

02.69.01

C.N.E.A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
NO 1	AÑO 1969

CNEA - 243

REPUBLICA ARGENTINA

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA

PERTURBACION DEL FLUJO TERMICO DE NEUTRONES
POR CILINDROS DE ORO

por

M. Barrachina y R. Radicella

BUENOS AIRES

1969

№ 0391

REPUBLICA ARGENTINA
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA

PERTURBACION DEL FLUJO TERMICO DE NEUTRONES
POR CILINDROS DE ORO

por

M. Barrachina y R. Radicella

BUENOS AIRES

1969

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION

PERTURBACION DEL FLUJO TERMICO DE NEUTRONES
POR CILINDROS DE ORO

M. Barrachina* y R. Radicella**

RESUMEN

Se ha determinado la perturbación del flujo neutrónico producida por cilindros de oro de 0,6 cm de altura y de radios comprendidos entre 0,025 y 0,2 cm, irradiados en el grafito de la columna térmica del reactor RA-1. Por medición de la actividad específica superficial A_s y de la actividad media en el volumen A_v de los cilindros, en relación con una muestra ideal A_0 de referencia, se obtuvieron los valores de los factores de perturbación $H = \frac{A_s}{A_0}$, $G = \frac{A_v}{A_s}$ y $F = \frac{A_v}{A_0}$.

Los valores experimentales de F se han comparado con los calculados de acuerdo con las expresiones propuestas por Nisle, por Gilat y Gurfinkel y por Gubbins.

De los resultados obtenidos se concluye que el factor de perturbación total F , en nuestras condiciones experimentales, es interpretable cuantitativamente como la probabilidad de escape neutrónico de las muestras, siendo el mejor método de cálculo para cilindros finitos, el propuesto por Gubbins.

* Junta de Energía Nuclear. Madrid, España.

En misión en la CNEA, Buenos Aires, como experto del OIEA.

** Comisión Nacional de Energía Atómica. Buenos Aires, Argentina.

SUMMARY

The thermal neutron flux perturbations produced by gold samples have been determined by irradiating two sets of cylinders of equal height (0,6 cm) and different radii (0,025 to 0,2 cm) in the graphite thermal column of the RA 1 reactor. The average specific activity induced at the surface (A_s) and in the whole volume (A_v) of the cylinders, referred to an ideal standard sample (A_o), allowed the determination of the perturbation factors $H = \frac{A_s}{A_o}$, $G = \frac{A_v}{A_s}$ and $F = \frac{A_v}{A_o}$.

The experimental values of F were compared with those calculated according to Nisle, Gilat and Gurfinkel, and Gubbins method. In our case, it was found that the total flux perturbation factor F is correctly predicted by the neutron escape probability of the samples, the best fitting estimate obtained by Gubbins equation.

INTRODUCCION

Es bien conocido el hecho de que la actividad inducida por irradiación neutrónica en una muestra extensa, de un material de elevada sección eficaz de absorción, es inferior a la calculada de acuerdo al flujo de neutrones del lugar donde se realiza la irradiación. Este hecho es debido a una perturbación local del flujo neutrónico producida por la presencia de la muestra.

Es obvio el interés de este fenómeno en relación con la irradiación, en un reactor nuclear de blancos para la producción de radioisótopos y fuentes selladas o de muestras para análisis por activación. En estos casos, la actividad obtenida puede ser notablemente menor que el valor previsto, dependiendo de la forma y tamaño de la muestra, de su sección eficaz de absorción, del medio donde se verifica la irradiación, etc.

Las perturbaciones del flujo producidas por absorbentes han sido estudiadas por varios autores, habiéndose elaborado teorías satisfactorias para interpretar las actividades inducidas en detectores de flujo neutrónico en forma de discos delgados (1). En relación con el problema de estos detectores neutrónicos, se ha hecho uso frecuente de los siguientes factores para la corrección del flujo (2-5)

Factor de perturbación total, F , definido por

$$F = \frac{\Phi_v}{\Phi_o}$$

donde Φ_o es el flujo no perturbado y Φ_v es el valor medio del flujo en el volumen del absorbente. F puede desglosarse en

$$F = H \times G$$

donde H, factor de depresión externa del flujo, es igual a

$$H = \frac{\Phi_s}{\Phi_o}$$

siendo Φ_s el valor medio del flujo en la superficie del absorbente y G, el factor de autoapantallamiento,

$$G = \frac{\Phi_v}{\Phi_s}$$

Estos factores, definidos como relación de flujos, se determinan en la práctica como cocientes de las actividades inducidas en la superficie del absorbente (A_s), en la masa total de la muestra (A_v) y en un detector ideal del mismo material irradiado en la misma posición (A_o).

En muestras extensas irradiadas con neutrones térmicos cobra importancia, además, el fenómeno de "endurecimiento" del espectro de neutrones. En este caso, si la sección eficaz de la reacción sigue la ley $1/v$, la actividad inducida en la muestra se relaciona directamente con la densidad neutrónica. Por lo tanto, los factores F, H y G, determinados a partir de las actividades inducidas en muestras extensas, proporcionan información más bien acerca de las densidades neutrónicas que de los flujos anteriormente definidos.

En lo relativo a muestras extensas, en la bibliografía no abundan datos experimentales de los factores de perturbación mencionados. En cambio, existen algunos tratamientos teóricos del problema para el cálculo de F en muestras con diferentes formas geométricas (6) y en especial para cilindros finitos (7-9). Esta forma geométrica tiene particular importancia por ser la habitual de las muestras que se irradian para producción de radioisótopos.

En el presente trabajo hemos determinado experimentalmente el valor de F en cilindros finitos de oro irradiados con neutrones térmicos y hemos

comparado los valores obtenidos con las previsiones teóricas de Nisle (10), Gilat y Gurfinkel (11) y Gubbins (8). Se han determinado, además, los factores H y G y se discute el significado e importancia de los mismos en la descripción del fenómeno.

PARTE EXPERIMENTAL

a) Irradiación de cilindros de oro

Se irradiaron dos series iguales de ocho pequeños cilindros de oro, en el grafito de la columna térmica del reactor RA-1 de Buenos Aires. La altura de los cilindros fue en todos los casos de 0,6 cm y sus diámetros variaron entre 0,05 y 0,40 cm. Los ocho cilindros de cada serie se irradiaron simultáneamente en un "stringer" de la columna térmica, ubicándolos por pares en posiciones tangenciales con respecto al núcleo del reactor y colocando entre los dos cilindros del par una cápsula de "plexiglas" con una solución de oro como patrón de referencia del flujo no perturbado.

La ubicación relativa de las muestras y los patrones fue tal que no hubiera interferencia entre ellos. Para comprobarlo se irradió en un ensayo previo, un cilindro de oro de 0,40 cm de diámetro y 0,60 cm de altura, que llevaba, en su cara superior y perpendicular a su eje, un delgado alambre de oro de 7,0 cm de longitud. Después de la irradiación se determinó la actividad específica relativa del alambre en función de la distancia al eje del cilindro. De la figura 1 puede deducirse que la influencia de la muestra de oro sobre el flujo de neutrones se hace despreciable a más de 1,5 cm del centro del cilindro.

Se comprobó, en otras experiencias, que la variación del flujo en el "stringer", en sentido tangencial al núcleo del reactor, era completamente despreciable. En dirección radial, en cambio, la variación del flujo alcanzaba valores del 7% por centímetro en la zona utilizada, lo que nos llevó a emplear un patrón de flujo para cada par de muestras.

Las muestras patrón, cuya concentración en oro, perfectamente conocida, fue de aproximadamente 1 mg/ml, se irradiaron en pequeñas cápsulas cilíndricas de "plexiglas". Para poder estimar la corrección debida a la perturbación del flujo en la muestra patrón, se irradió una de ellas junto con un delgado alambre de oro que la atravesaba en sentido diametral. Un extremo del alambre sobresalía de la cara del recipiente, penetrando en el grafito. Se midió la actividad específica relativa de las distintas zonas del alambre, dando los resultados representados en la figura 2. Sobre la base

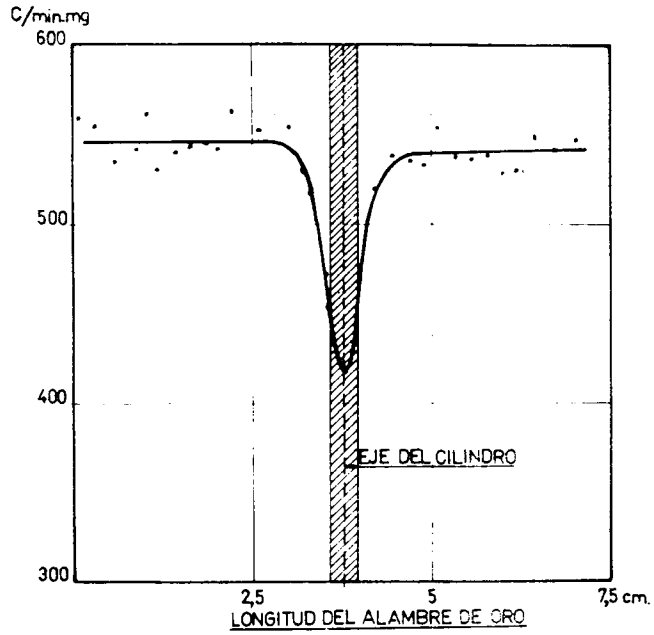


Fig. 1 Depresión externa del flujo térmico producida por un cilindro de oro de 0,4 cm de diámetro.

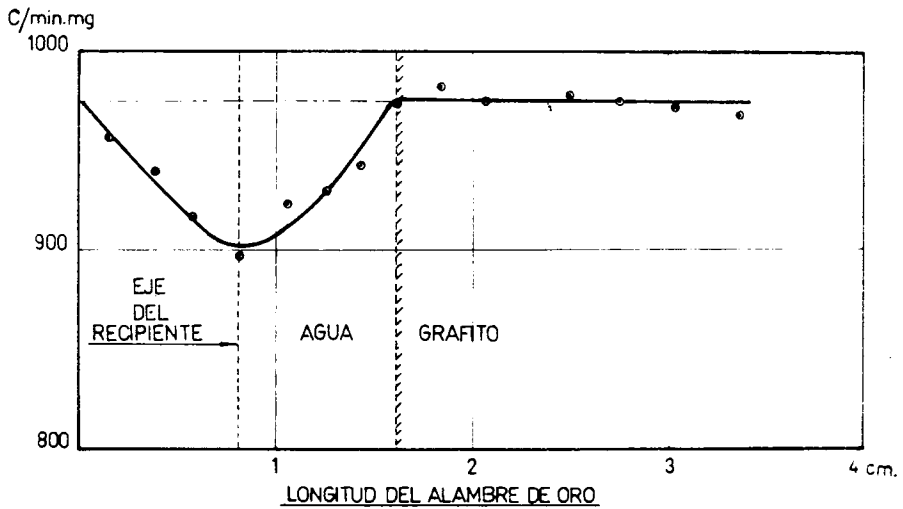


Fig. 2 Depresión del flujo neutrónico en la solución patrón de oro.

de las mediciones hechas se ha estimado que la perturbación del flujo en la solución, introduce un error por defecto del 1,2% en la activación del patrón. Este resultado ha sido tenido en cuenta en los cálculos.

El valor de la relación de cadmio para el oro en las posiciones de irradiación utilizadas, fue de aproximadamente 1.400.

b) Determinación de la actividad específica superficial y de la actividad específica total de las muestras irradiadas

La medición de la actividad producida por la irradiación en la superficie de los cilindros se llevó a cabo disolviendo, por medio de agua regia diluída, la capa superficial de las muestras, cuidadosamente desengrasadas a fin de garantizar un ataque lo más uniforme posible.

La cantidad de oro disuelto se determinó cuantitativamente por la diferencia de los pesos de los cilindros antes y después del tratamiento. En todos los casos, la cantidad de oro disuelto estuvo comprendida entre 1,5 y 8 mg, lo que corresponde a un espesor superficial entre 1,4 y 7 μ , dependiendo de las dimensiones de los cilindros.

Una estimación del factor de autoapantallamiento que se puede esperar haya tenido lugar en la capa de oro disuelta, indica que el factor de corrección es inferior a 1,004.

En alícuotas de la solución proveniente del ataque superficial de los cilindros, llevada a volumen con ácido clorhídrico 1:1, fue determinada la actividad de ^{198}Au por medio de un cristal de centelleo de pozo y comparada con la actividad de la solución patrón de oro correspondiente.

Una vez realizado el ataque superficial, se procedió a la disolución total de la muestra en agua regia y se midió la actividad en la solución resultante.

Las soluciones patrón, irradiadas simultáneamente con las muestras, fueron medidas después de un ataque superficial con agua regia de los recipientes de "plexiglas" que las contenían, a fin de garantizar la disolución total del oro que pudo haberse precipitado en los mismos.

En todos los casos se utilizó material de laboratorio cuidadosamente desengrasado, para evitar la reducción de las sales de oro durante la manipulación, y las soluciones se llevaron a volumen con ácido clorhídrico

1:1. En este medio las soluciones de oro mostraron ser estables, no observándose precipitación del elemento aún al cabo de una semana.

Por medición de la curva de desintegración del oro irradiado y del espectro gamma del mismo, determinado a distintos tiempos mediante un espectrómetro de centelleo multicanal, se pudo comprobar que la actividad de las muestras era debida únicamente al ^{198}Au .

c) Irradiación y medición de otras muestras

En otra experiencia fue irradiado un cilindro de oro de 0,40 cm de diámetro y 0,545 cm de altura, obtenido por la superposición de 50 pequeños discos de 0,0109 cm de espesor medio. A fin de garantizar la perfecta alineación de los mismos, éstos fueron prensados en un orificio cilíndrico de diámetro igual al de los discos, practicado en el "stringer" de grafito. Por medición en contador de centelleo de pozo se determinó la actividad específica relativa de cada uno de los pequeños discos. Los resultados están representados en la figura 3.

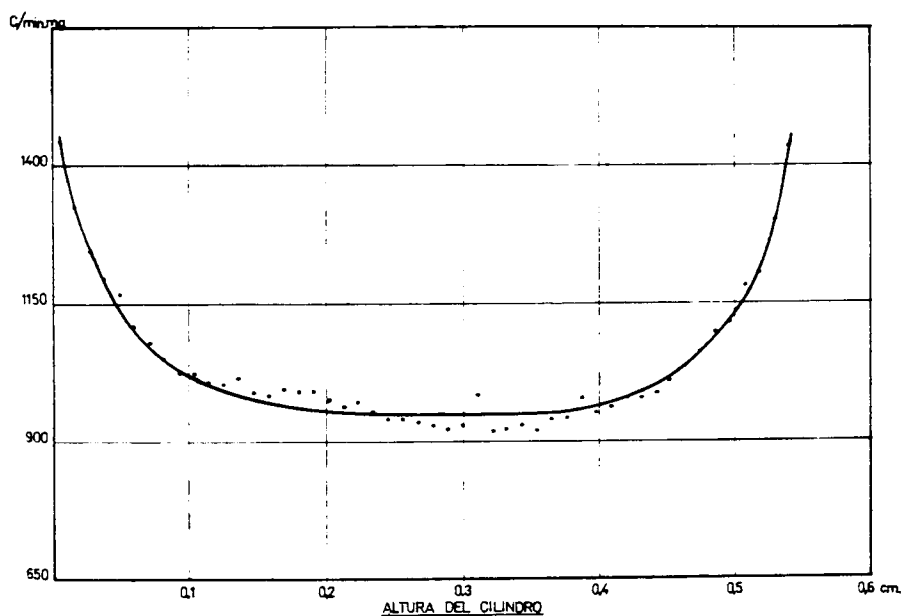


Fig. 3 Depresión axial de la actividad específica inducida en un cilindro de oro formado por 50 discos de 0,0109 cm de espesor.

Fue también irradiado un cilindro de 0,60 cm de altura y 0,39 cm de diámetro, obtenido enrollado en forma muy apretada una lámina de oro de 0,0116 cm de espesor. La densidad aparente de dicho cilindro fue de 19,3 g/cm³. Después de la irradiación fue determinada la actividad específica relativa de las distintas zonas de la lámina. La figura 4 representa los valores de la misma en función del radio del cilindro.

RESULTADOS

Para el caso de nuestras experiencias, H puede determinarse como cociente de

$$H = \frac{A_s}{A_o}$$

donde A_o es la actividad específica relativa del oro en la solución patrón, corregida por la autoabsorción en la misma, y A_s es la actividad específica relativa del oro en la superficie del cilindro, ambas referidas a un mismo tiempo después del fin de la irradiación. De igual manera

$$G = \frac{A_v}{A_s}$$

donde A_v es la actividad específica relativa del cilindro irradiado, dada por

$$A_v = \frac{a_s + a_v}{m}$$

siendo a_s y a_v respectivamente, las actividades de la capa superficial y del resto del cilindro y m el peso total del mismo.

Como consecuencia, el factor de perturbación total del flujo será:

$$F = \frac{A_v}{A_o}$$

En el cuadro I se consignan los valores promedio de H, G y F obtenidos irradiando dos series idénticas de cilindros de oro de distintos radios y de 0,6 cm de altura.

A fines de comparación, se ha calculado el factor F de acuerdo con las fórmulas propuestas por distintos autores:

- Nisle (10, 11)

$$F_N = \frac{1}{2\xi} (1 - e^{-2\xi})$$

donde

$$\xi = \frac{2V}{S} n \sigma = \frac{r \times h}{h + r} n \sigma$$

siendo V el volumen del cilindro, S su superficie, n el número de núcleos por cm^3 y σ la sección eficaz de absorción para neutrones térmicos (12).

- Gilat y Gurfinkel (11)

$$F_{GG} = \frac{r \cdot F_L(\xi) + h \cdot F_C(\xi)}{r + h}$$

donde $F_L(\xi)$ y $F_C(\xi)$, probabilidades de escape para lámina y cilindros infinitos, se obtuvieron en función de ξ por medio de las tablas de Case et al. (6)

- Gubbins (8)

$$F_G = 1 - \frac{h}{2r} \left\{ \left(\frac{h}{2r} - 1 \right) \frac{1}{P_\infty(\eta)} + \frac{1}{P_1(\eta)} \right\}^{-1}$$

donde $P_\infty(\eta)$ y $P_1(\eta)$ son, respectivamente, las probabilidades de colisión para cilindro infinito y cilindro de altura $h = 2r$, que se obtienen a partir de la tabla de este autor (8) en función de $\eta = 2nr\sigma$.

Los resultados de las experiencias de irradiación de cilindros no macizos, realizadas para visualizar la distribución del flujo en el volumen del cuerpo, están representados en las figuras 3 y 4. A partir de estos datos y por integración gráfica sobre las curvas, hemos estimado en los dos casos el factor de autoapantallamiento G, obteniendo un valor de 0,69 para el ci-

lindro formado por discos y de 0,62 para el cilindro "espiral". Estos resultados, teniendo en cuenta los errores de la estimación, son concordantes con los obtenidos en la irradiación de cilindros macizos de dimensiones aproximadamente iguales ($G = 0,656$).

El análisis del cuadro I pone de manifiesto que los valores experimentales del factor F están en excelente acuerdo con los de F_G , calculados según la ecuación de Gubbins. Ello es significativo, ya que dicha ecuación, utilizando valores bien establecidos de las probabilidades de colisión para cilindros de $\frac{h}{r} = 2$ y $\frac{h}{r} = \infty$, permite calcular con exactitud la probabilidad

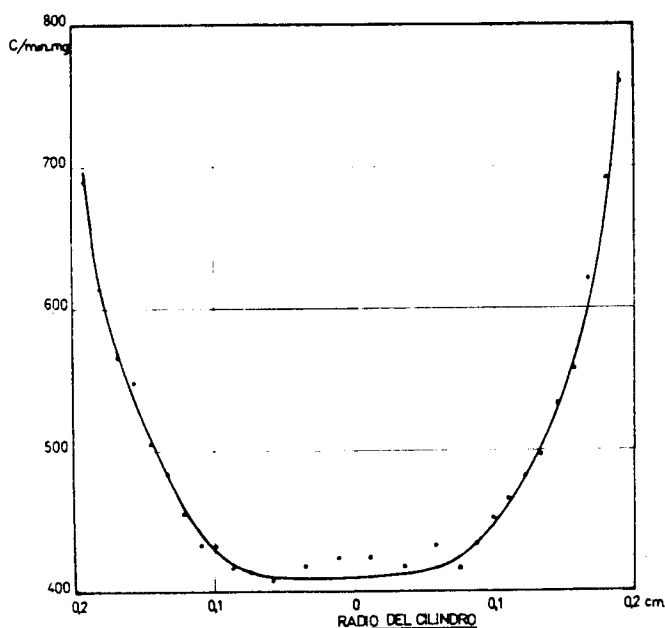


Fig. 4 Depresión radial de la actividad específica inducida en un cilindro de oro de 0,39 cm de diámetro formado arrollando en espiral una lámina de 0,0116 cm de espesor y 0,6 cm de altura.

de escape para un cilindro finito. A nuestro juicio, la expresión formulada por Gubbins es la más sólidamente fundada de las tenidas en cuenta en este trabajo y, por lo tanto, de la que cabía esperar mejor concordancia. Por otro lado, estando la ecuación de Gubbins basada exclusivamente en la teoría de probabilidades de colisión, en donde no se hacen intervenir las propiedades difusoras del medio, la concordancia observada nos permite concluir que, en la irradiación en grafito de muestras como las utilizadas en nuestra experiencia, se puede ignorar la influencia del medio difusor en la descripción de la

perturbación del flujo. Por lo tanto creemos que, en estas condiciones, el factor F es equivalente a la probabilidad de escape de neutrones en la muestra. Esta conclusión, sin embargo, no se puede generalizar para irradiaciones realizadas en otros medios más difusores, especialmente en agua, debido a la perturbación adicional introducida por el medio.

Los valores de F_{GG} , aunque sistemáticamente inferiores, concuerdan relativamente bien con los experimentales. En el cálculo de F_{GG} , Gilat y Gurfinkel hallan la probabilidad de escape para un cilindro finito, por interpolación entre las probabilidades de escape de una lámina y un cilindro infinito, utilizando para el cálculo de éstas, no obstante, la ξ correspondiente a la cuerda media del cilindro finito en cuestión. Ello carece en cierta medida de rigor analítico, por lo que no cabe esperar una concordancia mejor que la observada.

Los valores de F_N son los que más difieren, por exceso, de los experimentales. De hecho, la fórmula aproximada de Nisle presupone que la perturbación producida en una muestra de cualquier forma geométrica es asimilable a la que tiene lugar en una lámina de semiespesor igual a la cuerda media de la muestra, lo que, evidentemente, para el caso del cilindro, es una simplificación extrema de las condiciones reales.

Los factores H y G , cuya medición experimental es fácil, no tienen mucha importancia en el orden práctico; además, en el caso concreto de cilindros finitos, no se dispone de las expresiones analíticas que permiten su cálculo. Sin embargo, cuando el medio difusor no tiene mayor influencia, como en el caso del grafito, puede realizarse una estimación grosera del factor H asimilando el cilindro finito a una esfera de volumen equivalente. En este caso es fácil demostrar que la relación entre el flujo neutrónico en la superficie de la esfera Φ_s y el flujo perturbado Φ_o , está dada por

$$H = \frac{\Phi_s}{\Phi_o} = \frac{1}{2} \left[1 + \frac{1}{\eta} (1 - e^{-\eta}) \right]$$

siendo $\eta = 2n\sigma R$ y R el radio de la esfera equivalente. Esta fórmula da concordancia aceptable cuando $h/2r$ es la unidad. Para nuestro cilindro de 0,2 cm de radio, el que más se aproxima a esta condición, se obtiene un H calculado de 0,657, que concuerda bien con el valor experimental hallado de 0,661. Por supuesto, para los cilindros de menor radio la concordancia no es tan buena.

En cuanto el factor G , que puede obtenerse como cociente entre F y H , no aporta conocimiento nuevo al fenómeno. Cabe hacer la observación, no obstante, de que algunos autores llaman a la relación $\frac{\Phi_v}{\Phi_0}$ factor de autoapantallamiento (11), que ha sido denominada por nosotros factor de perturbación total y que no debe confundirse con G .

De los resultados del presente trabajo podemos concluir que la perturbación total del flujo neutrónico producida por muestras de dimensiones lineales inferiores a 0,5 cm, es descrita correctamente en términos de probabilidades de escape, no pareciendo tener influencia apreciable la perturbación debida al medio difusor (grafita). Para muestras cilíndricas finitas, el método de cálculo de probabilidades de escape dado por Gubbins, es el que mejor se ajusta a los resultados experimentales.

CUADRO I

Valores de H, G y F de cilindros de oro, de altura
0,6 cm y radio variable, irradiados con neutrones
térmicos en grafito

r (cm)	H ^(a)	G ^(a)	F ^(a)	F _N ^(b)	F _{GG} ^(b)	F _G ^(b)
.025	.875	.966	.846	.874	.840	.848
.060	.799	.879	.702	.742	.686	.706
.0825	.767	.836	.642	.677	.614	.636
.100	.756	.778	.588	.634	.567	.592
.130	.705	.741	.522	.574	.503	.530
.150	.670	.726	.486	.540	.469	.496
.180	.693	.650	.450	.498	.424	.453
.200	.661	.656	.433	.469	.401	.431

a) Valores experimentales. Los intervalos de confianza de H, G, y F son, respectivamente, 0,031; 0,032 y 0,018 para un coeficiente de confianza de 0,90 (13).

b) Valores calculados.

BIBLIOGRAFIA

1. HANNA, G. G.; Nuclear Sci. and Eng., 15, 325 (1963).-
2. Reactor Physics Constants, ANL-5800, 2nd. Ed. (1963) pag. 667.-
3. SOLA, A; Nucleonics 18 (3), 78 (1960).-
4. CRANE, J. L. y DOERNER, R. C.; Nuclear Sci. and Eng., 16, 259 (1963).-
5. DOYAS, R. J.; Tesis, Universidad de California (1965).-
6. CASE, K. M.; HOFFMANN, F. de y PLACZEK, G.; Introduction of the Theory of Neutron Diffusion. Vol. I. Los Alamos, New Mexico, 1953.-
7. McLEOD, R. I.; TRG Report 573 (D), (1963).-
8. GUBBINS, M. E.; AEEW-M 442, (1964).-
9. CARLVIK, I.; AE-281, (1967).-
10. NISLE, R. G.; Nucleonics, 18 (3), 86 (1960).-
11. GILAT, J. y GURFINKEL, Y.; Nucleonics, 21 (8), 143 (1963).-
12. Refer. (2), p. 30.-
13. LINNIK, Y. V.; Method of Least Squares and Principles of the Theory of Observations. Pergamon Press. London, 1961.-

