

“EL ESPECTRO TÉRMICO DEL REACTOR TRIGA MARK III”

M. en C. LEONARDO RAUL MACIAS BETANZOS ININ  
DR. JESÚS PALACIOS GÓMEZ IPN



DICIEMBRE DE 1998.

MX0100289

Resumen.

El fenómeno de difracción, se da en cumplimiento de la bien conocida ley de Bragg en materiales cristalinos, y esta puede darse por medio de rayos x, electrones y neutrones entre otros, lo cual permite hacer dentro del campo de cada una de estas técnicas obtener mediciones enfocadas a cada una de ellas. Para el presente trabajo, se mencionara solamente lo referente a las técnicas de rayos x y neutrones. La difracción de rayos x debido a sus propiedades hace mediciones que se sabe son en general superficiales en tanto que los neutrones, exploran en forma volumétrica el material de la muestra.

La difracción, es una técnica que se ha utilizado desde el descubrimiento de Max Von Laue en 1912 en el que mostró la evidencia de la existencia de la estructura cristalina en materiales. Los primeros estudios de difracción fueron realizados por medio de rayos x, pero posteriormente aparecieron los neutrones que también proporcionaban información con la técnica de difracción.

Dado que el proceso de difracción de neutrones depende mucho de su intensidad, por esto se hace importante el conocer el espectro de la fuente de neutrones que en este caso lo proporciona el Reactor Triga Mark III. Dentro de las técnicas de difracción, se pueden encontrar un gran número sin embargo se mencionaran algunas de las tradicionales que son la identificación de muestras cristalinas, identificación de fases y la medición de texturas.

Al establecer la técnica de difracción por medio de rayos x, esta fue utilizada para la identificación de muestras cristalinas, se aplico para la identificación de fases y así aparecieron otras técnicas mas que podían ser utilizadas para problemas específicos. En el estudio de materiales cristalinos y la transformación de metales, aparece el concepto de orientación preferencial que lleva al estudio de la textura cristalográfica que se ha desarrollado casi desde el inicio de la aparición del fenómeno de la difracción y se ha relacionado de inmediato a problemas tecnológicos y con la aparición del goniómetro de texturas, se inicia en forma la medición de texturas con rayos x y neutrones.

# 1.- Difracción.

## 1.1.- Fundamentos de la Difracción.

Partiendo de la definición del cristal como la repetición periódica y tridimensional de la celda elemental cuyos vectores base son  $(\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3)$  [1], [2], se define la red recíproca como aquella que tiene una celda unitaria definida por los vectores  $(\vec{b}_1, \vec{b}_2, \vec{b}_3)$  donde :

$$\vec{b}_1 = \frac{(\vec{a}_2 \times \vec{a}_3)}{V}, \quad \vec{b}_2 = \frac{(\vec{a}_3 \times \vec{a}_1)}{V} \quad \text{y} \quad \vec{b}_3 = \frac{(\vec{a}_1 \times \vec{a}_2)}{V}$$
 y V es el volumen de la celda elemental.

Se demuestra que la condición para que exista difracción de un haz por una muestra cristalina, es el cumplimiento del Teorema de Laue [3], [4], que establece que :

$$\Delta \vec{k} = \vec{\tau}$$

donde  $\Delta \vec{k}$  es el vector de dispersión definido como  $\vec{k} - \vec{k}'$  y  $\vec{\tau}$  es un vector de la red recíproca (ver figura 1).  $\vec{k}$  es el vector de onda con magnitud  $1/\lambda$  y tiene la dirección de la propagación de la onda.

El Teorema de Laue, es el principio fundamental para la observación de la difracción, pero no da a conocer la intensidad difractada. Esta última, es proporcional al cuadrado del factor de estructura.

A partir del Teorema de Laue  $\Delta \vec{k} = \vec{\tau}$ , se deduce la condición de difracción conocida como Ley de Bragg que establece que :

$$\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta$$

donde  $\lambda$  es la longitud de onda del haz,  $d_{hkl}$  es la distancia interplanar de los planos con índices de Miller (hkl) del cristal que difracta el haz y  $\theta$  es el ángulo de incidencia y difracción del haz (ver figura 2).

La intensidad difractada integrada para el caso neutrones por una muestra monocristalina, esta dada por :

$$I = N(\lambda) V Q^{\theta}$$

donde  $Q^{\theta} = \frac{\lambda^3 |F_{\tau}(\Delta \vec{k})|^2}{v_o^2 \sin 2\theta}$ ,  $\lambda$  es la longitud de onda,  $N(\lambda)$  es el número de neutrones por unidad de área y por unidad de tiempo que inciden sobre la muestra,  $F_{\tau}$  es el factor de estructura definido por :

$$F_{\tau} = \sum b_j e^{i\Delta \vec{k} \cdot \vec{r}_j}$$

donde la suma recorre todos los átomos de la celda unitaria,  $b_j$  es la longitud de dispersión y  $\vec{r}$  son las posiciones de los centros de masa de dichos átomos. El factor de estructura contiene por lo tanto la información de la estructura cristalina. Además,  $V$  es el volumen irradiado de la muestra,  $v_0$  es el volumen

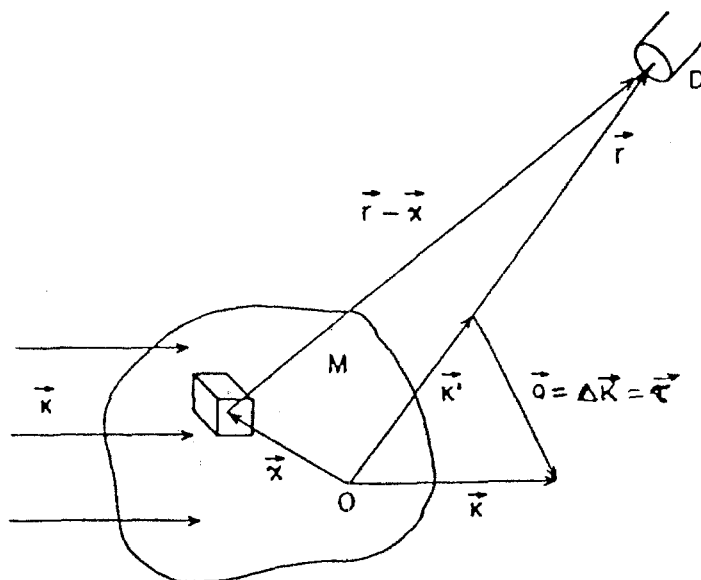


Figura 1. Esquema de la difracción de un haz de radiación.

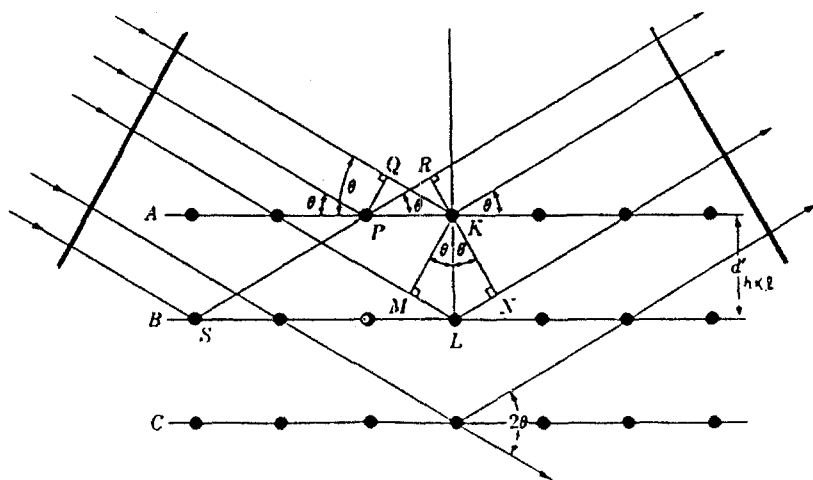


Figura 2. Condición de Bragg para difracción.

de la celda unitaria y  $\theta$  es el ángulo de Bragg.  $N(\lambda)$  es suministrada por la fuente de radiación. Los picos de intensidad tienen forma aproximada de una gaussiana. El ancho de tales picos está dado por la resolución del instrumento y los detalles estructurales de la muestra.

Es conveniente enfocar la atención en el mecanismo de dispersión de neutrones, esta se encuentra dado por la longitud de dispersión  $b_j$  que depende del elemento químico y que varía incluso de isótopo a isótopo y juega el mismo papel en difracción de neutrones que el factor de dispersión atómica de la difracción de rayos x. Dentro de las diferencias que existen entre los rayos x y los neutrones, se pueden citar entre otras :

### NEUTRONES

### RAYOS X

Poco absorbidos por la materia  
 Puede utilizar muestras grandes  
 Longitud de onda continua  
 Diferencian elementos vecinos  
 Bajas intensidades del haz  
 Ven elementos ligeros  
 Altos costos de operación  
 Observan efectos magnéticos  
 En texturas no hay desenfoque  
 En texturas la muestra puede tener tamaño de grano grande  
 Hacen observaciones volumétricas

Muy absorbidos por la materia  
 Utiliza muestras pequeñas  
 Longitud de onda discreta  
 Diferencian difícilmente elementos vecinos  
 Altas intensidades del haz  
 No ven elementos ligeros  
 Bajos costos de operación  
 No observan momentos magnéticos  
 En texturas hay desenfoque  
 En texturas la muestra debe tener tamaño de grano pequeño  
 Hacen observaciones superficiales

En la figura 3, se muestra la longitud de dispersión de neutrones, mostrando su dependencia irregular con  $Z$ , comparada con la correspondiente de rayos x, para dos configuraciones diferentes.

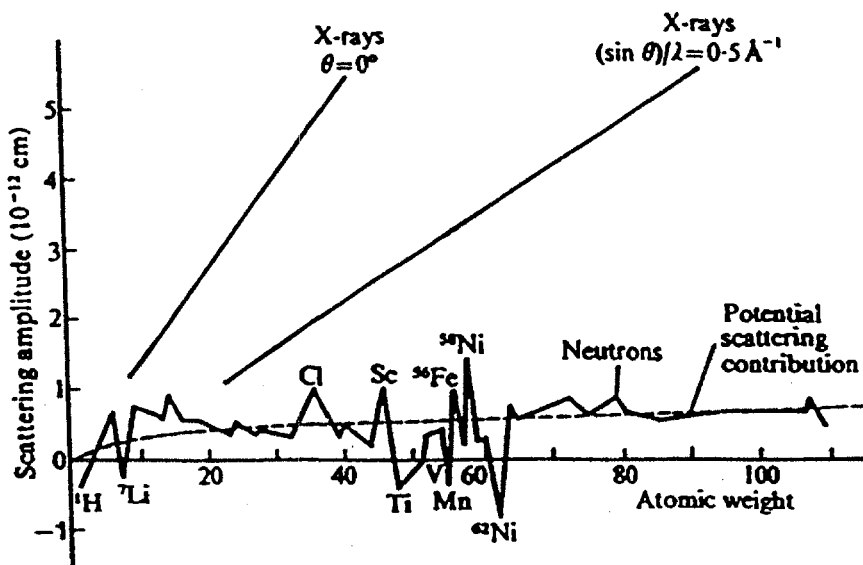


Figura 3. Longitud de dispersión de neutrones.

Al hacer uso de radiación de neutrones, las intensidades utilizadas en general son bajas, por ello es indispensable buscar las condiciones para encontrar la máxima intensidad. También es importante la resolución y ésta se puede mejorar frecuentemente sólo a costa de la intensidad. También, deben considerarse los efectos del ruido de fondo cuyas causas pueden ser entre otras :

- a).- El haz primario viene altamente contaminado con otras radiaciones.
- b).- Sensibilidad a “fugas” de radiación de otros experimentos dentro del mismo reactor.
- c) Contribuye también la dispersión incoherente. Esta se debe a la heterogeneidad de la longitud de dispersión de la muestra bajo estudio.

En la difracción de rayos x, el fondo es pequeño y se puede suprimir casi totalmente por el uso de un monocromador frente al detector.

## 2.- Fuente de Radiación.

La fuente de radiación, para el caso de rayos x, es el tradicional tubo de rayos x, en este caso se hace la descripción para el caso de neutrones que es muy diferente al de los rayos x. La fuente de neutrones para el difractor de neutrones de éste caso, es el reactor TRIGA MARK III [5] (ver figuras 4 y 5), es un reactor inherentemente seguro, diseñado para la investigación en el campo nuclear, así como para la producción de radioisótopos y entrenamiento de personal. El reactor opera rutinariamente en estado estacionario a niveles de potencia térmica de hasta 1 MW y tiene la posibilidad de ser pulsado en forma repetitiva hasta una potencia pico de 2,000 MW. El reactor cuenta con instalaciones para realizar estudios con radiación gamma y neutrones, pruebas de efectos de la radiación en grandes volúmenes y activación de muestras. Las instalaciones incluyen puertos de haces radiales y tangenciales, columna térmica con espacio para experimentación y una puerta de blindaje de concretos de alta densidad, columna térmica vertical, dos instalaciones de producción de radioisótopos que rodean al núcleo ; sistema rotatorio de muestras (SIRCA) y sistema fijo (SIFCA), un sistema neumático de transferencia (SINCA), instalaciones para irradiaciones dentro de la misma y un cuarto de exposición en seco para altos niveles de radiación incluida su puerta de blindaje de concreto de alta densidad. Cuenta también con ocho puertos para la obtención de haces de radiación, cuatro provienen radialmente a partir del núcleo y cuatro son tangenciales. El puerto radial que utiliza el difractor de neutrones, es el radial este 2 “RE2”. La piscina del reactor, el núcleo y las instalaciones experimentales están rodeadas por una estructura de blindaje de concreto que se eleva hasta 7.90 m sobre el piso de la sala del reactor. El núcleo del reactor, se encuentra cerca del fondo de la piscina y está suspendido de un puente móvil que viaja en el sentido longitudinal de la misma. La piscina tiene 7.60 m de longitud, 3 m de ancho y 7.60 m de profundidad. El núcleo mixto del reactor, consiste en un arreglo cilíndrico único de elementos combustible-moderador, barras de control y fuente de neutrones de americio berilio que tiene como objeto suministrar el nivel necesario de neutrones para el arranque del reactor. El núcleo del reactor es mixto puesto que tiene dos tipos de combustibles, uno enriquecido en uranio U-235 al 20% y el otro al 70%. Los elementos combustible-moderador, consisten en una mezcla homogénea de uranio e hidruro de zirconio, encamisada en acero inoxidable. La característica singular de estos elementos combustible-moderador es su coeficiente de reactividad negativo inmediato por temperatura, lo que da al reactor TRIGA

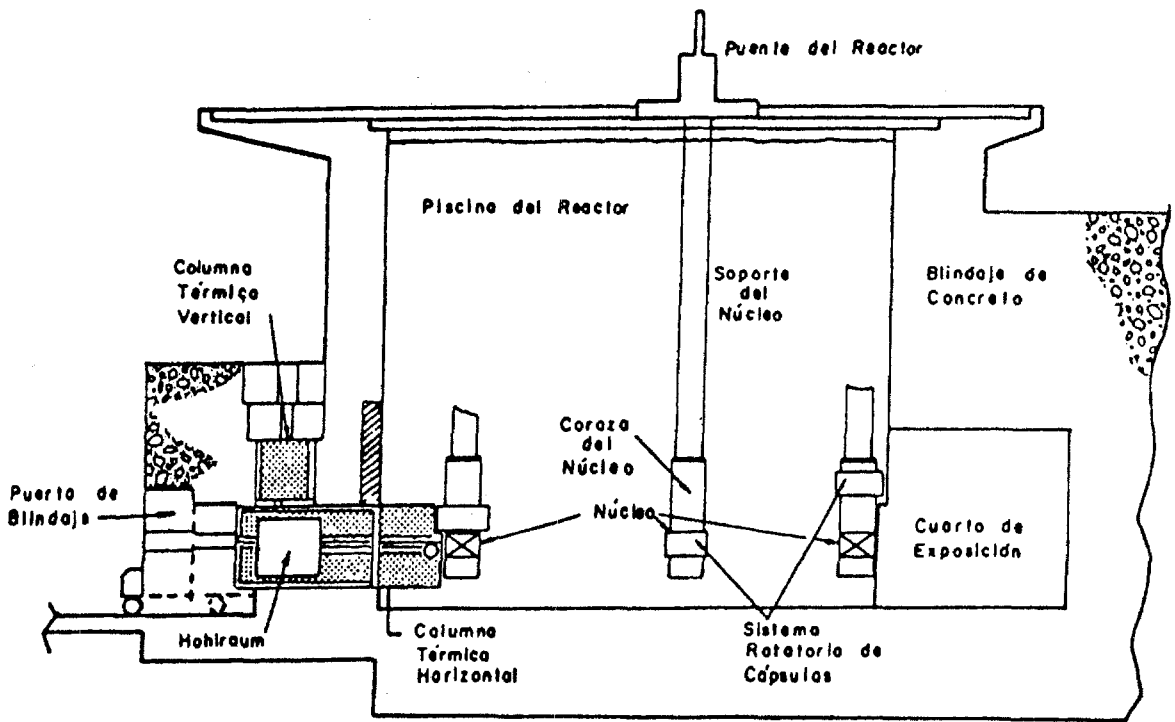


Figura 4. Sección transversal vertical del Reactor Triga.

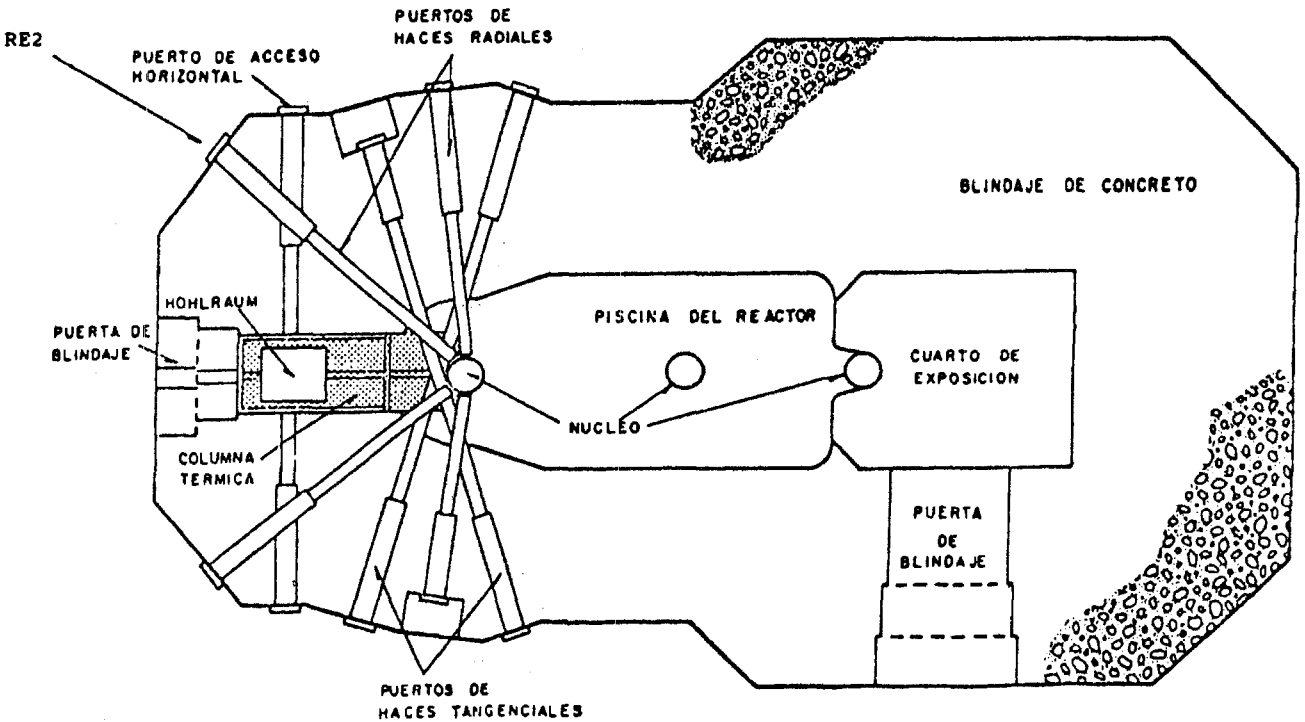


Figura 5. Sección transversal horizontal del Reactor Triga.

su seguridad inherente para que retorne automáticamente la potencia a un nivel normal, en el caso de una excursión de potencia.

En síntesis, la fuente de neutrones se da en base a la reacción en cadena que se genera al operar el reactor y tiene base en la fisión del uranio la cual genera radiación  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  y neutrones ; dados los blindajes presentes, las radiaciones  $\alpha$  y  $\beta$ , no alcanzan a salir de los puertos de haces lográndolo solamente la radiación  $\gamma$  y los neutrones por los conductos que para tal efecto se tienen.

### 3.- El Difractómetro de Neutrones.

El difractómetro de neutrones con el que cuenta el ININ, es de marca Mitsubishi del tipo NX-1330 y es una instalación que tiene lo necesario para observar el fenómeno de la difracción (ver figuras 6 y 7). La fuente de radiación para este caso, es el reactor de investigación Triga ya mencionado y el difractómetro se haya instalado a la salida del puerto radial RE2 (figura 5).

A la salida de este puerto, se tiene radiación gamma y neutrones de diferentes energías. Para realizar los estudios de difracción, se requiere seleccionar una longitud de onda, esto se hace por medio de un dispositivo monocromador que para este caso es de grafito pirolítico, y esta formado de pequeños monocristales que tienen en común el eje C y por lo demás es un policristal con sus otros dos ejes desorientados. El monocromador, está colocado de tal forma que difracta los neutrones de una longitud de onda predeterminada. Como el haz de neutrones se encuentra formado por una gran gama de longitudes de onda, se requiere seleccionar una de trabajo. La forma es sencilla, dadas las constante del grafito pirolítico del JCPDS citadas en el anexo 1, se observa que la reflexión más intensa es la de los planos (002) que corresponden a una distancia interplanar de 3.36 Å, así que moviendo el ángulo  $2\theta$  del blindaje del monocromador que corresponde al eje 1, se selecciona a la salida de éste la longitud de onda deseada. Para este caso fue  $2\theta = 18^\circ$  lo cual corresponde de acuerdo a la ley de Bragg una longitud de onda  $\lambda = 1.05$  Å, que de acuerdo al espectro térmico del reactor (ver figura 8), es la más abundante.

Dado que la fuente de radiación para el difractómetro de neutrones es el reactor, es conveniente mencionar que solo los neutrones térmicos son los de trabajo y contribuyen al fenómeno de difracción. Los flujos promedio de neutrones en el núcleo en el tubo central del núcleo del reactor a 1 MW de potencia, son :

$$\begin{aligned} \text{flujo térmico} &: 3.576 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ seg}^{-1} \\ \text{flujo rápido} &: 3.294 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ seg}^{-1} \end{aligned}$$

y los flujos promedio de neutrones en el puerto RE2 del difractómetro de neutrones a la misma potencia, son :

$$\begin{aligned} \text{flujo térmico} &: 2.466 \times 10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ seg}^{-1} \\ \text{flujo rápido} &: 1.239 \times 10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ seg}^{-1} \end{aligned}$$

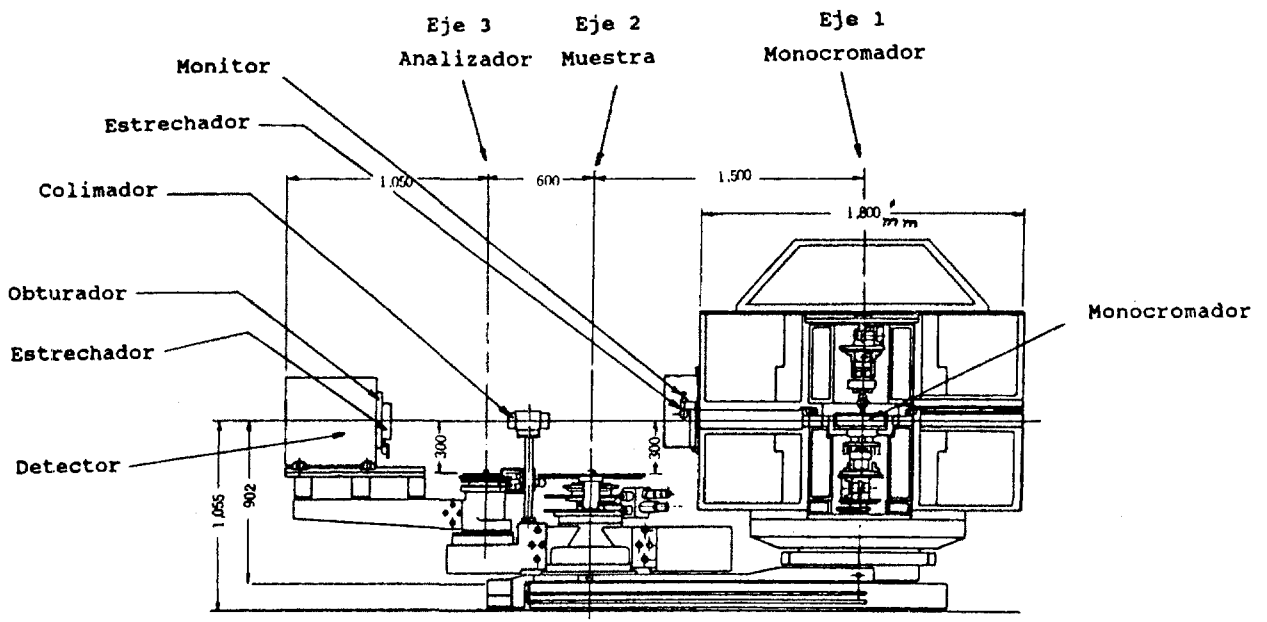


Figura 6. Sección transversal vertical del difractómetro.

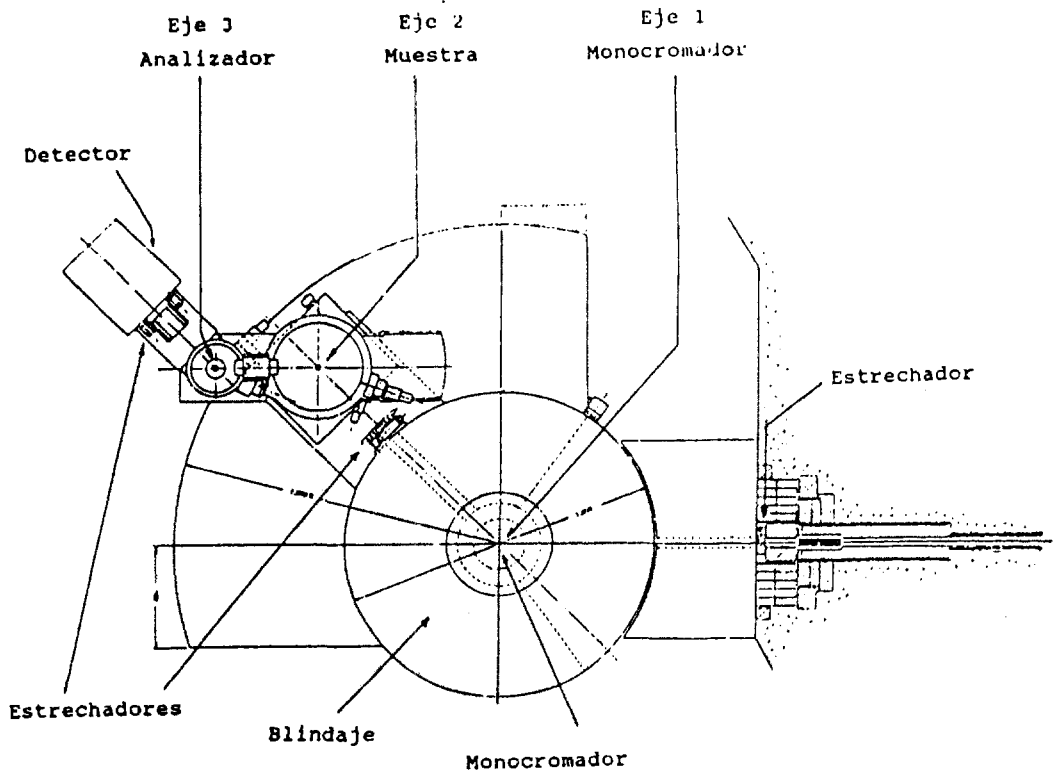


Figura 7. Sección transversal horizontal del difractómetro.



Estos son los flujos de salida del reactor que serán utilizados para realizar la difracción, se consideran utilizables sólo los neutrones térmicos según la siguiente clasificación :

NEUTRONES		
	TERMICOS	RAPIDOS
Energías	0.025 eV a 0.4 eV	0.4 eV a 10 MeV
Longitudes $\lambda$	1.8088 Å a 0.4522 Å	0.4522 Å a 0.0000904 Å

Como puede observarse, las longitudes de onda de los neutrones rápidos, son muy pequeñas en tanto que las de los térmicos fluctúan alrededor del angstrom, valor adecuado para realizar la difracción, por consiguiente se considera como flujo de utilidad sólo el de los neutrones térmicos a la salida del puerto, éste es  $2.466 \times 10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$  y se encuentra formado de una gran gama de longitudes de onda. Es importante considerar que este flujo, se va a disminuir por la selección de la longitud de onda de trabajo.

Para tener una idea de las intensidades características, en circunstancias similares con la misma muestra, para el caso neutrones a 1 MW de potencia, se tiene para el pico (002) del grafito pirolítico un conteo del orden de 200,000 cuentas en 60 segundos (3,333c/s) en tanto que para rayos x es del orden de 120,000 cuentas por segundo (120,000c/s).

#### 4.- Espectro Térmico del Reactor Triga Mark III.

En la figura 8, aparecen espectros térmicos del reactor que fueron obtenidos en diferentes condiciones, es importante mencionar que lo deseable es poder tener una gran intensidad pero existe un gran compromiso que relaciona la intensidad con la resolución por lo cual se debe obtener una configuración que de la relación intensidad/resolución óptima. En la misma figura, se pueden observar diferentes espectros térmicos que pudieron ser obtenidos por medio del difractómetro de neutrones para fines de difracción de neutrones, y se puede ver el primero antes de 1995 que tenía una intensidad baja, la máxima era del orden de 22000 cuentas/10 segundos, posteriormente con algunos arreglos y modificaciones se repitió la medición en las mismas condiciones y resulto aumentada, la máxima era del orden de 147000 cuentas/10segundos, como el problema siempre es la intensidad, se hicieron trabajos para determinar si se podía obtener un aumento mas y al verificar la alineación del difractómetro de neutrones se encontró que había una desviación lo cual si se corregía permitiría una mayor intensidad y después de los trabajos se repitió la medición con lo que la máxima resulto ser del orden de 265000 cuentas/10 segundos.

Estos trabajos ya podían permitir hacer mediciones significativas aunque quedaban pendientes otras tareas tales como mejorar la resolución. El fruto de este trabajo, consistió en permitir una mejor medición de texturas, y se realizaron mediciones de muestras con texturas y los resultados fueron comparados con los obtenidos en otros centros de investigaciones e inclusive con los obtenidos por medio de rayos x y las conclusiones fueron satisfactorias.

A la fecha, la técnica de medición de texturas se encuentra a punto con un error mínimo y la técnica de identificación de fases funciona pero no compete con la que se obtiene por medio de rayos x debido a que esta ultima tiene mayor resolución.

# ESPECTRO TERMICO DEL REACTOR TRIGA MARK III DIFRACCION DE NEUTRONES

POTENCIA 300 KW

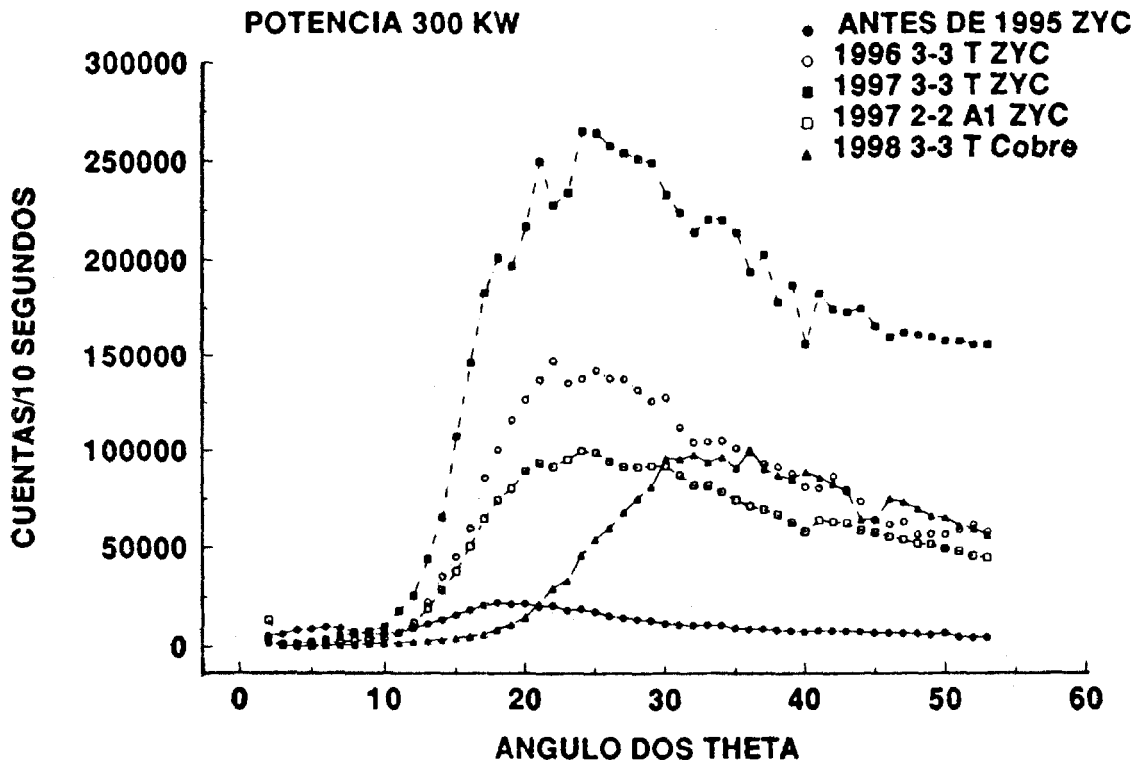


Figura 8. Espectro Térmico del Reactor Triga Mark III.

## Bibliografía.

- [1] Elements of X Ray Diffraction  
B. D. Cullity  
Addison-Wesley Publishing Company 1959
- [2] X-Ray Diffraction Procedures for Polycrystalline and Amorphous Materials  
Harold P. Klug and Leroy E. Alexander  
John Wiley&Sons 1974
- [3] Neutron Diffraction  
G. E. Bacon  
Clarendon Press, Oxford Third Edition, 1975
- [4] Theory of Thermal Neutron Scattering  
W. Marshall and S. W. Lovesey  
Oxford at Clarendon Press, 1971
- [5] Informe de Seguridad del Reactor Triga Mark III del Centro Nuclear de México  
ININ GSN-001, 1986.