r - r_0) = 0 \quad (1)$$

donde se define la longitud de difusión de los neutrones dentro de un material como:

$$L = \sqrt{\bar{D}/\bar{\Sigma}_a} \quad (2)$$

Esta es la conocida aproximación  $P_1$  de la difusión de neutrones térmicos, considerando una fuente puntual situada en la posición  $r_0$ . Los autovalores de la ecuación (1) serán siempre dependientes de  $L$  y determinarán la forma de la función  $\Phi(r)$  en el sistema de coordenadas seleccionado para resolver el problema, lo cual había sido comentado ya en el inicio. Debemos aclarar que para el caso de un medio moderador débilmente absorbente ( $\Sigma_a \ll \Sigma_s$ ) es correcto definir los parámetros de la difusión a través del promedio sobre el espectro energético de equilibrio (maxwelliano). Esto es que el coeficiente de difusión  $D$  y la sección macroscópica de absorción  $\Sigma_a$  se pueden escribir como: [11]

$$\bar{D} = \int_0^{\infty} \left( \frac{E}{kT} \right) \frac{1}{3[\Sigma_{tr}(E) + \Sigma_a(E)]} e^{-E/kT} \frac{dE}{kT},$$

$$\bar{\Sigma}_a = \int_0^{\infty} \left( \frac{E}{kT} \right) \Sigma_a(E) e^{-E/kT} \frac{dE}{kT} \quad (3)$$

Ahora bien, constituye un hecho experimental que si se ha establecido un campo neutrónico, caracterizado por un flujo  $\Phi(r)$ , mediante una fuente isotópica en el interior de un moderador; al sustituir una pequeña porción del mismo por un material diferente; se producirán variaciones apreciables en el flujo neutrónico estacionario y ellas se pueden registrar colocando un detector detrás de la muestra.

La solución a este problema se obtiene aplicando la teoría de perturbaciones a la ecuación de la difusión (1) y teniendo en cuenta los cambios que aparecerán en la definición de las regiones interiores.

Es conocido además, que se establece una proporcionalidad directa entre la velocidad de conteos del detector y el flujo de neutrones térmicos en una posición determinada. Si esto es así, es posible encontrar una expresión para la longitud de difusión  $L'$  de la muestra desconocida. A la misma se arriba como resultado de escribir el flujo neutrónico a través una serie del tipo:

$$\Phi'(r) = \Phi^{(0)}(r) + \delta\Phi(r) + \delta^{(2)}\Phi(r) + \dots + \delta^{(n)}\Phi(r) \quad (4)$$

cuyos términos se pueden relacionar por una fórmula recurrente. [13]. El primer sumando de la serie  $\Phi^{(0)}(r)$  no es otro que el flujo neutrónico no perturbado inicial  $\Phi(r)$ .

Un resultado relativamente simple se obtiene para el caso de una geometría cartesiana; pues cuando se exige la convergencia de la serie (4) se llega a una expresión muy sencilla, que se constituye en una de las fórmulas de trabajo:

$$\frac{1}{L'^2} = \frac{1}{L^2} \left( 1 - \frac{Z' - Z_0}{F_1 \cdot Z'} \right), \quad (5)$$

donde:  $L$  es la longitud de difusión del moderador (grafito en nuestro caso),

$Z_0$  la velocidad de conteo medida cuando no se ha introducido la muestra (medición de calibración),

$Z'$  la velocidad de conteo después de introducirla y colocado el detector en la misma posición de la medición anterior y

$F_1$  un parámetro geométrico adimensional, independiente del tipo de material y que se puede expresar de forma analítica para este caso. [13]

La expresión (5) es aún insuficiente para calcular el valor del parámetro  $\Sigma_a$  de la muestra. Para separar en la respuesta del detector las contribuciones de las absorciones y dispersiones de los neutrones acudimos a un envenenamiento gradual de la misma. Emplearemos para ello un elemento fuertemente absorbente (Boro) y en cantidades mínimas lo que garantiza evitar distorsiones significativas en el espectro energético de equilibrio (heating effect). Dichas consideraciones conducen a la siguiente expresión lineal:

$$\frac{1}{L'^2} = \frac{1}{D^*} \cdot \Sigma_a(\text{H}_3\text{BO}_3) + \frac{1}{L_c^2} \quad (6)$$

Aquí  $L'$  es la longitud de difusión de la mezcla ( $\text{H}_3\text{BO}_3$  + sustancia inicial);  $\Sigma_a(\text{H}_3\text{BO}_3)$  es la sección macroscópica de absorción del ácido bórico para neutrones térmicos presente en la muestra, promediada sobre el espectro de Maxwell;  $L_c$  es la longitud de difusión de la muestra original y  $D^*$  es un coeficiente de difusión característico donde se ha reflejado el hecho de que nuestro detector no está situado dentro de la propia muestra envenenada. Los experimentos de comprobación realizados con disoluciones de ácido bórico en agua deben conducir a:

$$\frac{1}{L_D^2} = \frac{1}{(D_G - D_W)} \cdot \Sigma_a(\text{H}_3\text{BO}_3) + \frac{1}{L_W^2} \quad (7)$$

$$\overline{\Sigma_a(\text{H}_2\text{O})} = \frac{\overline{D_W}}{L_W^2}, \quad (8)$$

donde las magnitudes con subíndice (w) se refieren al agua pura o muestra inicial, con subíndice (D) a la solución y (G) al grafito. [13]

Los valores de secciones macroscópicas para el ácido bórico presente en la disolución fueron calculados a partir de los datos nucleares de secciones microscópicas  $\sigma_a$  de las bibliotecas ENDF [14] y JENDL [15] y utilizando el programa INTER [16,17]. Los valores finales de  $\sigma_a$  para los elementos químicos naturales y promediados sobre un espectro maxwelliano se calcularon con el programa Intermix [18].

## RESULTADOS

Para la comprobación de la metodología descrita se realizó un experimento con una muestra de agua (120ml), una fuente isotópica de neutrones Pu-Be y un detector proporcional de BF<sub>3</sub> cuya disposición se refleja en la Figuras 2 y 3.

La fuente isotópica de Pu-Be utilizada tiene una potencia de  $(1.6 \pm 0.7) \cdot 10^7$  n/s y es de forma cilíndrica ( $\varnothing = 17.8$  mm, L = 22.0 mm). Ella se coloca dentro de un contenedor de grafito como muestra la Figura 3.

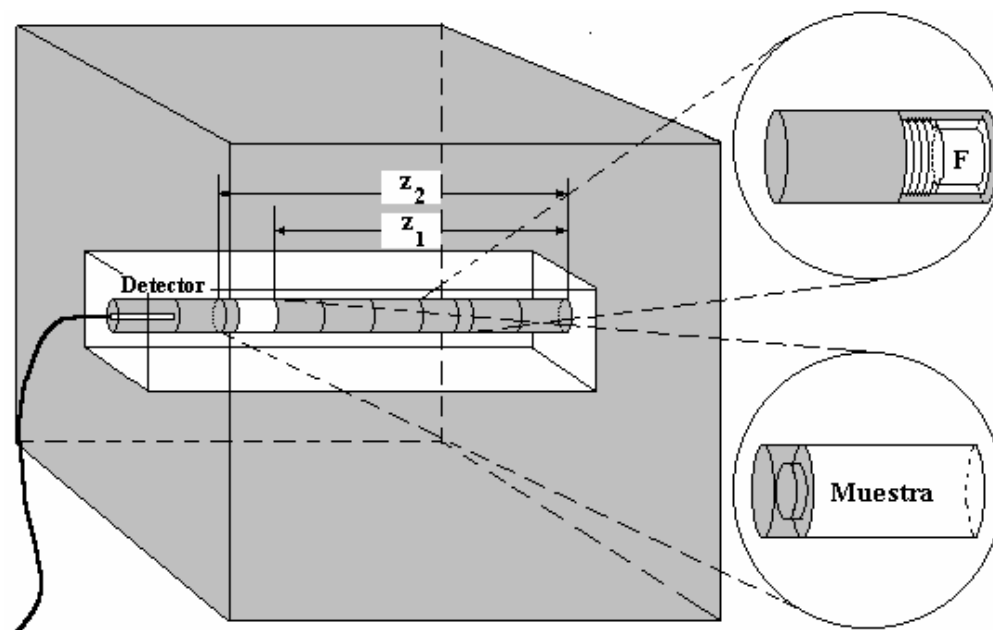
El sistema de conteo neutrónico utilizado consta de un detector proporcional gaseoso de BF<sub>3</sub>, modelo SNM-12 (fabricación soviética) cuyas dimensiones son las siguientes: 170 mm de longitud efectiva y 7 mm de diámetro exterior. El contador está conectado por medio de un cable coaxial de 10 m de longitud a un pre-amplificador CANBERRA modelo 2005. Después de 20 m de cable soterrado, el sistema de detección se conecta a un rack CANBERRA modelo PS 12/1 que contiene a la fuente de alimentación modelo 3106 B y un amplificador espectrométrico de investigaciones

modelo 2020. La parte final del sistema de medición se completa con un rack EUROCAR donde se ha dispuesto un analizador monocal TSCA 301 y un scaler-timer 401. Las mediciones se realizaron para un voltaje de trabajo del detector de 536 V.

Un mapeo para la búsqueda de una posición óptima de irradiación, esto es que se garantiza un flujo bien termalizado donde son válidas las aproximaciones propuestas, fue realizado a priori. La Figura 4 presenta los resultados del estudio. Se observa, que para ciertas configuraciones, el valor calculado de la longitud de difusión para una muestra de agua se mantiene más o menos constante, al colocar el detector en diferentes posiciones detrás del contenedor, lo que fue predicho por la ecuación (4). Una vez elegida la posición óptima se realizaron las mediciones del flujo neutrónico colocando diferentes muestras de agua débilmente envenenadas con ácido bórico (0.3 % - 1 %), la Tabla 1 presenta los datos de las muestras utilizadas.

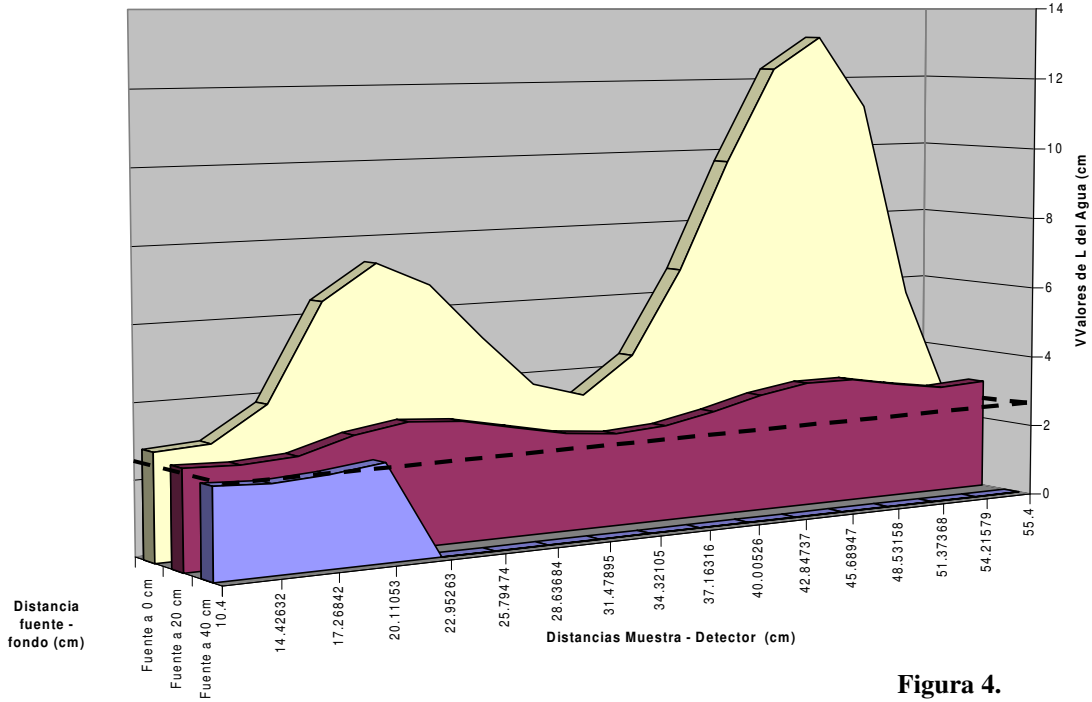
**Tabla 1.** Secciones macroscópicas de absorción promediadas para el ácido bórico añadido a la muestra. Fueron calculadas teniendo en cuenta las secciones microscópicas de los elementos y las densidades de las disoluciones.

Disolución	$\rho_{Dis.}$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\Sigma_a$ (ENDF)	$\Sigma_a$ (JENDL)
H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> – 0,30590 %	0.99380	0.0198615	0.0198496
H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> – 0,50222 %	0.99558	0.0326669	0.0326470
H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> – 0,70013 %	0.99981	0.0457337	0.0457056
H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> – 1,00573 %	0.99630	0.0654646	0.0654251



**Figura 3.** Esquema de las distancias geométricas necesarias y detalle de los contenedores para la fuente y la muestra.

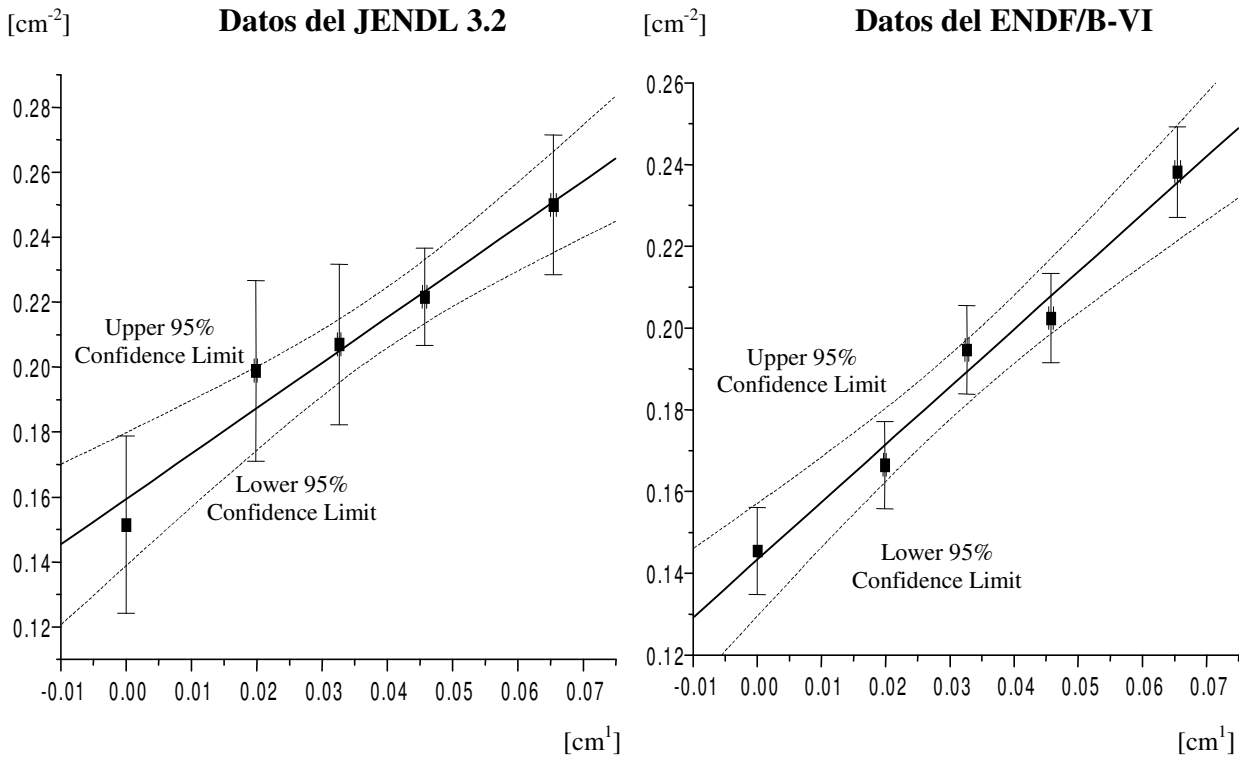
Distribución de los valores de la L del Agua con una distancia F- M de 80 cm en el prisma de grafito



**Figura 4.**

Variación de la Longitud de Difusión de la Muestra de Agua medida para diferentes geometrías.

Los resultados experimentales aparecen en la Figura 5. Los ajustes lineales según la ecuación (5) tienen una buena correlación (99 %) y los errores de la pendiente y el intercepto fueron del 7.9 % y el 3 % respectivamente.



**Figura 5.** Dependencia de la Longitud de Difusión de la muestra ( $1/L^2$ ) con la sección macroscópica de absorción del ácido bórico  $\Sigma_a(\text{H}_3\text{BO}_3)$ .

La Tabla 2 presenta los resultados finales para los valores calculados de longitud de difusión y sección macroscópica de absorción de neutrones térmicos. Aquí se han comparado con el valor medio de una serie de puntos experimentales obtenidos por otros autores, los cuales fueron sometidos a un proceso de depuración estadística. También se realizó un análisis de control estadístico de los valores obtenidos por nosotros con vistas a reconocer la calidad de los mismos. [13, 19].

**Tabla 2.** Mediciones de  $L$  y  $\bar{\Sigma}_a$  para el Agua Ligera.

	Este trabajo	Reportes
Longitud de difusión	$(2.64 \pm 0.08)$ cm	$(2.76 \pm 0.06)$ cm
Sección macroscópica de absorción de neutrones	$(2.1 \pm 0,2)$ $\times 10^{-2}$ cm <sup>-1</sup>	$(1,93 \pm 0,03)$ $\times 10^{-2}$ cm <sup>-1</sup>

## CONCLUSIONES

En el trabajo se muestra una metodología cuyos resultados son de interés e indican posibilidades reales de realizar mediciones exitosas de secciones macroscópicas de absorción de neutrones térmicos a partir del empleo de fuentes isotópicas estacionarias usando el modelo propuesto. La sencillez de los procedimientos y su justificación teórica permiten extenderlo a la medición de los macroparámetros neutrónicos en otros materiales. El hecho de prescindir del uso de muestras estandarizadas o certificadas previamente, para obtener una curva de calibración experimental es una ventaja que reduce los costos del experimento. Se debe tener en consideración, que la implementación en otro tipo de muestras ej.: rocas matrices, requiere un análisis adicional en cuanto a la optimización de los procedimientos de envenenamiento. Algunos trabajos de medición de secciones macroscópicas en rocas matrices ya han hecho referencia a lo anterior [20]. El empleo de las técnicas de simulación por Montecarlo, pudiera ayudar en posteriores refinamientos de la metodología sometida a consideración.

## REFERENCIAS

- [1] CZUBEK, J.A. (1985): **Measurement of Macroscopic Neutron Absorption Cross Section and Others Macroparameters of Rocks**, Raport No 1281/AP. Institute of Nuclear Physics, Kraków, Poland.
- [2] \_\_\_\_\_ (1990): "Rocks Neutron Macroparameters", **Acta Geophysica Polonica**, XXXVIII(4).
- [3] \_\_\_\_\_ (1990): **Int. J. Appl. Radiat. Instrum. Part E. Nucl. Geophys**, 4(3), 293-304.
- [4] \_\_\_\_\_ **et al.** (1996): **Progress in Nuclear Energy**, 30(3), 295-303.
- [5] KREFT, A.; A. BOLEWSKI Jr. and M. CIECHANOWSKI (1989): **Int. J. Appl. Radiat. Instrum. Part E. Nucl. Geophys**. 3(4), 367-372,
- [6] HOOVER, J.I. **et al.** (1948): **Physical Review** 74(8), 864-869.
- [7] KREFT, A.; A. BOLEWSKI Jr., M. CIECHANOWSKI and K. MORSTIN (1989): **Int. J. Appl. Radiat. Instrum. Part E. Nucl. Geophys**. 3(4), 361-366.
- [8] ANDERSEN, E. and G. LOVHOLDEN (1988): **J. Phys. D: Appl. Phys.**, 21, 1550-1555.
- [9] SOOD, A.; R.P. GARDNER and T.K. GRAY (2000): **Appl. Radiat. Isot.**, 53, 603-616.
- [10] TITTLE, C.W. and G.C. CRAWFORD (1984): **SPWLA, 24 Annual Logging Symposium**, Paper I.
- [11] BECKURTS, K.H. and K. WITRZ (1964): "Neutron Physics", **Kernforschungszentrum Karlsruhe**. By Springer-Verlag OHG. Berlin. Göttingen. Heidelberg. New York.
- [12] KASH, S.W. and D.C. WOOD (1953): **Physical Review** 90, 564.
- [13] BORREGO MOREJÓN, Y. (2000): **Tesis de Diploma**, ISCTN, La Habana, Cuba.
- [14] ENDF /B-VI (1999): **The U.S. Evaluated Nuclear Data Library for Nuclear Reaction Data**. By the U.S. National Nuclear Data Center – 1990 including revisions up to Aug. 1999.

- [15] JENDL 3.2 (1994): **The Japanese Evaluated Nuclear Data Library**, By the JAERI Nuclear Data Center. Second revision, Aug.
- [16] DERMONT CULLEN, E. (1998): "The 1998 ENDF Pre-processing Codes". University of California, Lawrence Livermore National Laboratory, USA.
- [17] DUNFORD, C.L. (1998, April 10): "ENDF utility Codes Release 6.111".
- [18] LÓPEZ-ALDAMA, D. (2000): **Program Intermix.exe**, ISCTN, La Habana, Cuba. Comunicación privada.
- [19] HERRERA PERAZA, E. (1995): Tesis de Doctorado. ISCTN, La Habana, CUBA.
- [20] CZUBEK, J.A. **et al.** (1986): **Methodology of preparation of rock samples for measurement of the thermal neutron macroscopic absorption cross-section**, Raport No 1320/AP. Institute of Nuclear Physics, Kraków, Poland.