

**ESTUDO PRELIMINAR DOS PARÂMETROS DE DIFUSÃO
DA ÁGUA PARA NEUTRONS TÉRMICOS PELO MÉTODO DA
FONTE PULSADA**

por

MYRIAN DE CARVALHO e SILVESTRE PAIANO SOBRINHO

PUBLICAÇÃO I.E.A. N.º 107

Novembro — 1965

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal 11049 (Pinheiros)
CIDADE UNIVERSITÁRIA "ARMANDO DE SALLES OLIVEIRA"
SÃO PAULO — BRASIL

ESTUDO PRELIMINAR DOS PARÂMETROS DE DIFUSÃO DA ÁGUA PARA NEUTRONS
TÉRMICOS PELO MÉTODO DA FONTE PULSADA

por

Myrian de Carvalho e Silvestre Paiano Sobrinho

Divisão de Física de Reatores - Instituto de Energia Atômica
São Paulo, Brasil

Apresentado ao "Study Group Meeting on the Utilization of Research
Reactors" - promovido pela Agência Internacional de Energia Atômica
Novembro 1963, São Paulo

Publicação IEA nº 107

Novembro - 1965

Comissão Nacional de Energia Nuclear

Presidente: Prof. Luiz Cintra do Prado

Universidade de São Paulo

Reitor: Prof. Luiz Antonio da Gama e Silva

Instituto de Energia Atômica

Diretor: Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni

Conselho Técnico-Científico do IEA

Prof. Hélio Lourenço de Oliveira	}	pela USP
Prof. Walter Borzani		
Prof. Rui Ribeiro Franco	}	pela CNEN
Prof. Theodoro H.I. de Arruda Souto		

Divisões Didático-Científicas:

Div. de Física Nuclear: Prof. Marcello D.S. Santos

Div. de Engenharia Nuclear: Eng. Pedro Bento de Camargo

Div. de Ensino e Formação: Prof. Luiz Cintra do Prado
(licenciado)

Div. de Radioquímica: Prof. Fausto Walter de Lima

Div. de Radiobiologia: Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni

Div. de Metalurgia Nuclear: Prof. Tharcísio D.S. Santos

Div. de Engenharia Química: Prof. Kazimierz J. Brill

ESTUDO PRELIMINAR DOS PARÂMETROS DE DIFUSÃO DA ÁGUA PARA NEUTRONS

TERMICOS PELO MÉTODO DA FONTE PULSADA

Myrian de Carvalho e Silvestre Paiano Sobrinho

Instituto de Energia Atômica, São Paulo, S.P., Brasil

RESUMO

Os parâmetros de difusão para neutrons térmicos na água foram medidos à temperatura ambiente (20° C) pela técnica de fonte pulsada. Curvaturas geométricas variando entre .078 e .201 cm^{-2} foram consideradas. As curvas de decaimento e a reta λ (B^2) foram ajustadas por um método de mínimos quadrados, obtendo-se os valores $\bar{v} \Sigma_a = (4947 \pm 208) \text{sec}^{-1}$ e $D = (33270 \pm 1647) \text{cm}^2/\text{sec}$. O arranjo experimental é descrito. A experiência permitiu um levantamento bastante completo dos problemas relacionados com a técnica de medida assim como dos métodos de análise dos valores experimentais.

RESUMÉ

Les paramètres de diffusion des neutrons thermiques dans l'eau ont été mesurés à la température ambiante (20° C) par une méthode de neutrons pulsés. On a considéré des facteurs géométriques (B^2) variant entre .078 et .201 cm^{-2} . Les courbes de décroissance et la droite λ (B^2) ont été ajustées para une méthode de moindres carrés donnant $\bar{v} \Sigma_a = (4947 \pm 208) \text{sec}^{-1}$ et $D = (33270 \pm 1647) \text{cm}^2/\text{sec}$. On donne une description du dispositif expérimental. L'expérience a permis une étude complète des problèmes liés aux techniques de mesure ainsi qu'aux méthodes d'analyse des résultats expérimentaux.

ABSTRACT

The thermal neutron diffusion parameters of water were measured at room temperature (20°) by the pulsed neutron source method. Geometrical bucklings varying from .078 to .201 cm^{-2} were considered. The decay curves and the straight line $\lambda (B^2)$ were fitted by a least squares method giving $\bar{v} \Sigma_a = (4947 \pm 208) \text{sec}^{-1}$ and $D = (3327 \pm 1647) \text{cm}^2/\text{sec}$. The experimental arrangement is described. The experiment permitted a quite complete survey of the problems connected to the measurement technique as well as to the methods of data analysis.

I - INTRODUÇÃO

O estudo da difusão de nêutrons térmicos pelo método pulsado permite a obtenção direta de dois parâmetros - a seção de choque de absorção Σ_a e o coeficiente de difusão D - enquanto que um único parâmetro - o comprimento de difusão L - é obtido em processos estacionários. O método pulsado geralmente possibilita o uso de sistemas físicos de pequenas dimensões, o que é um aspecto interessante do ponto de vista prático.

Para o desenvolvimento e utilização das técnicas não estacionárias no estudo de meios moderadores e multiplicadores, a Divisão de Física de Reatores do I.E.A. possui um acelerador eletrostático modelo PN-400 da High Voltage Engineering Corporation.

O experimento efetuado com a água pode ser considerado básico para estudo e desenvolvimento do método, porque há muitas medidas análogas já publicadas, servindo como termo de comparação e também devido à importância intrínseca da água na Física de Reatores.

Considerando os resultados das medidas efetuadas em outros centros, a precisão dos resultados aqui apresentados está aquém da expectativa. Contudo, foi possível efetuar um levantamen

to dos problemas relacionados à técnica, não somente do ponto de vista experimental mas também em relação à análise dos dados.

II - TEORIA

Se um jato de neutrons rápidos é injetado num meio moderador, após a termalização o balanço de neutrons será descrito pela equação de difusão dependente do tempo, na ausência de fontes, cuja solução é (A1)

$$\phi(r, t) = \sum_{l, m, n} K_{l, m, n} S_{l, m, n} e^{-\lambda_{l, m, n} t} \quad \text{II.1}$$

onde $K_{l, m, n} S_{l, m, n}$ dão a distribuição espacial térmica para $t = 0$. Os $S_{l, m, n}$ são as auto funções da equação de Helmholtz

$$(\nabla^2 + B^2) \phi = 0 \quad \text{II.2}$$

e a sua forma depende apenas da geometria do moderador, uma vez dadas as condições de contorno usuais da teoria da difusão⁽¹⁾.

Para qualquer instante depois do estabelecimento do equilíbrio entre o gás de neutrons e o meio, vale

$$\lambda_{l, m, n} = \bar{v} \Sigma_a + DB_{l, m, n}^2 \quad \text{II.3}$$

onde \bar{v} é a velocidade média da distribuição maxweliana de neutrons térmicos, D é o coeficiente de difusão para neutrons térmicos no equilíbrio e Σ_a é a secção de choque macroscópica de absorção.

(1) $\phi = 0$ na fronteira extrapolada do meio.

B_{lmm}^2 , a curvatura geométrica do sistema, é uma função crescente dos índices⁽²⁾. Isto implica em que, a partir de um certo valor de t ⁽³⁾ a única contribuição importante para o fluxo será a da harmônica fundamental ($l = m = n = 0$). Então, o comportamento temporal da população de neutrons será descrito por

$$\exp (- \lambda (B^2) t) \quad \text{II.4}$$

com

$$\lambda (B^2) = \bar{v} \Sigma_a + DB^2 \quad \text{II.5}$$

onde fizemos

$$B_{000}^2 = B^2 \quad \text{e} \quad \lambda_{000} = \lambda$$

Assim, λ é uma função linear de B^2 e os coeficientes da reta são $\bar{v} \Sigma_a$ e D . A determinação experimental de vários pares (λ, B^2) permite a obtenção daqueles parâmetros.

Contudo, a dependência linear é válida apenas num certo intervalo de valores de B^2 . Para grandes valores de B^2 (aqui, o termo "grande" depende do material em estudo), $\lambda(B^2)$ toma forma parabólica. Um maior escape dos neutrons mais energéticos do espectro maxwelliano diminui a temperatura da população de neutrons. Pode-se obter uma melhor descrição do processo considerando-se uma teoria de dois grupos. Com tal teoria, $\lambda(B^2)$ passa a ser dado por

$$\lambda (B^2) = \bar{v} \Sigma_a + DB^2 - CB^4 \quad \text{II.6}$$

O coeficiente C é o coeficiente de resfriamento de difusão (diffusion cooling coefficient.) (A1).

(2) Para geometrias cilíndricas, $B_{mn}^2 = \left(\frac{j^{(m)}}{\bar{R}} \right)^2 + \left(\frac{(2n+1)}{\bar{H}} \right)^2$ onde \bar{R} e \bar{H} são as dimensões extrapoladas do sistema e $j^{(m)}$ é o zero de ordem m da função de Bessel de ordem zero.

(3) Este instante pode ser calculado se os coeficientes de II.1 são conhecidos explicitamente.

III - ARRANJO EXPERIMENTAL

Descrição do equipamento

A figura 1 é um diagrama de bloco do arranjo. O alvo é isolado de terra. A incidência de um jato de ions produz um pulso elétrico. Do pré-amplificador o pulso vai para o osciloscópio monitor e para a unidade A1 que é um amplificador-discriminador e fornece pulsos formados para o disparo do analisador. O período é fixado, e escolhido de modo a permitir o completo decaimento da população de neutrons antes do próximo pulso. Naturalmente, este intervalo de tempo deve ser suficiente para que o ciclo de análise se processe completamente. O sinal do detetor (BF_3) vai para um scaler, o qual serve como monitor e também fornece pulsos formados para o analisador. O micro-amperímetro dá uma leitura da corrente média.

Na figura 2 dá-se o esquema do arranjo fonte-moderador-detetor. No fundo do cilindro foi colocada uma máscara de cádmio, cortada segundo a função $rJ_0\left(\frac{2.405r}{R}\right)$ (DS2). Com esta máscara espera-se que todas as harmônicas radiais, com exceção da fundamental sejam eliminadas. O detetor de BF_3 (45 cm comprimento, 5 cm diâmetro) foi posicionado na base do cilindro. O recipiente usado foi um cilindro de alumínio, colocado no interior de uma caixa cujas paredes consistiam de uma mistura de ácido bórico e parafina, blindadas com cádmio. As diversas curvaturas geométricas foram obtidas variando-se o nível de água.

Fonte de neutrons

Foram acelerados deuterons a 200 kv contra um alvo de trítio.

As características do pulso foram as seguintes:

período	1100	μseg
duração	20	μseg
amplitude	65	μA
rise-time	6	μseg

Analizador de tempos

Um analisador TMC de 256 canais foi usado, com a sua unidade de tempo-de-vôo, que tem um tempo de armazenamento de 16 μ seg, permitindo a contagem de mais de um neutron por pulso.

A unidade 220A do analisador (fig. 1) foi usada para pre-determinar o número de "bursts".

IV - RESULTADOS E MÉTODOS DE ANÁLISE

Análise das curvas de decaimento

As curvas de decaimento foram analisadas pelo método de mínimos quadrados (ML). A expressão a ser minimizada é

$$S^2 = \frac{1}{n-k} \sum_{i=1}^n \left(Y_i - Y(t_i) \right)^2 \cdot w_i$$

onde n = nº de pontos experimentais

k = número de parâmetros

Y_i = pontos sôbre a curva calculada

$Y(t_i)$ = valores experimentais

$w_i = 1/\sigma_{Y_i}^2$ = pesos

σ_{Y_i} = desvio padrão em $Y(t_i) = \sqrt{Y(t_i)}$

Os pontos no eixo dos tempos foram considerados sem erros e cada canal foi referido pelo seu instante inicial. As curvas de decaimento foram obtidas com canais de 4 μ seg de largura. As análises foram efetuadas com um retardo mínimo de 80 μ seg, a partir do início do pulso.

O fato de alguns canais consecutivos permanecerem fechados após a contagem de um evento, (devido ao tempo de armazenamento) leva a uma correção das perdas de contagem, que, em certos casos é importante. Esta correção é efetuada normalizando-se as con

tagens em cada canal referindo-as ao número de ciclos de análise. Outra correção foi feita para o tempo de resolução do conjunto BF₃ - Pré Amplificador-Scaler.

Os canais foram grupados dois a dois, ou três a três para o ajuste por mínimos quadrados.

As curvas de decaimento foram ajustadas para uma ou duas exponenciais, mais um "background" constante.

Ajuste da função $\lambda(B^2) = \bar{v} \sum_a + DB^2$

Neste caso, a expressão minimizada foi

$$S^2 = \frac{1}{n-k} \sum (W_B V_B^2 + W_\lambda V_\lambda^2)$$

onde W_B e W_λ são, respectivamente, os pesos nas coordenadas B^2 e λ e são iguais ao inverso do quadrado dos erros. V_B e V_λ são os desvios dos valores experimentais em relação à curva calculada.

Os erros no raio do cilindro e sobre os volumes de água foram avaliados para o cálculo dos erros em B^2 . Possivelmente, os erros nos volumes foram superestimados em 30%, mas a sua correção não implicaria necessariamente num melhor ajuste dos dados.

Para ambos os ajustes foram escritos programas em linguagem Fortran para o Computador IBM-1620 do Centro de Cálculo Numérico da Escola Politécnica da USP. O programa para análise das curvas de decaimento foi escrito com base no programa de Moscati (MI). As modificações introduzidas visavam adaptar o programa às nossas condições experimentais.

Resultados

Na figura 3 é dado λ_{00} (constante de decaimento fundamental) em função da curvatura geométrica B_{00}^2 . A tentativa de ajuste dos valores experimentais por uma curva $a + bx + cx^2$ mos-

trou serem os dados insuficientes para a caracterização de uma parábola.

A tabela I é um resumo dos valores experimentais.

Devido ao uso da máscara de cádmio segundo a função $rJ_0\left(\frac{2.405 r}{R}\right)$, deve-se esperar apenas a presença de harmônicas axiais ($m=0, n=1, 2, 3, \dots$) além da componente fundamental. A figura 4 mostra as componentes de segunda ordem obtidas no nosso experimento, em função de B_{01}^2 . A linha reta foi construída com $\bar{v} \Sigma_a$ e D dados na figura 3, e pode ser considerada como uma previsão semi-teórica para os valores de λ_{01} .

A completa discordância dos pontos experimentais com a curva calculada indica que, provavelmente, os pontos experimentais da figura 4 representam o decaimento devido ao espalhamento nas paredes do laboratório.

V - CONCLUSÕES

Comparando-se os resultados com os já publicados por outros autores (vide tabela I no artigo LBL e RSW1) pode-se observar que os desvios padrão em $\bar{v} \Sigma_a$ e D neste experimento são muito altos. Os desvios dos pontos experimentais em relação à curva calculada chegam a 4%. Nas medidas efetuadas por López e Beyster (LBL) há um desvio de 1% no máximo.

Além disso, foram considerados apenas valores de B^2 entre .08 e .201 cm^{-2} ao passo que outros autores exploram intervalos mais largos. Naturalmente seria interessante manter a densidade dos pontos experimentais no caso de aumento do intervalo de valores de B^2 .

Para avaliação da qualidade dos nossos resultados, uma comparação com o experimento de (LBL) foi feita. Foram selecionados daquele trabalho, os valores de λ_{00} compreendidos na região das curvaturas geométricas por nós explorada. A análise numérica

daqueles valores pelo método de mínimos quadrados forneceu aos parâmetros desvios comparáveis aos por nós obtidos.

Relativamente aos valores λ_{00} , acreditamos que os desvios podem ser reduzidos, melhorando-se a estatística de contagem, que nunca foi além de 10^5 contagens no primeiro canal. Razões de Proteção Radiológica foram um fator importante nesta limitação⁽⁴⁾. Além disso, se estamos realmente detetando a "meia vida do laboratório", conforme sugerem os dados da figura 4, é razoável esperar-se que este ruído de fundo variável com o tempo esteja presente nas curvas ajustadas para uma exponencial (isto é, a componente fundamental). Significa que a influência do ruído de fundo não pode ser avaliada com precisão. Em conclusão, a eliminação do ruído de fundo é um fator importante para melhoria da qualidade dos nossos resultados.

AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem ao Sr. H.R. Franzen e à Srta. W.S. C. Hehl pela instalação do Van de Graaff e a série de experiências preliminares que efetuaram; ao Sr. R. Brenner que chefiou a equipe de Eletrônica e ao Sr. J.M. Cohenca, cuja colaboração no estudo comparativo de métodos de análise dos dados experimentais e preparação dos programas em Fortran foi essencial.

Os autores são gratos ao Prof. Paulo Saraiva de Toledo pela orientação durante a realização do trabalho.

(4) Atualmente, com a remoção do Van de Graaf para um galpão externo, estas restrições serão eliminadas.

BIBLIOGRAFIA

- A1 - A.V. Antonov e col. Proc. Intern. Conf. Peaceful - Uses of Atomic Energy, Geneva vol. V, pag. 3 (1955)
- DS2 - G.F. Von Dardel e N.G. Sjöstrand, Progr. in Nuclear Energy, Série I, vol. I (1958)
- M1 - G. Moscati, Tese de Doutoramento apresentada à F.F.C.L. U.S.P. (1962)
- LB1 - W.M. Lopez e J.R. Beyster, Nucl. Sci. Eng. vol. 12, pag. 190 (1962)
- HSW1 - R.S., Hall, S.A. Scott, J. Walker, Proc. Phys. Soc., vol. 79, pag. 257, (Fev. 1962)
- D1 - Deming, W.E., Statistical Adjustment of Data, J. Wiley & Sons, Londres (1948)

TABELA IResumo dos Resultados

B_{00}^2 (cm ⁻²)	λ_{00} (seg ⁻¹)	λ_{01} (seg ⁻¹)
.0780 * .0014	7652 * 123	16700 * 809
.0877 .0017	8003 109	19521 1278
.1012 .0021	8036 134	17482 1043
.1054 .0022	8340 115	18019 1148
.1171 .0026	8593 191	17919 1996
.1254 .0029	9235 50	27730 2298
.1431 .0036	9286 287	17117 3238
.1608 .0042	10288 94	22317 5260
.1807 .0055	11145 23	- - - -
.2010 .0057	11580 19	- - - -

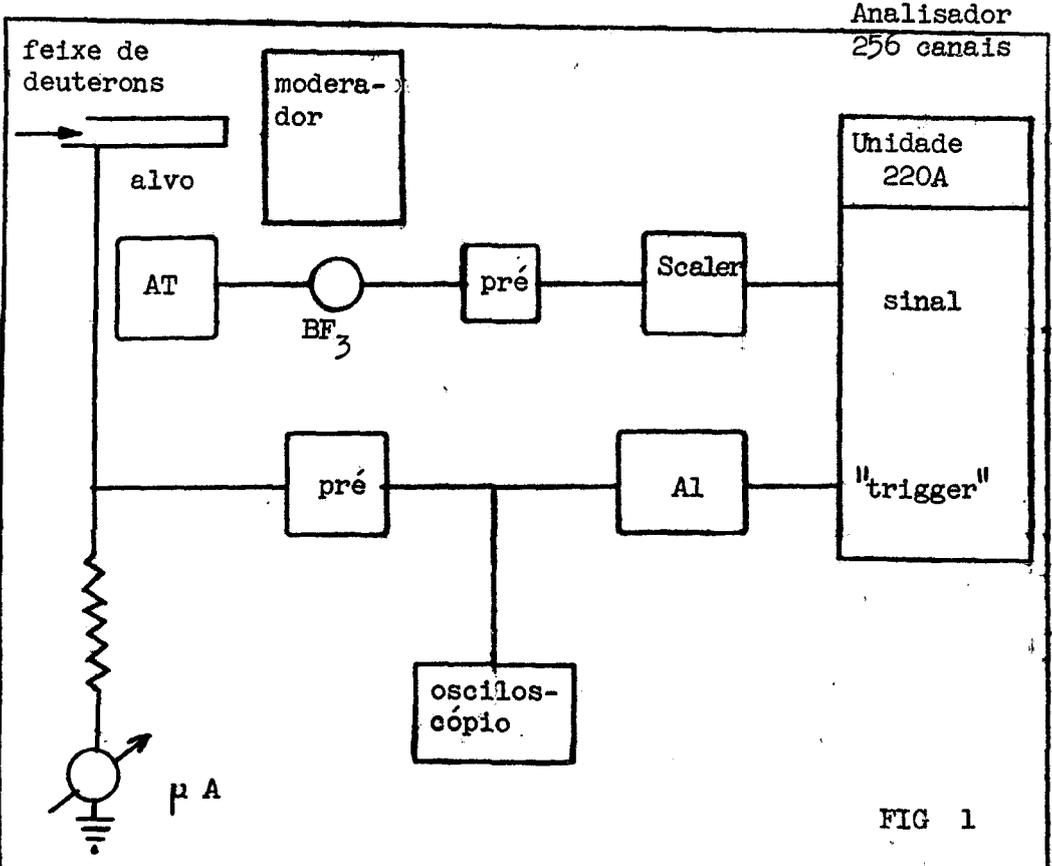


FIG 1

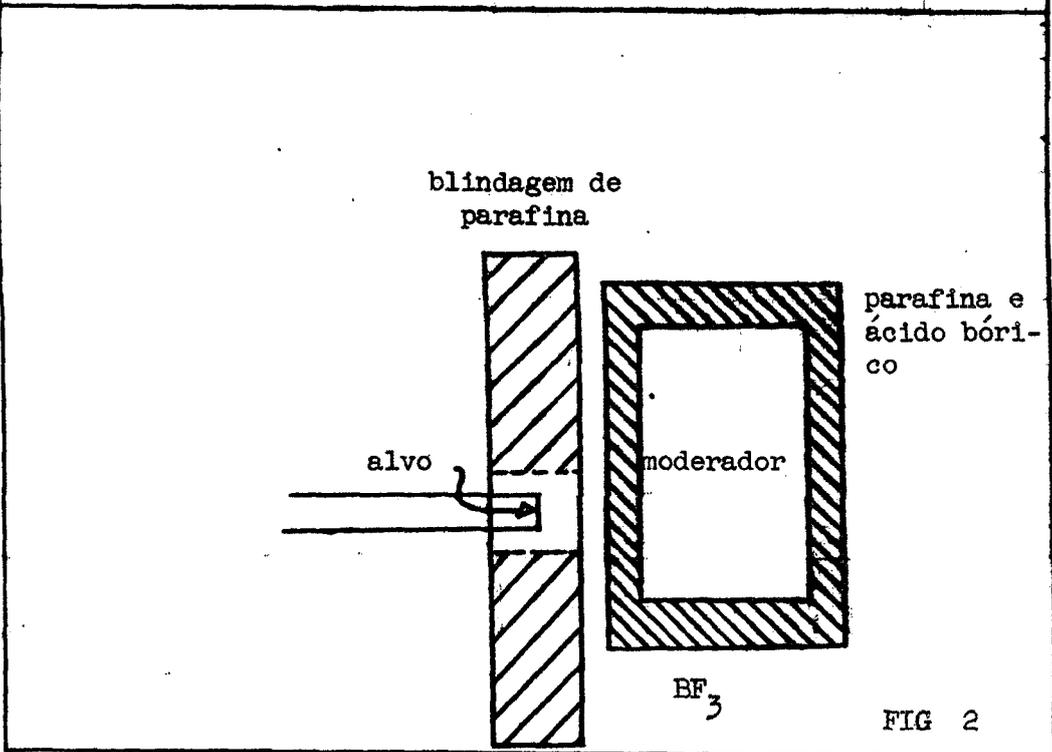


FIG 2

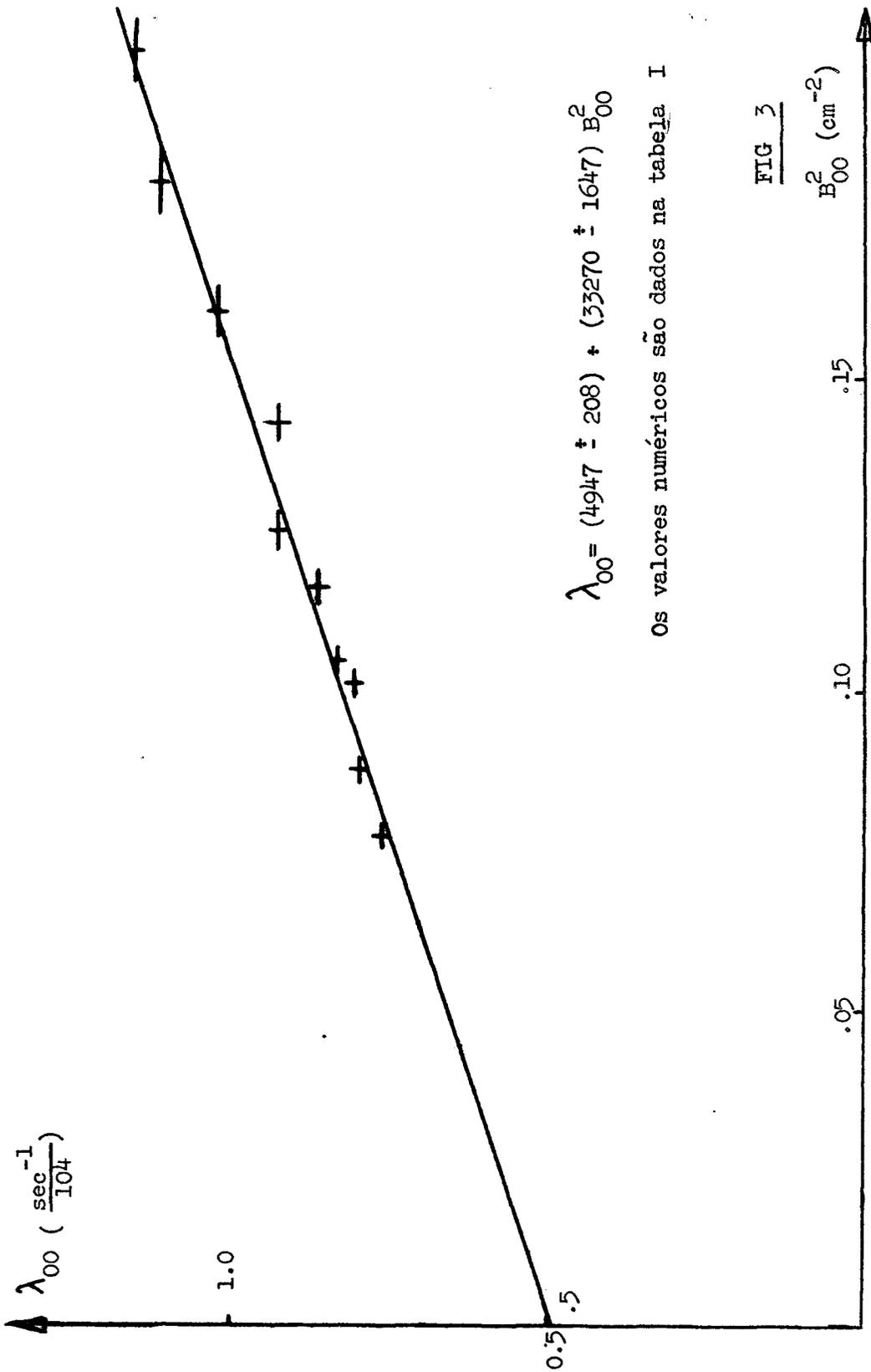


FIG 3

B_{00}^2 (cm⁻²)

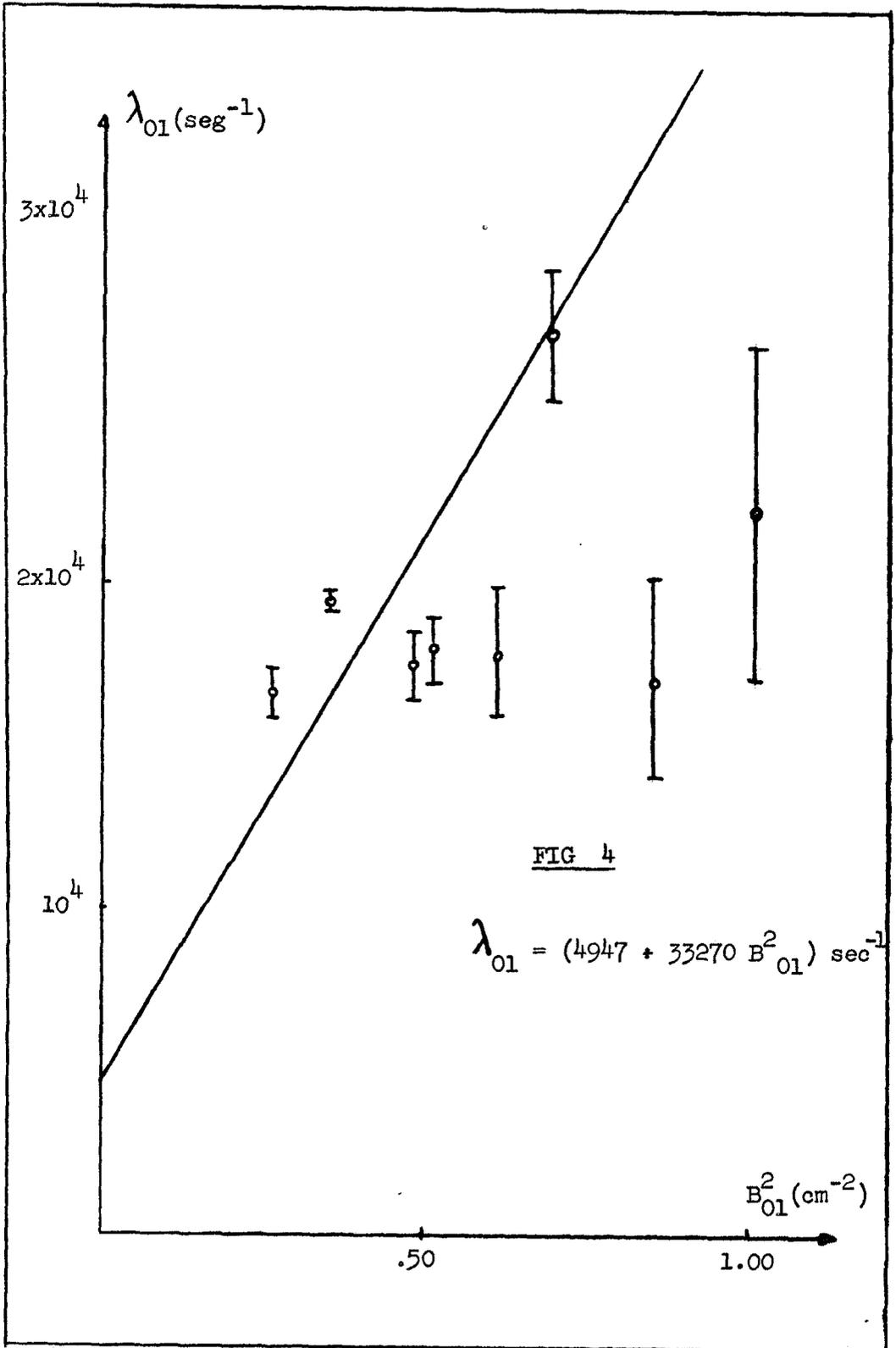


FIG 4

$$\lambda_{01} = (4947 + 33270 B_{01}^2) \text{ sec}^{-1}$$