



I Congresso Geral de Energia Nuclear

Rio de Janeiro, 17 a 20 de Março de 1986

ANAIS - PROCEEDINGS

DETERMINAÇÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE ESPALHAMENTO DUPLAMENTE DIFERENCIAL DE NÊUTRONS PARA BAQUELITE CALCINADA

Dante Luiz Voi
Luiz Ozório de Brito Aghina
Deptº de Reatores - IEN/CNEN

José Carlos Borges
Programa Engenharia Nuclear - COPPE/UFRJ

Laercio Antonio Vinhas
Deptº Proteção Radiológica - IPEN/CNEN

SUMÁRIO

Para determinar propriedades dinâmicas e estruturas da Baquelite, seções de choque totais e de espalhamento duplamente diferenciais para nêutrons foram medidas nos arranjos espectrômetro de cristal do IEN/CNEN e espectrômetro de tempo-de-vôo filtro de Berílio do IPEN/CNEN. As informações de seções de choque totais obtidas no arranjo do IEN, por outros métodos complementadas, permitem estimar prováveis fórmulas moleculares. Os espectros emergentes de neutrons obtidos no arranjo do IPEN permitem por um formalismo apropriado obter-se as respectivas seções de choque duplamente diferenciais, as leis de espalhamento e, informações sobre a estrutura e a dinâmica das amostras.

ABSTRACT

In way that the bakelite dynamics and structure properties could be determined, neutron total cross-sections and double differential scattering cross-sections have been measured, respectively, with the neutron crystal spectrometer at CNEN/IEN and the neutron time-of-flight and Be-filter arrangement at CNEN/IPEN.

The total cross-section informations obtained at IEN arrangement, complemented by others methods, allow an estimation of the probable molecular formula. The sample emergent spectra obtained at the IPEN arrangement permit, trough an appropriated formalism, some conclusions concerning the double differential cross-sections, the scattering law, molecular structure and dynamics informations.

1. INTRODUÇÃO

A Baquelite, resina que vem sendo estudada para emprego como aglomerante em pastilhas de elementos combustíveis de reatores^{1,6}, é um material que após um tratamento térmico recebido em processos de compactação mecânica, passa por diversas transformações a nível molecular. Em virtude de ser originalmente amorfa e de adquirir no processamento, características de material insolúvel e infusível, as técnicas que permitem obter informações de sua nova estrutura e dinâmica são poucas, a saber, o infravermelho, a análise elemental CHN e medidas de seções de choque com nêutrons.

A importância de obter-se tais informações está na necessidade de se estudar funções e parâmetros para o cálculo de física de reatores.

Dentre as funções que podem ser determinadas pode-se citar a lei de espalhamento do material e o espectro de frequências associado. Dentre os parâmetros importantes têm-se: a seção de choque de espalhamento, o calor específico e outras propriedades termodinâmicas.

Para isto, são necessárias medidas envolvendo a técnica de espalhamento inelástico de nêutrons que, em conjunto com as outras técnicas indicadas, permitem chegar-se aos objetivos desejados. Embora os dados obtidos até o momento não sejam finais, informações importantes foram conseguidas.

2. TEORIA DO ESPALHAMENTO INELÁSTICO DE NÊUTRONS

O espalhamento inelástico de nêutrons^{2,5} é baseado no princípio da troca de energia $\hbar\omega$ e troca de quantidade de movimento $\hbar\vec{Q}$ de um nêutron com o material espalhador. Este processo é descrito pelas variáveis $\omega = \hbar/2m (K_0^2 - K^2)$ e $\vec{Q} = \vec{K}_0 - \vec{K}$, sendo K_0 e K os momentos inicial e final do nêutron, \hbar a constante de Planck/ 2π e m a massa do espalhador.

Para um espalhador incoerente, a probabilidade que um nêutron ganhe uma energia $\Delta E = \hbar\omega$ está linearmente relacionada com a densidade de modos de vibração de frequências ω .

A lei de espalhamento para o caso da Baquelite, pode ser determinada a partir de espectros de intensidade de nêutrons espalhados pelo material, segundo uma direção Ω , sendo relacionada à seção de choque de espalhamento duplamente diferencial $d^2\sigma/d\Omega d\omega$ pelo tratamento de Egelstaff⁴.

Por ser alta a intensidade quando átomos de Hidrogênio estão envolvidos, e pelo fato que seu intervalo de transferência de energia vai até $\sim 600\text{cm}^{-1}$, o espalhamento de nêutrons é particularmente sensível a modos de rotações restritas da molécula toda, e de grupos moleculares, que não são observáveis facilmente por outros métodos.

3. MATERIAIS E MÉTODOS

Para a determinação de seções de choque totais utilizamos o espectrômetro de cristal instalado no canal de irradiação J-9 do Reator Argonauta - IEN. O método usado foi o da transmissão de nêutrons¹, no intervalo de energia de 3,5 meV a 0,1 eV, com Resolução $\Delta E/E$ variando de 6 a 50%.

Para medidas do espectro inelástico de nêutrons, foi utilizado o arranjo experimental filtro de Berílio-espectrômetro de tempo de voo, instalado no canal 3 do Reator IEA-R1 do IPEN. O espectro de nêutrons incidente sobre a amostra tem energia média de 3,5 meV com largura de 2 meV. O espectro de nêutrons emergente da amostra é obtido por um analisador de tempo-de-voo multicanal, cuja resolução é 1,7% para nêutrons de 5 meV e 6,4% para nêutrons de 80 meV.

O material medido na forma inicial é uma resina com a estrutura mostrada na figura 1. Cada anel benzênico é interligado por pontes de metileno, de modo a formar uma macromolécula de massa próxima a 1500 u.m.a.

Para produzir-se pastilhas com parâmetros aceitáveis em cálculos neutrônicos, o polímero sofre tratamento térmico até 800°C, pois testes e medidas efetuadas evidenciam esta temperatura, sob aspectos econômicos e técnicos.

No entanto, nesta fase o material que era originalmente amorfo, passa também a ser infusível e insolúvel, características que frustram quaisquer tentativas de obter-se informações da sua nova estrutura e dinâmica através das técnicas convencionais de espectroscopia ótica (NMR, infravermelho, Raman, R-x, etc.).

4. RESULTADOS E CONCLUSÕES

Embora tenha-se tentado obter informações através de diversas técnicas para amostras a 800°C, as mais úteis foram a análise elementar CHN e as determinações de seções de choque.

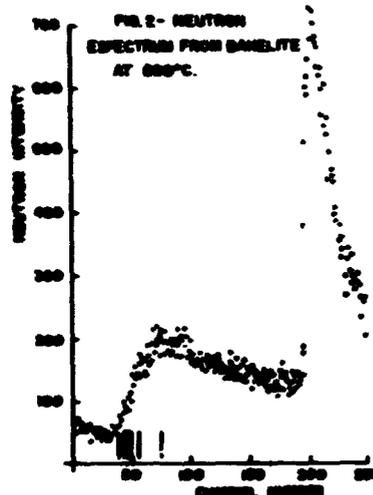
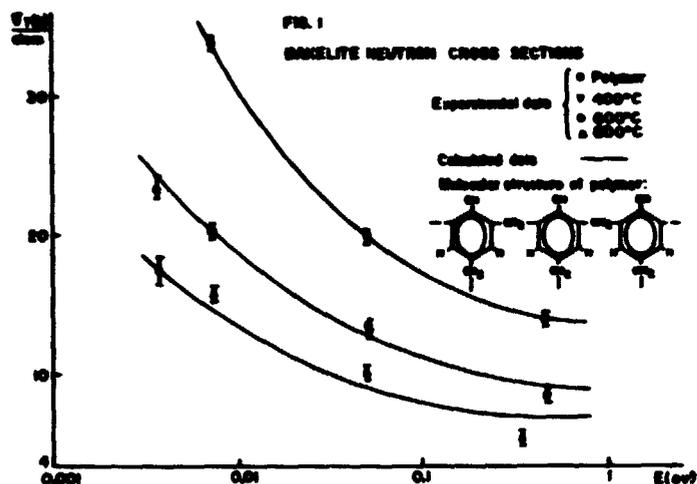
A análise CHN permitiu determinar o conteúdo de Hidrogênio e Carbono que, na forma de razões atômicas H/C e O/C e interpretada pelo diagrama de Krevelen, deu informação que um provável processo de grafitização esteja se iniciando. Este processo, por sua vez, depende do empacotamento de anéis benzênicos, que formam prováveis estruturas polinucleares condensadas. As medidas de seções de choque totais de amostras, uma polimerizada e três calcinadas a 400, 600 e 800°C, são mostradas na figura 1. Uma análise baseada em ajustes de expressões teóricas às curvas observadas permite obter-se informações de razões H/C e de prováveis novas fórmulas moleculares.

A inclinação destas curvas³ permite concluir também que a população de estados excitados rotacionais e vibracionais, disponível para troca de energia entre os prótons e os nêutrons incidentes, torna-se menor com o aumento da temperatura de calcinação.

Com base nestes dados, em previsões anteriores do infravermelho, na estabilidade mecânica das pastilhas, na persistência da estrutura tridimensional, resulta evidência de que as ligações entre moléculas continuam a serem efetuadas ainda por grupos CH₂, porém em menor número que as amostras a temperaturas mais baixas. É possível com estes resultados prever-se uma estrutura hipotética para a Baquelite a 800°C.

Um espectro inicial de espalhamento inelástico de nêutrons foi também obtido e é mostrado na figura 2. Por ser este tipo de espalhamento mais sensível a movimentos de H's, a região de 50 a 190 canais, que corresponde a frequências entre 600 e 50cm⁻¹, é a de maior interesse para a análise. Entretanto, com melhor estatística e resolução pode-se estender o limite superior de frequên

cias. O pico mostrado à direita do espectro corresponde a nêutrons incidentes espalhados elasticamente pela amostra. Embora sejam necessários mais dados para a interpretação deste espectro, a título de ilustração, são poucas as bandas de infravermelho observadas na faixa de frequência de interesse, só existindo para amostras calcinadas até 400°C, indicadas na abscissa da figura 2.



BIBLIOGRAFIA

VOI, D.L. - Medidas de Seções de choque totais de Baquelite, Grafite e Alumínio para nêutrons de baixa energia, RJ-CNEN-IEN-1981, (N.T. DERE-DIREA 001/81)

AMARAL, L.Q. - Estudo dos movimentos atômicos do t-Butanol por Espalhamento de nêutrons lentos, S.Paulo-Inst.Física da USP - Tese de doutoramento - 1972

HERDADE, S.B. - Espalhamento de nêutrons lentos na água, polietileno e compostos metálicos, S.Paulo - Universidade de Campinas - tese de doutoramento - 1969

BRUGGER, R.M. - Proceeding of the Brookhaven Conference on neutron thermalization - BNL - April 1962 (BNL-719 (C-32))

EGELSTAFF, P.A. and POOLE, M.J. - Experimental neutron thermalization - Pergamon Press - Oxford - 1969

AGHINA, L.O.B e DUTRA, P.B. - Novo Elemento Combustível para o Reator Argonauta Determinação de parâmetros para fabricação de pastilhas de U₃O₈ e grafite - 39 ENFIR - CNEN - R.J. - 1983.