

GENERACIÓN DE SECCIONES EFICACES NEUTRÓNICAS PARA DIÓXIDO DE SILICIO

R. Ramos¹, J. I. Marquez Damián^{1,2,3}, F. Cantargi^{1,2}, J.R. Granada^{1,2,3}

¹ Instituto Balseiro (UNCuyo), ²Física de Neutrones, Unidad de Actividad
Ingeniería Nuclear, GAEN, Centro Atómico Bariloche (CNEA)
³CONICET

cantargi@cab.cnea.gov.ar

RESUMEN

Se generaron y validaron las bibliotecas de secciones eficaces térmicas de silicio y oxígeno ligados en dióxido de silicio. La generación se llevó a cabo en formato ACE para MCNP utilizando el sistema de procesamiento de datos nucleares NJOY y la validación se realizó con datos experimentales ya existentes.

Luego, se utilizaron las bibliotecas para realizar un cálculo con MCNP de cinco experimentos de criticidad en configuraciones heterogéneas pertenecientes al benchmark *Critical Experiments with Heterogeneous Compositions of Highly Enriched Uranium, Silicon Dioxide and Polyethylene*. Dichos cálculos no contaban con las bibliotecas generadas en este trabajo y presentaban diferencias importantes con los resultados experimentales. Por tal motivo, se las agregó y se recalculó el factor de multiplicación efectivo para cada configuración. No se observaron mejoras entre los valores del factor de multiplicación efectivo obtenido con las bibliotecas y sin las bibliotecas. En base a esto, se plantea la realización de experimentos de validación en los que la influencia de la dispersión de neutrones térmicos en dióxido de silicio sea mayor en los resultados y donde las condiciones experimentales sean más controladas.

GENERATION OF NEUTRON SCATTERING CROSS SECTIONS FOR SILICON DIOXIDE

R. Ramos¹, J. I. Marquez Damián^{1,2,3}, F. Cantargi^{1,2}, J.R. Granada^{1,2,3}
¹ Instituto Balseiro (UNCuyo), ²Física de Neutrones, Unidad de Actividad
Ingeniería Nuclear, GAEN, Centro Atómico Bariloche (CNEA)
³CONICET

ABSTRACT

A set of neutron scattering cross sections for silicon and oxygen bound in silicon dioxide were generated and validated. The cross sections were generated in the ACE format for MCNP using the nuclear data processing system NJOY, and the validation was done with published experimental data.

This cross section library was applied to the calculation of five critical configurations published in the benchmark “Critical Experiments with Heterogeneous Compositions of Highly Enriched Uranium, Silicon Dioxide and Polyethylene”. The original calculations did not use the thermal scattering libraries generated in this work and presented significant differences with the experimental results. For this reason, the newly generated library was added to the input and the multiplication factor for each configuration was recomputed. The utilization of the thermal scattering libraries did not result in an improvement of the computational results. Based on this we conclude that integral experiments to validate this type of thermal cross sections need to be designed with a higher influence of thermal scattering in the measured result, and the experiments have to be performed under more controlled conditions.

INTRODUCCIÓN

Tanto en investigación básica en física nuclear, como en la planificación, diseño y explotación de centrales nucleares, reactores de investigación e instalaciones asociadas al procesamiento de materiales nucleares, la disponibilidad de datos nucleares completos y confiables es un requisito básico e indispensable. En el Laboratorio de Neutrones y Reactores del Centro Atómico Bariloche se han venido desarrollando métodos experimentales y teóricos para estudiar problemas asociados a la interacción de neutrones lentos con la materia, aplicables a la generación y validación de secciones eficaces en el rango térmico.

El presente trabajo tiene como motivación primaria generar secciones eficaces para materiales livianos como dióxido de silicio, presentes en el emplazamiento de un repositorio geológico profundo. La disponibilidad de bibliotecas de todos los materiales presentes en las múltiples barreras de ingeniería que integran el sistema se hace necesaria en cálculos de criticidad o en el estudio del transporte a la biosfera de los radionucleidos que pueden abandonar el almacenamiento. Estos cálculos se hacen con el fin de garantizar que no será necesario realizar trabajos de mantenimiento o vigilancia ni acciones preventivas o correctoras una vez sellados los residuos en un repositorio geológico profundo.

CONSIDERACIONES GENERALES DEL SCATTERING DE NEUTRONES

Existen múltiples mecanismos por los que los neutrones pueden interactuar con la materia. Estos pueden ser dispersados por los núcleos con los que interactúan, pueden desaparecer del sistema en un proceso de absorción o pueden producir fisión si interactúan con un núcleo fisil.

Cada mecanismo de interacción tiene asociada una sección eficaz microscópica, σ , que está relacionada con la probabilidad de ocurrencia de ese mecanismo.

En este trabajo se estudiaron las interacciones de scattering para neutrones térmicos, es decir, aquellos procesos en los que los neutrones con energía incidente menores al eV son dispersados por los núcleos del sistema blanco.

Si se analiza la naturaleza ondulatoria de los neutrones, es posible clasificar a las interacciones de scattering en coherentes e incoherentes. Un proceso de scattering se dice incoherente si la reemisión de los neutrones después de la colisión lleva a cambios arbitrarios de fase y la interferencia entre los distintos neutrones dispersados es imposible. Si la interferencia entre ondas es posible, el proceso se dice coherente.

Si se analiza al neutrón como partícula, es posible clasificar a las interacciones de scattering en elásticas e inelásticas. Un proceso de scattering se dice elástico si, en el sistema del centro de masas, no existe transferencia de energía entre el neutrón y el blanco. De lo contrario, el proceso se denomina inelástico.

Por lo tanto, es posible descomponer a la sección eficaz de scattering total de la siguiente manera:

$$\sigma(E) = \sigma_{coh}^{el}(E) + \sigma_{coh}^{inel}(E) + \sigma_{inc}^{el}(E) + \sigma_{inc}^{inel}(E)$$

donde, $\sigma(E)$ es la sección eficaz total de scattering, $\sigma_{coh}^{el}(E)$ es la componente elástica coherente, $\sigma_{coh}^{inel}(E)$ es la componente inelástica coherente, $\sigma_{inc}^{el}(E)$ es la componente elástica incoherente y $\sigma_{inc}^{inel}(E)$ es la componente inelástica incoherente.

SISTEMA DE PROCESAMIENTO DE DATOS NUCLEARES NJOY

El sistema de procesamiento de datos nucleares NJOY [1] se utiliza para producir bibliotecas con diferentes formatos de acuerdo a su futura aplicación.

El procedimiento usual para generar una biblioteca térmica con el formato adecuado para MCNP [3] se describe en el diagrama de flujo de la Figura 1. Este procedimiento consiste en alimentar al sistema con las bibliotecas ENDF [2] (Evaluated Nuclear Data Files) que, en primer lugar, son convertidas de formato ASCII a binario mediante el módulo MODER. La salida es utilizada por el módulo RECONR cuya función es linealizar las escalas y unificar la información del archivo de entrada ENDF. Posteriormente, el módulo BROADR realiza el ensanchamiento de las resonancias en la sección eficaz por efecto Doppler, para llevar la biblioteca de 0 K a la temperatura de trabajo (en este caso, 293 K, la temperatura ambiente). Luego, el módulo LEAPR se encarga de generar leyes de scattering como función del intercambio de impulso y energía entre el neutrón y el sistema dispersor, utilizando como input la dinámica de la molécula dispersora, expresada como un espectro de frecuencias. La salida de LEAPR se utiliza posteriormente para alimentar el módulo THERMR y así generar secciones eficaces y núcleos de transferencia. Finalmente, el módulo ACER se utiliza para convertir las bibliotecas generadas al formato ACE para MCNP.

En la generación de secciones eficaces de scattering térmico, el principal dato de entrada para el sistema NJOY es el espectro de frecuencias donde se vuelca toda la física del problema de interacción de los neutrones con el sistema blanco que se está estudiando.

DIÓXIDO DE SILICIO

El dióxido de silicio (SiO_2) es uno de los minerales más abundantes en la corteza terrestre. Como tal, sus propiedades neutrónicas son de considerable interés en cálculos de criticidad en repositorios geológicos profundos donde se encuentra junto a material físil.

Para poder caracterizar al dióxido de silicio y de esta manera poder realizar el cálculo de secciones eficaces, es necesario conocer sus propiedades estructurales y dinámicas.

Estructura cristalina

El SiO_2 se presenta en la naturaleza bajo un gran número de formas polimórficas. El cuarzo- α es la forma estable en condiciones normales de presión y temperatura. Éste presenta una estructura cristalina hexagonal compuesta de enlaces tetraédricos Si-O.

En la Figura 2 se presenta la estructura cristalina del cuarzo- α , donde las esferas rojas representan al oxígeno y las blancas al silicio. Los parámetros de la celda unidad son $a=b= 4.193 \text{ \AA}$ y $c=5.405 \text{ \AA}$ y los ángulos entre los ejes son $\alpha =\beta=90^\circ$ y $\gamma=120^\circ$ [4].

Espectro de frecuencias

En un proceso de dispersión entre un neutrón y un sistema blanco, las transferencias de energía e impulso están controladas por la dinámica del sistema dispersor, la cual a su vez se caracteriza por el espectro de frecuencias. Existen modelos físicos para describir el espectro de frecuencias ($Z(\omega)$). En el caso de un sólido el modelo más

sencillo es el de Debye, donde $Z(\omega)$ se escribe como una función cuadrática de un solo parámetro:

$$Z(\omega) = \begin{cases} \frac{3\omega^2}{\omega_D^3} & \omega \leq \omega_D \\ 0 & \omega > \omega_D \end{cases}$$

con $\hbar\omega_D = kT_D$, donde ω_D es la frecuencia de Debye y T_D es la temperatura de Debye del sólido. Tanto para oxígeno como para silicio se utilizó el modelo de Debye con $T_D = 496K$ [5], [6].

GENERACIÓN Y VALIDACIÓN DE SECCIONES EFICACES

Generación y validación de la sección eficaz elástica

Dado que para el scattering elástico coherente el neutrón no distingue con qué átomo está realizando la interacción, es decir, interactúa con el sistema como un todo, se definió por simplicidad un átomo promedio cuya longitud de scattering verifica:

$$\bar{b} = \frac{2b^O + b^{Si}}{3}$$

donde b^O y b^{Si} son las longitudes de scattering del oxígeno y del silicio respectivamente [7].

Con la longitud de scattering calculada, se obtuvo la constante de scattering coherente para cada átomo promedio de la molécula, resultando:

$$\bar{\sigma}_{coh} = 4\pi\bar{b}^2 = 3.46barn$$

La masa del átomo promedio se calculó considerando que para todo sistema, a energías mayores al eV, la sección eficaz total debe ser igual a la suma de las secciones eficaces libres de los átomos. Se obtuvo $M=19.6uma$.

NJOY calcula la sección eficaz elástica coherente sólo para una lista de materiales entre la que no se encuentran ni el silicio ni el oxígeno. Por lo tanto fue necesario realizar una aproximación para poder calcular la sección eficaz elástica coherente. Se supuso que a partir del primer valor de energía para el que se cumplía la condición de Bragg, la sección eficaz elástica coherente era proporcional a la sección eficaz elástica

incoherente. La constante de proporcionalidad estaba dada por $\frac{\sigma_{coh}}{\sigma_{inc}}$.

En la Figura 3 se compara la sección eficaz elástica total calculada con NJOY y con el programa CRIPO [8].

Generación y validación de la sección eficaz inelástica

En el marco de la aproximación incoherente, para generar la sección eficaz inelástica se utilizó en NJOY la masa de un átomo promedio y para cada átomo su correspondiente constante de scattering. Esto se debió a que en el scattering inelástico el neutrón al interactuar distingue con qué átomo lo está haciendo, pero debido a los efectos de enlace cada átomo presenta una masa igual a la del átomo promedio. En la Figura 4 se presenta la comparación de la suma de las secciones eficaces inelástica y de

absorción calculadas con NJOY y medidas en un experimento de transmisión en un monocristal de SiO₂ realizadas en la Universidad de Columbia, por Rustad [9].

Sección eficaz total

Se disponía únicamente de mediciones de sección eficaz total realizadas en el laboratorio de Neutrones y Reactores del CAB [10] sobre un vidrio cuyo componente principal es dióxido de silicio pero sin estructura cristalina definida (amorfo).

En la Figura 5 se presenta la comparación entre la sección eficaz total calculada con NJOY, con CRIPPO y las mediciones recién mencionadas. Si bien la tendencia de la sección eficaz experimental es la misma que la de la hallada por cálculo con NJOY, se observan diferencias que provienen principalmente de la componente coherente de la sección eficaz, donde la condición de Bragg se cumple para diferentes valores de energía dependiendo de la estructura del dióxido de silicio.

APLICACIÓN DE LAS BIBLIOTECAS AL CÁLCULO DE CRITICIDAD

Generalidades del benchmark

En el benchmark *Critical Experiments with Heterogeneous Compositions of Highly Enriched Uranium, Silicon Dioxide and Polyethylene* [11], se describen una serie de configuraciones críticas heterogéneas con uranio enriquecido, dióxido de silicio y polietileno que fueron preparadas en la facilidad *Big Physical Stand* en el *Institute of Physics and Power Engineering* (IPPE), en Obninsk, Rusia. El objetivo de estos experimentos fue obtener datos aplicables a estudios de criticidad de reservorios de combustibles nucleares gastados, principalmente orientados al repositorio Geológico de Yucca Mountain en Estados Unidos.

Se construyeron 5 configuraciones críticas denominadas BFS 79/1, 79/2, 79/3, 79/4 y 79/5. Los arreglos críticos estaban compuestos por tubos de aluminio y de acero inoxidable, de 5 cm de diámetro exterior, 0.1 cm de espesor de pared y 2 metros de largo llenos con pastillas de uranio metálico enriquecido al 90 %, dióxido de silicio y polietileno. También se utilizó arena (cuyo principal componente es SiO₂) para llenar tubos en el reflector y se colocaron pastillas de polietileno en los espacios entre los tubos en algunos casos.

Resultados

En el benchmark se presentan los valores medidos experimentalmente y calculados mediante un modelado en MCNP del factor de multiplicación efectivo, k_{eff} , para cada configuración crítica.

El modelo en MCNP provisto con el benchmark, además de no contar con las bibliotecas de Si y O ligados en SiO₂, incluía con una serie de aproximaciones. Las principales aproximaciones realizadas fueron: para la columna térmica se consideró grafito puro; se consideró al acero del recipiente y la tapa con las mismas propiedades que el acero de las vainas; se supuso una densidad típica para el concreto porque se desconocía su valor; y el cadmio presente en el sistema se consideró sin impurezas.

Se realizaron las simulaciones existentes de los experimentos mencionados incorporando las bibliotecas de silicio y oxígeno ligados en SiO₂.

En la Tabla I se presentan los resultados experimentales y los correspondientes a las simulaciones con MCNP, para los casos con y sin las bibliotecas del SiO₂ generadas en

este trabajo.

En la Figura 6 se comparan los valores tabulados anteriormente para cada configuración de núcleo. En esta figura se observa que los valores experimentales y los calculados no son coincidentes, excepto para el caso BFS 79/5. En todas las configuraciones críticas se observa que el hecho de considerar la biblioteca térmica no mejoró el cálculo.

Dado que el k_{eff} es un parámetro integral, se ve afectado por muchos factores y no sólo por las propiedades del scattering térmico. Existen factores que se desconocen del modelado, que hacen que el efecto de considerar la biblioteca térmica del SiO_2 pueda ser poco apreciable en los resultados.

Anteriormente se mencionaron las aproximaciones que se realizaron en el benchmark, además de no utilizar las bibliotecas térmicas de SiO_2 . Se estima que estos factores no tenidos en cuenta pueden haber afectado al cálculo con un peso mayor que la biblioteca térmica del SiO_2 , y como consecuencia, la incorporación de la biblioteca no mejoró notablemente el cálculo.

En base a estos resultados podemos concluir que el experimento no es suficientemente sensible a las secciones eficaces del SiO_2 .

Por lo tanto, podría diseñarse un experimento para la validación de la biblioteca de dióxido de silicio donde el scattering en el SiO_2 sea significativo y donde se conozcan con exactitud todas las variables presentes, es decir, las características de los materiales, la geometría y las fuentes.

De esta manera, la completa descripción del sistema permitiría realizar un modelado con la menor cantidad posible de aproximaciones en MCNP. Por otro lado, el scattering significativo en el SiO_2 posibilitaría reconocer las variaciones en la variable en estudio debidas a incorporar o no en el modelado la biblioteca térmica del SiO_2 .

CONCLUSIONES

Durante el desarrollo de este trabajo se generaron las bibliotecas de secciones eficaces térmicas de silicio y de oxígeno ligados en dióxido de silicio, con formato ACE para MCNP. Para ello se utilizó el sistema de procesamiento de datos nucleares NJOY. Los resultados obtenidos para la sección eficaz total se compararon con mediciones ya existentes y con cálculos realizados con el programa CRIPPO, obteniéndose un buen acuerdo.

Una vez obtenidas las bibliotecas se buscó su aplicación a un cálculo de ingeniería. Los únicos datos existentes en la actualidad son una serie de cinco configuraciones heterogéneas que habían sido preparadas en Rusia. Estos experimentos habían sido diseñados con el objetivo de obtener datos aplicables a estudios de criticidad de reservorios de combustibles nucleares gastados, en particular para el repositorio geológico de Yuca Mountain en Estados Unidos. Entonces, se tomó la simulación existente en MCNP que no contaba con las bibliotecas térmicas, se agregaron dichas bibliotecas y se recalcularon los valores del factor de multiplicación efectivo. No se observó una mejora en los valores obtenidos debido a que existían variables que no se conocían con exactitud y estaban afectando al cálculo con un peso mayor que las bibliotecas térmicas incorporadas. Por lo tanto, se concluyó que para realizar un experimento que permita realizar la validación de la biblioteca con un cálculo en MCNP, se deben cumplir las siguientes condiciones: que se conozcan con exactitud todas las variables presentes, es decir, las características de los materiales, la geometría y las fuentes; y sea significativo el scattering en el material en estudio, en este caso, dióxido de silicio.

BIBLIOGRAFÍA

- [1] R. E. MacFarlane and D. W. Muir. NJOY Nuclear Data Processing System. Los Alamos National Laboratory, 1994.
- [2] R. E. MacFarlane. New thermal neutron scattering files ENDF/B-VI (Release 2). Los Alamos National Laboratory, 1994.
- [3] MCNP. Monte Carlo Neutron and Photon Transport Code System. C00730MNYCP00, RSIC, 2006.
- [4] <http://www.quartzpage.de>.
- [5] A. P. Sokolov and A. Kisiliuk Evaluation of density of vibrational states of glasses from low frequency raman spectra. Physical Review, 1993.
- [6] R, Stephens. Low-temperature specific heat and thermal conductivity of nondielectric solids. Physical Review, 1973.
- [7] G. Lander and J. Dianoux. Neutron Data Bokklet. Institut Laue-Langevin, 2001.
- [8] F. Kropff and J. R. Granada. Cripo, a computer code to describe the total cross section of polycrystalline materials. Unpublished report, 1975.
- [9] B.M. Rustad and E. Melkonian. Neutron crystal spectrometer with range extended to subthermal energies. The review of scientific instruments, 1964.
- [10] J. J. Blonstein and J. Dawidowski. Cross section of vitreous silica (SiO₂) over the thermal energy range. Technical report, Nuclear Data Section, IAEA, EXFOR 31503, 1999.
- [11] J. B. Briggs. International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments, 1995.

Figuras

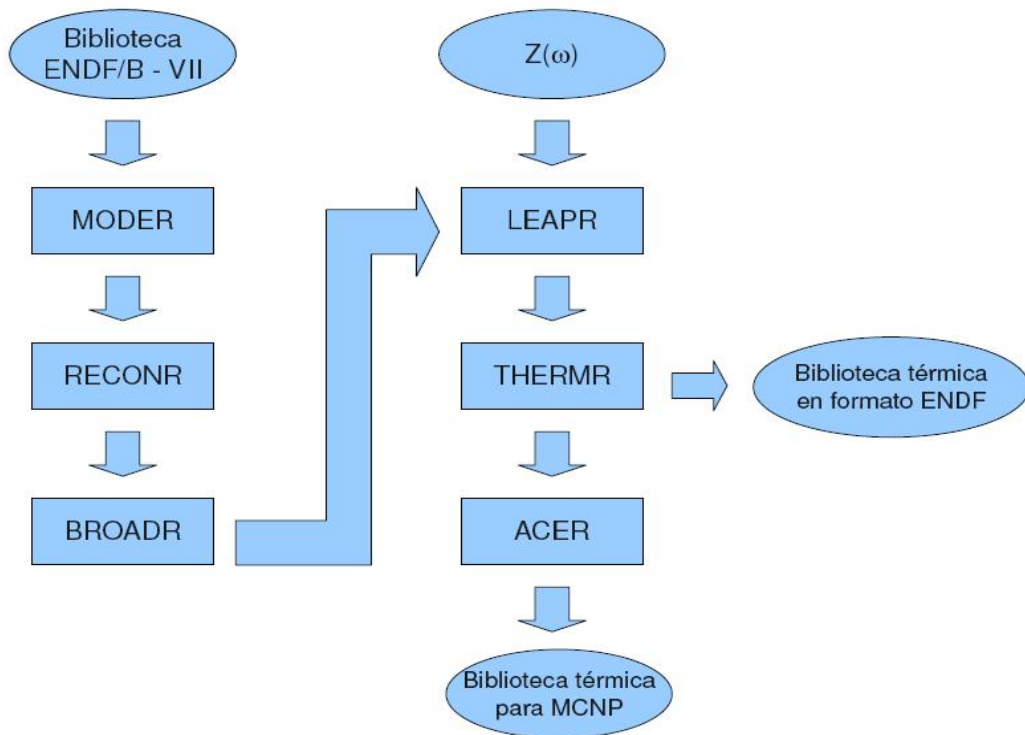


Figura 1: Diagrama de flujo que utiliza NJOY para generar una biblioteca térmica para MCNP.

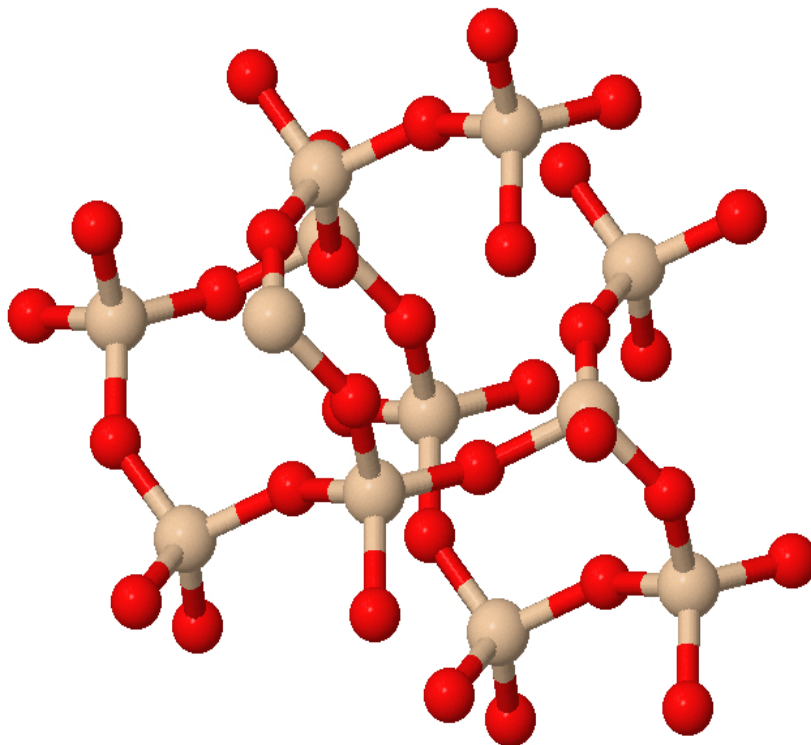


Figura 2: Estructura cristalina del cuarzo- α .

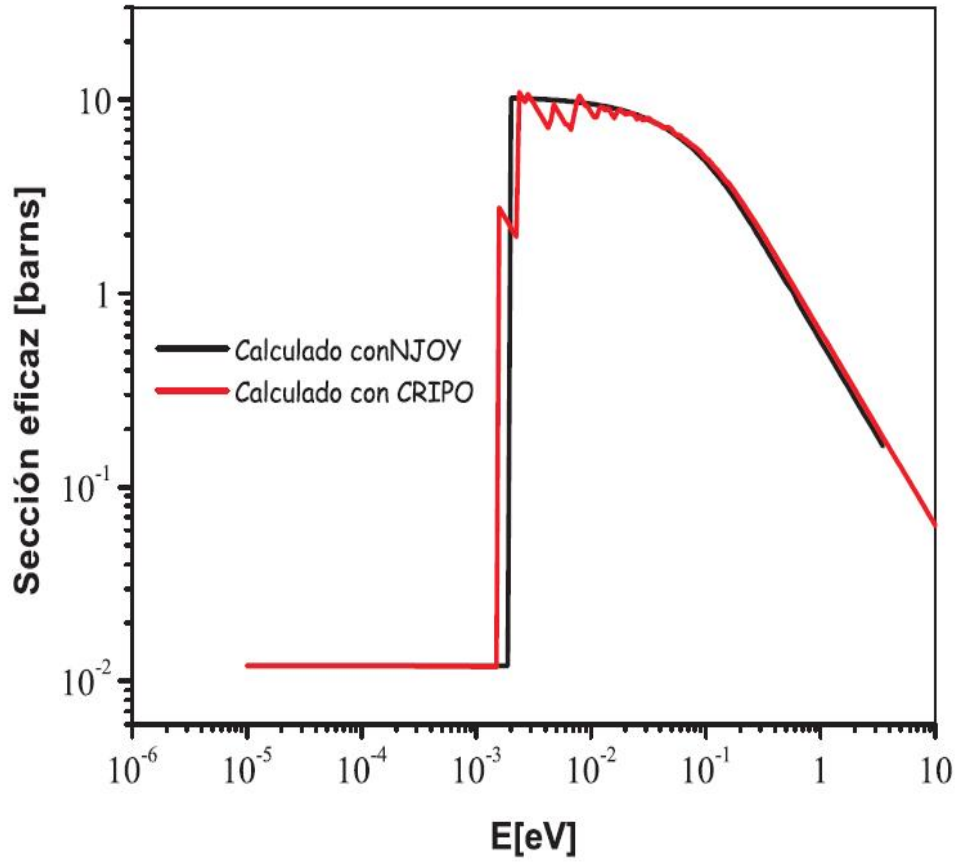


Figura 3: sección eficaz elástica calculada con NJOY y con CRIPPO.

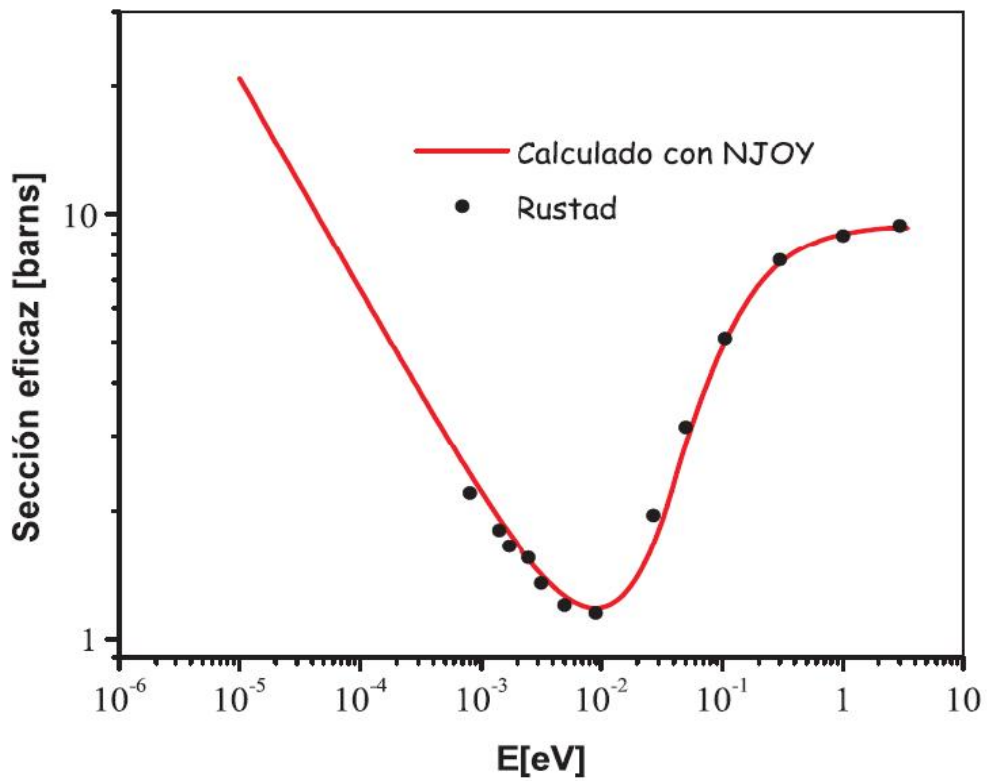


Figura 4: sección eficaz inelástica y de absorción medida por Rustad y calculada con NJOY.

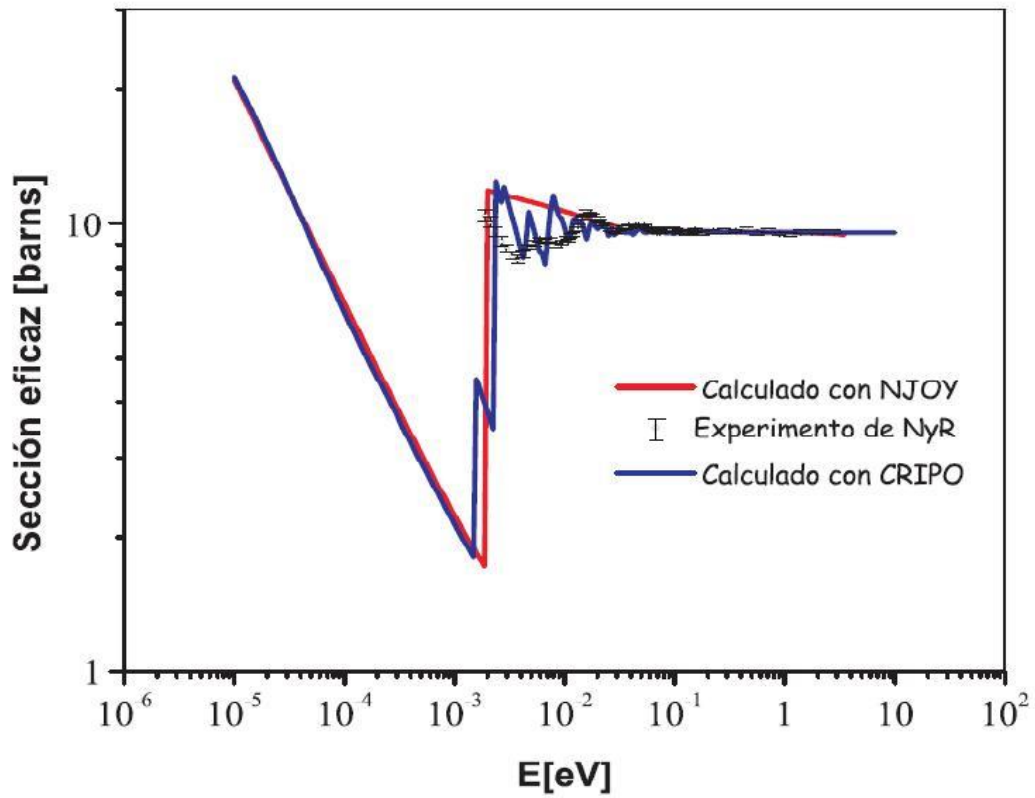


Figura 5: sección eficaz total calculada con NJOY, con CRIPO y medida en el laboratorio de NyR en el CAB.

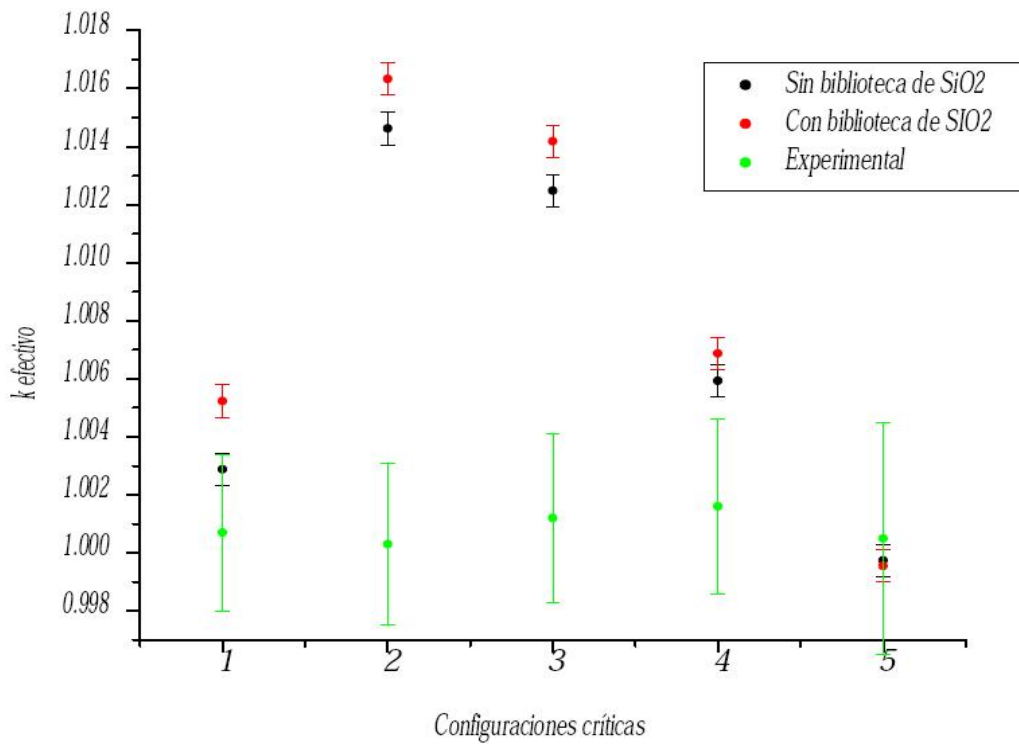


Figura 6: factor de multiplicación efectivo experimental y calculado con y sin las bibliotecas de SiO₂.

Tablas

Configuración crítica	K_{eff}		
	Sin biblioteca SiO_2	Con biblioteca SiO_2	Experimental
BFS 79/1	1.00288 ± 0.00057	1.00523 ± 0.00053	1.0007 ± 0.0027
BFS 79/2	1.01462 ± 0.00056	1.01633 ± 0.00056	1.0003 ± 0.0028
BFS 79/3	1.01248 ± 0.00053	1.01418 ± 0.00056	1.0012 ± 0.0029
BFS 79/4	1.00593 ± 0.00056	1.00687 ± 0.00056	1.0016 ± 0.0030
BFS 79/5	0.99974 ± 0.00053	0.99955 ± 0.00056	1.0005 ± 0.0040

Tabla I: valores del factor de multiplicación efectivo experimental y calculado con y sin las bibliotecas de SiO_2 .