

# Determinação Experimental das Abundâncias Relativas e Constantes de Decaimento de Nêutrons Atrasados pelo Método dos Múltiplos Transientes

Adimir dos Santos<sup>1</sup>, Ricardo Diniz<sup>1</sup> e Rogério Jerez<sup>1</sup>

1 Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN / CNEN - SP)  
Av. Professor Lineu Prestes 2242  
05508-000 São Paulo, SP  
[asantos@ipen.br](mailto:asantos@ipen.br)  
[rdiniz@ipen.br](mailto:rdiniz@ipen.br)  
[rjerez@ipen.br](mailto:rjerez@ipen.br)

## RESUMO

A determinação das Abundâncias Relativas ( $\beta_i/\beta_{\text{eff}}$ ) e as Constantes de Decaimento ( $\lambda_i$ ) de Nêutrons Atrasados foi bem promissora no reator de pesquisas IPEN/MB-01. Os dados experimentais são de boa qualidade e serão usados para validação dos dados teóricos dos grupos de nêutrons atrasados baseado-se no conhecimento corrente das abundâncias e da probabilidade de emissão de precursores conhecidos. A comparação teoria/experimento mostrou que a corrente biblioteca ENDF/B-VI para 8 grupos mostrou severas discrepâncias nas abundâncias relativas e na primeira constante de decaimento. A versão revisada em LANL mostra um bom progresso. A melhor performance foi obtida pela JENDL3.3. Uma maneira de verificar a consistência do experimento é a medida da constante de decaimento do  $^{87}\text{Br}$ , o único precursor pertencente ao primeiro grupo.

## 1. INTRODUÇÃO

O papel fundamental dos nêutrons atrasados no controle e operação segura de reatores nucleares é bem conhecido. Entretanto, apesar dos esforços tanto teóricos quanto experimentais para caracterizar os parâmetros cinéticos relativos aos nêutrons atrasados, ainda existe grande discrepância entre as principais bibliotecas de dados nucleares a saber, ENDF/B-VI.8, sua versão revisada em Los Alamos National Laboratory (LANL) e a JENDL 3.3. Tal fato levou a um empenho em nível mundial [1] para validação, melhoria e estabelecimento de um conjunto consistente de parâmetros de nêutrons atrasados, incluindo a proposta de um modelo de 8 grupos de precursores [2]. O principal propósito do presente trabalho consiste em fornecer resultados experimentais de qualidade para os parâmetros efetivos de nêutrons atrasados, os quais podem contribuir para a validação de modelos teóricos. Para tal propósito, são apresentados os resultados experimentais obtidos no reator IPEN/MB-01 para as abundâncias relativas e constantes de decaimento dos precursores de nêutrons atrasados em um modelo de 6 grupos e abundâncias relativas utilizando o modelo de 8 grupos. Neste último caso as constantes de decaimento são mantidas fixas durante o processo de mínimos quadrados. O procedimento utilizado neste experimento "in-pile" foi baseado na técnica de múltiplos transientes desenvolvida por Spriggs [3].

## 2. O MÉTODO DE SPRIGGS

A técnica de múltiplos transientes é baseada em um algoritmo de mínimos quadrados que ajusta simultaneamente uma série de transientes produzidos por pequenas perturbações de

reatividade. A função que é ajustada é a solução analítica para uma mudança em degrau de reatividade como dada pelo modelo de reator pontual e para um número arbitrário de grupos de precursores, sendo dada por [3]:

$$\frac{n - n_b}{n_0 - n_b} = \sum_j \frac{r}{w_j \left[ L + \sum_i \frac{b_i I_i}{(w_j + I_i)^2} \right]} e^{w_j t} \quad (1)$$

onde

$n$  = nível de potência,

$n_0$  = potência inicial,

$n_b$  = nível de potência de fundo associada com as fontes de nêutrons intrínsecas e/ou externas,

$\beta_i$  = fração efetiva de nêutrons atrasados do grupo (ou família) de precursor  $i$  ( $i = 1, \dots, m$ ),

$\lambda_i$  = constante de decaimento do grupo de precursor  $i$ ,

$\omega_j$  =  $j$ -ésima raiz da equação "Inhour" ( $j = 1, \dots, m+1$ ),

$$\rho = \text{reatividade} = \mathbf{w}_a L + \sum_i \frac{\mathbf{w}_a b_i}{\mathbf{w}_a + I_i},$$

$\omega_a$  = o inverso do período estável ou o período de decaimento dos nêutrons prontos,

$\Lambda$  = tempo de geração de nêutrons prontos.

A equação (1) mostra que a potência relativa é função de duas variáveis independentes (o tempo e uma raiz medida da equação "Inhour") e  $2m+1$  parâmetros:  $\beta_1, \beta_2, \dots, \beta_m; \lambda_1, \lambda_2, \dots, \lambda_m$  e  $\Lambda$ . As raízes remanescentes da equação "Inhour" ( $\omega_2, \omega_3, \dots, \omega_{m+1}$ ) podem ser determinadas para um dado conjunto de parâmetros de nêutrons atrasados a partir de reatividade do sistema conforme a equação (1). O método de Spriggs baseia-se então nas seguintes quantidades mensuráveis: potência relativa, tempo e uma das raízes da equação "Inhour",  $\omega_a$ .

Importante mencionar que a técnica de múltiplos transientes não requer correção para multiplicação residual, minimiza a contaminação de harmônicos, não requer o conhecimento da magnitude das perturbações de reatividade e o número de grupos de precursores que pode ser resolvido depende essencialmente da qualidade e do intervalo de aquisição dos dados durante os transientes

O método de mínimos quadrados utilizado neste trabalho basicamente segue o modelo matemático de Levenberg-Marquandt [4], o qual requer as derivadas da variável dependente (potência relativa) com relação aos parâmetros a serem ajustados,  $\beta_i$  e/ou  $\lambda_i$ , e uma estimativa inicial desses parâmetros. As derivadas parciais, por sua vez, requerem a solução das raízes da equação "Inhour" para cada transiente. Esse processo é iterativo. Para cada iteração, as raízes remanescentes da equação "Inhour" são calculadas e novas estimativas de  $\beta_i$  e/ou  $\lambda_i$  são determinadas bem como a soma dos quadrados dos desvios para todo o conjunto de transientes. O processo continua até que a soma dos quadrados dos desvios seja minimizada.

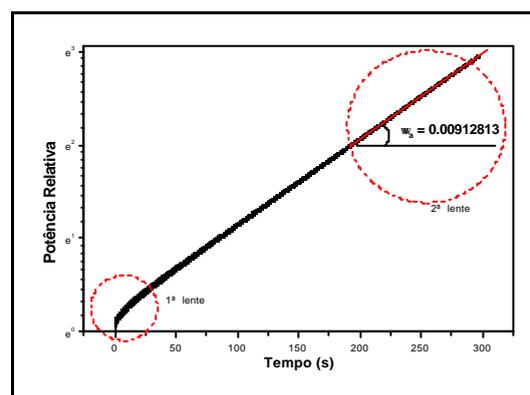
### 3. DESCRIÇÃO DO EXPERIMENTO REALIZADO NO REATOR IPEN/MB-01

A configuração padrão do reator IPEN/MB-01 (28 x 26 varetas) foi utilizada para todos os experimentos realizados neste trabalho. As perturbações para produzir transientes foram efetuadas na posição central do reator. Um tubo vazio de aço inox 304 de mesmo diâmetro e

espessura das varetas combustíveis foi utilizado para esse propósito. Dentro desse tubo foi colocado um espaçador para acomodar uma amostra pequena de Ag-In-Cd (80 % Ag, 15 % In e 5 % Cd). O espaçador foi projetado de tal forma que sua altura pudesse ser ajustada, permitindo a variação na reatividade da amostra. A amostra de Ag-In-Cd foi colocada próximo à região central do núcleo ativo de forma a otimizar sua reatividade. Os transientes foram produzidos pela rápida remoção dessa amostra do núcleo ativo. Como detetor de nêutrons foi utilizada uma câmara de ionização compensada cuja corrente, proporcional ao fluxo local de nêutrons, é convertida em sinal de voltagem por um eletrômetro.

De acordo com Spriggs, existem quatro condições experimentais que devem ser satisfeitas para a execução satisfatória do experimento: a) um sistema de remoção rápida (tempo de remoção menor que 20 ms); b) um sistema de aquisição de dados de alta velocidade; c) determinação precisa do ponto inicial do transiente, isto é, o instante a partir do qual a solução do problema consiste de uma somatória de exponenciais, e d) determinação precisa de uma das raízes da equação "Inhour". O sistema projetado para a remoção rápida da amostra de Ag-In-Cd possui tempo de remoção da ordem de 6 ms, mais do que adequado aos propósitos do experimento. O sistema de aquisição de dados consiste de um DaqCard 16XE-50 ajustado com taxa de amostragem de 1 kHz, isto é, um dado é adquirido a cada 1 ms. Esse aspecto é importante para as condições (b) e (c) do experimento. A condição (d) é plenamente satisfeita pela aquisição dos dados num período longo de tempo (> 5 minutos).

O experimento pode ser descrito resumidamente como segue. Inicialmente o reator é posto no estado crítico, a 1 W de potência, com a amostra absorvedora no interior do núcleo. Após estabilização do reator, o sistema de controle automático é desligado (a operação ocorre em modo manual) e o sistema de aquisição de dados é ativado. Os dados são coletados por pelo menos 5 minutos antes da remoção da amostra do núcleo. Este aspecto garante a normalização adequada da potência antes do transiente. A amostra absorvedora é então retirada do núcleo do reator e o transiente começa. Finalmente, os dados são adquiridos em um intervalo de tempo suficientemente longo de modo que todos os eventos necessários para a análise sejam contemplados. A figura 1 mostra um exemplo dos dados experimentais coletados neste trabalho.



**Figura 1. Potência Relativa em função do Tempo**

A figura 1 mostra claramente a mudança rápida da densidade de potência relativa no começo do transiente, bem como a região assintótica de onde é determinada a primeira raiz da equação "Inhour",  $\omega_a$ . No total foram produzidos 52 transientes com reatividades entre 40 a

110 pcm aproximadamente. Esses 52 conjuntos constituem os dados experimentais básicos para a determinação dos parâmetros efetivos de nêutrons atrasados.

#### 4. RESULTADOS EXPERIMENTAIS

O procedimento de ajuste adotado no presente trabalho considera 6 e 8 grupos de precursores de nêutrons atrasados. Em todos os casos o tempo de geração de nêutrons prontos foi fixado em 32  $\mu$ s, valor este obtido experimentalmente em trabalho prévio [5]. Devido à complexidade de comparação entre teoria e experimento, este trabalho considerará um procedimento simplificado. Cada biblioteca de dados nucleares possui seu próprio conjunto de constantes de decaimento, o qual depende do nuclídeo fissionável ou físsil. A única exceção é a versão revisada da ENDF/B-VI efetuada em LANL, a qual possui o mesmo conjunto de constantes de decaimento para o  $^{235}\text{U}$  e o  $^{238}\text{U}$ . O procedimento adotado no processo dos mínimos quadrados será o de fixar as constantes de decaimento do nuclídeo fissionável principal da biblioteca de dados nucleares em consideração e ajustar as abundâncias relativas. Por principal entende-se o nuclídeo que mais contribui para a taxa de fissão. No caso específico do reator IPEN/MB-01, o  $^{235}\text{U}$  é o mais importante porque cerca de 97 % do total de fissões são provocadas por esse nuclídeo. Portanto, a escolha das constantes de decaimento do  $^{235}\text{U}$  não impõe nenhuma restrição severa à análise do problema e permite a comparação entre teoria e experimento.

O ajuste das constantes de decaimento foi também efetuado no modelo de seis grupos mas, neste caso, foi considerado um processo iterativo. Inicialmente, as abundâncias relativas foram fixadas e as constantes de decaimento ajustadas. Subseqüentemente, com as novas estimativas das constantes de decaimento, procede-se o ajuste das abundâncias relativas. Esse processo é repetido até atingir convergência em todos os parâmetros envolvidos. A tabela 1 mostra as constantes de decaimento provenientes do processo iterativo, as abundâncias relativas obtidas fixando-se as constantes de decaimento da biblioteca ENDF/B-VI (LANL Revision), ambos no modelo de seis grupos, e as abundâncias relativas no modelo de oito grupos (os números entre parênteses representam as incertezas). Neste último caso, foram consideradas as constantes de decaimento da referência [2]. Os 52 transientes foram analisados simultaneamente utilizando o procedimento de mínimos quadrados descrito anteriormente. A intenção aqui é mostrar o grau de precisão dos parâmetros medidos bem como mostrar que a determinação da primeira constante de decaimento em um experimento “in-pile” é consistente com a do  $^{87}\text{Br}$ . De um modo geral, as incertezas aumentam conforme as constantes de decaimento dos grupos de precursores de nêutrons atrasados aumentam. Esse aspecto é previsível porque a potência relativa se torna menos sensível aos parâmetros de nêutrons atrasados à medida que as meias-vidas diminuem. A tabela 1 também mostra que as incertezas para o modelo de seis grupos são bastante adequadas para verificar a aplicabilidade de qualquer biblioteca de dados nucleares. No modelo de oito grupos as incertezas aumentam drasticamente devido ao maior número de parâmetros que são resolvidos.

**TABELA 1. PARÂMETROS CINÉTICOS EFETIVOS DO REATOR IPEN/MB-01**

Grupo	$\lambda_i$ ( $\text{s}^{-1}$ )	$\beta_i/\beta_{\text{eff}}$	$\beta_i/\beta_{\text{eff}}$
1	$1,2456 \times 10^{-2}$ (0,25%)	0,0510 (1,18%)	0,0462 (2,49%)
2	$3,2738 \times 10^{-2}$ (0,34%)	0,1908 (1,21%)	0,0940 (3,00%)
3	$1,2084 \times 10^{-1}$ (0,58%)	0,2061 (1,21%)	0,1307 (2,84%)
4	$3,2814 \times 10^{-1}$ (0,61%)	0,3305(1,27%)	0,1642 (2,85%)
5	1,7971 (4,45%)	0,1537 (1,69%)	0,3430 (2,60%)

6	3,87 (fixo)	0,0679 (4,03%)	0,092 (9,00%)
7	-	-	0,1030 (10,57%)
8	-	-	0,0275 (31,10%)

#### 4.1. Comparação Teoria/Experimento

A comparação Teoria/Experimento para as abundâncias relativas é mostrada na figura 2. Os valores calculados foram obtidos utilizando o sistema HAMMER-TECHNION/ CITATION e as três principais bibliotecas de dados nucleares básicos: ENDF/B-VI.8, sua versão revisada em LANL e a JENDL 3.3. A figura 2 mostra que as abundâncias relativas teóricas são sistematicamente subestimadas para o primeiro grupo de precursores. A versão corrente da ENDF/B-VI, a saber versão 8, apresenta o pior desempenho com desvios de até 26%. Contudo, sua versão revisada em LANL apresenta excelente progresso e a concordância com os valores experimentais pode ser considerada muito boa. O melhor desempenho é devido à biblioteca JENDL 3.3 a qual mostra concordância excelente com o experimento.

A figura 2 também mostra a comparação Teoria/Experimento para o modelo de 8 grupos de precursores sendo as constantes de decaimento dadas por [2] e mantidas fixas durante o ajuste das abundâncias relativas. Esta comparação foi incluída para demonstrar que esta técnica de medida "in-pile" pode fornecer importantes dados integrais mesmo em um modelo de 8 grupos.

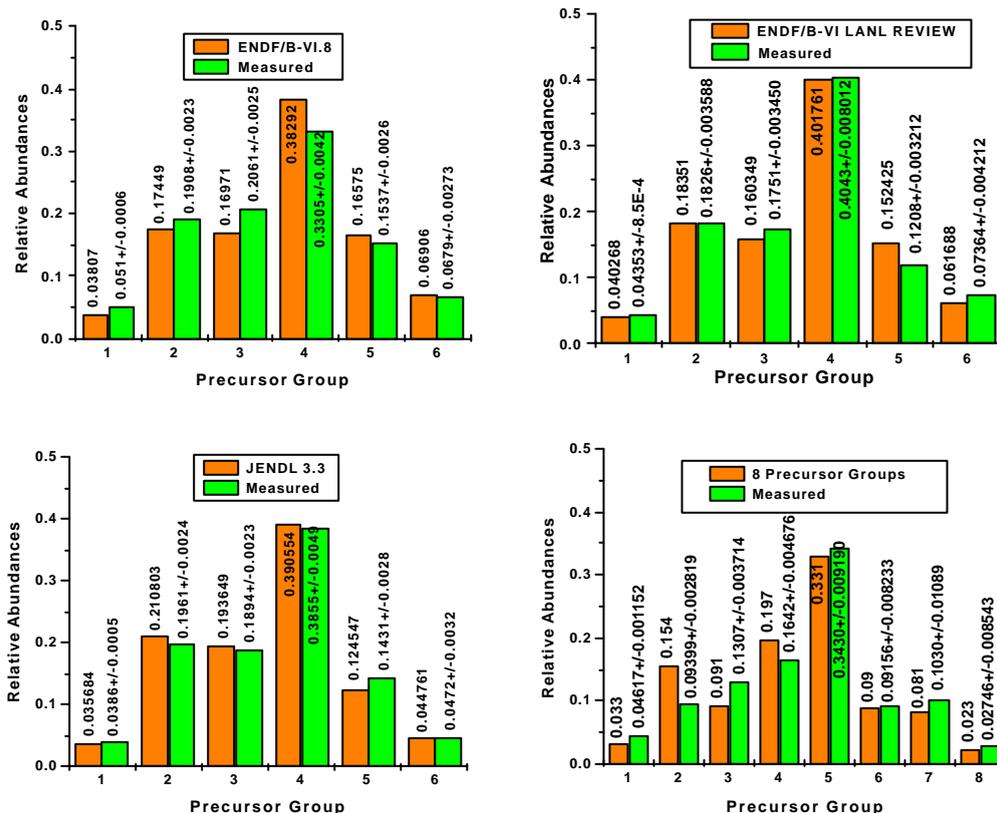


Figura 2. Comparação Teoria/Experimento para as Abundâncias Relativas

## 5. CONCLUSÕES

Os resultados deste experimento indicam que os parâmetros cinéticos teóricos da biblioteca ENDF/B-VI-8 não são totalmente adequados para descrever o comportamento dinâmico do reator IPEN/MB-01. Isso ocorre devido ao alto valor da constante de decaimento do primeiro grupo, cujo valor é  $0,01334 \text{ s}^{-1}$ . O valor medido é de  $0,012456 \text{ s}^{-1}$  e está em excelente acordo com a constante de decaimento do  $^{87}\text{Br}$ , o único precursor pertencente ao primeiro grupo. A versão revisada em LANL da ENDF/B-VI-8 possui o valor de  $0,012498 \text{ s}^{-1}$ , o qual apresenta melhor concordância. O melhor valor, de acordo com este trabalho, é o da biblioteca JENDL 3.3 ( $0,01244 \text{ s}^{-1}$ ), a qual apresenta a melhor concordância com o experimento de um modo geral.

Os resultados são de boa qualidade, apresentando incertezas relativamente baixas, e podem ser muito úteis para validar técnicas computacionais, verificar previsões teóricas das probabilidades de emissão e "yield" dos precursores e, de um modo geral, melhorar os dados nucleares básicos relativos aos nêutrons atrasados contidos nas principais bibliotecas.

Como um comentário final, deve ser ressaltado que a constante de decaimento do sexto grupo, de menor meia-vida, é de difícil obtenção com a técnica de múltiplos transientes. Isso ocorre pois no início do transiente os dados possuem flutuação estatística elevada devido à baixa corrente fornecida pelo detetor de nêutrons quando o reator está operando a apenas 1 W. Um procedimento que pode, em princípio, eliminar esta restrição é o de aumentar a potência máxima (100 W) do reator IPEN/MB-01 e começar o experimento em uma potência tal que a flutuação do sinal de corrente não seja tão acentuada. A questão do aumento da potência do reator já está em apreciação pelos responsáveis e espera-se que em futuro próximo o experimento possa ser realizado em condições mais adequadas.

## 6. REFERÊNCIAS

1. The entire volume of Progress in Nuclear Energy, **41**, (2002).
2. SPRIGGS, G. D.; CAMPBELL, J. M.; PIKSAIKIN, V. M., "An 8-Group Delayed Neutron Model Based on a Consistent Set of Half-lives", *Progress in Nuclear Energy*, **41**, 223-251, (2002).
3. SPRIGGS, G. D., "In-Pile Measurement of the Decay Constants and Relative Abundances of Delayed Neutrons", *Nucl. Sci. Eng.*, **114**, 342-351 (1993).
4. MOORE, R. H., and ZEIGLER, R. K. "The Solution of the General Least Squares Problem with Special Reference to High-Speed Components", LA-2367, Los Alamos Scientific Laboratory (Mar. 1960).
5. SANTOS, A. et al., "The Experimental Determination of the Effective Delayed Neutron Parameters:  $\beta_{\text{eff}}$ ,  $\beta_{\text{eff}}/\Lambda$  and  $\Lambda$  of the IPEN/MB-01 Reactor", PHYSOR 2004 – The Physics of Fuel Cycles and Advanced Nuclear Systems: Global Developments, Chicago, Illinois, USA (April 2004).