

Estudo da Reação de Fotoprodução de Nêutrons para os Núcleos de Th-232 e U-238

Professores Responsáveis

Luiz Paulo Geraldo, Renato Semmler e Odair Lelis Gonçalves

Participantes

Sebastião Simionatto (IFUSP), Marcos Antonio Amaral Lins (UFPB), Carlos Henrique Gorges Vice (UEL), Richard Maximiliano C. Silva (UEL), Marcelo Filadelfo (IFUSP) e Marcelo B. de Andrade (IPEN).

RESUMO

Este trabalho teve como objetivo principal as medidas de secções de choque para a fotoprodução de nêutrons, nos núcleos de Th-232 e U-238, nas energias de excitação de 6,81 MeV e 7,38 MeV, utilizando as radiações gama de captura produzidas pelos alvos de berílio e chumbo respectivamente. As medidas foram realizadas em um arranjo experimental instalado no canal tangencial BH-4-12 do reator IEA-R1, empregando um sistema de detecção de nêutrons do tipo long-counter. A radiação gama incidindo nas amostras físséis em estudo, foram monitoradas por meio de um detector de Ge(Li), previamente calibrado no intervalo de energia entre 5 e 11 MeV. Os resultados obtidos neste trabalho foram comparados com aqueles divulgados na literatura, por outros autores empregando diferentes fontes de radiação gama.

INTRODUÇÃO

Estudos de reações fotonucleares para núcleos actinídeos têm sido realizados nos últimos anos, por meio de diversos tipos de fontes de raios gama, principalmente no intervalo de energia entre 5 e 20 MeV. Entretanto, como pode ser constatado na literatura (1-5), existem ainda poucos dados experimentais disponíveis para estas secções de choque e os resultados divulgados apresentam discrepâncias acentuadas em diversas energias de excitação. Desta forma, é de se esperar que novas informações experimentais sejam importantes, não só para melhorar o grau de conhecimento destes importantes parâmetros nucleares, mas também, para ajudar a esclarecer as estruturas observadas (6) nas secções de choque de fotofissão, próximo ao limiar de emissão de nêutrons, para os núcleos de Th-232 e U-238, bem como, para avaliar a consistência de modelos nucleares específicos sobre o assunto. Além disso, como se trata de informações experimentais obtidas com ftons de captura, radiação esta sempre presente nas proximidades do núcleo de qualquer reator nuclear, espera-se que os resultados deste experimento sejam também de interesse para a área de Tecnologia de Reatores.

Estudos de reações fotonucleares para alguns núcleos pesados foram realizados neste laboratório (7-11), utilizando arranjos experimentais com um número limitado (no máximo 12) de linhas gama de captura. Conseqüentemente, o número de informações experimentais obtidas tem sido sempre pequeno, dificultando muito a interpretação e análise dos resultados experimentais. Com a finalidade de aprimorar estes estudos, foi instalado (12) no canal tangencial BH-4-12 do reator IEA-R1 (2MW), um novo aparato experimental para a produção e utilização deste tipo de radiação gama. Neste arranjo, é possível a utilização de até 30 alvos de captura, o que permite a obtenção de até 30 linhas gama

principais, de altíssima resolução (algumas dezenas de eV), com energias discretas variando no intervalo entre 5 e 11 MeV.

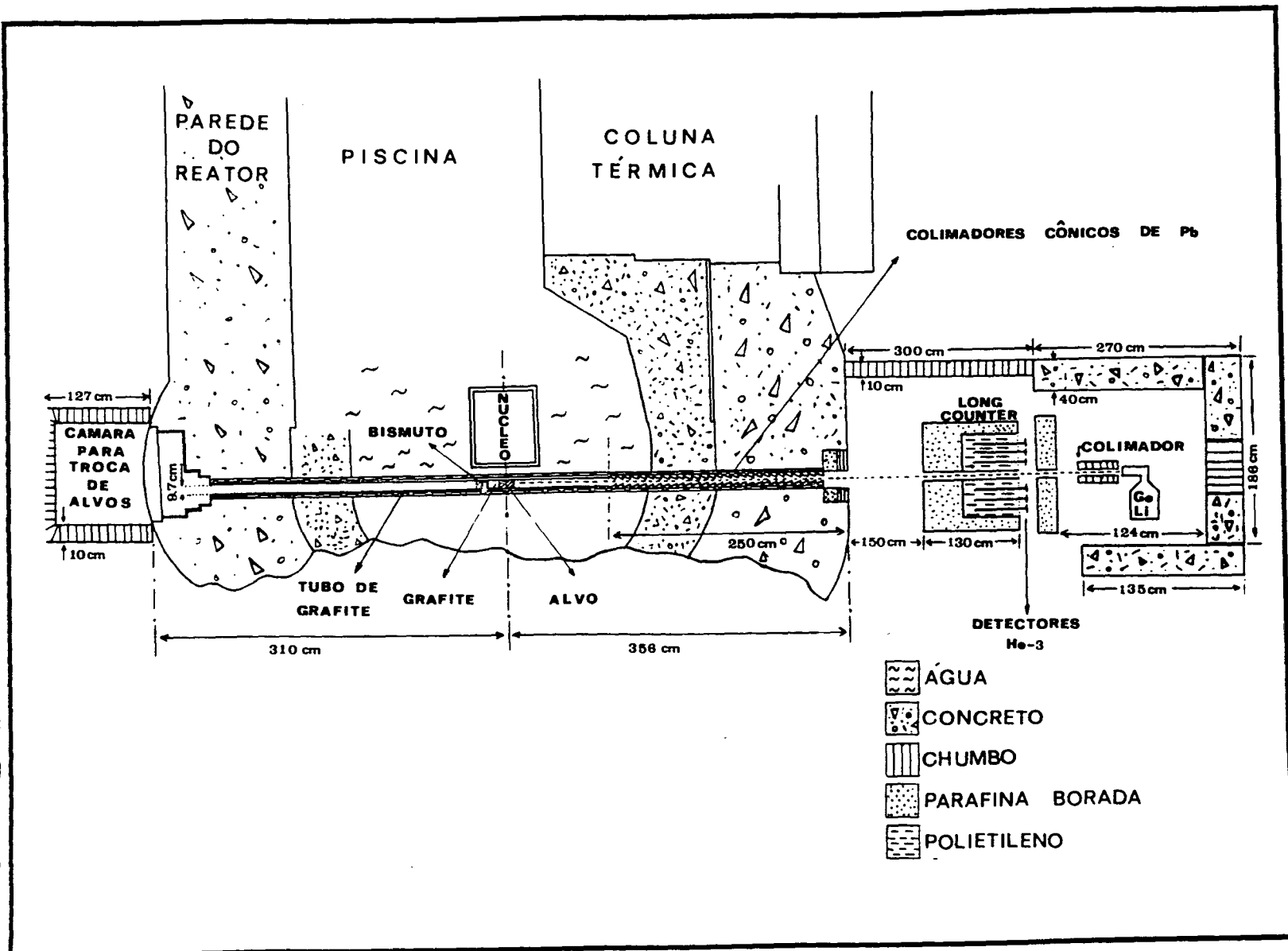
O objetivo deste trabalho, foi a determinação das secções de choque de fotoprodução de nêutrons, para os núcleos par-par Th-232 e U-238, em duas energias de excitação próximas aos limiares das reações (γ, f) e (γ, n) , utilizando este novo arranjo experimental, a fim de se ter uma visão completa de toda a metodologia usualmente empregada neste tipo de experimento, tanto para a aquisição de dados como para a análise e interpretação dos resultados experimentais.

PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

As amostras de urânio e tório utilizadas neste experimento, possuíam massas aproximadas de 20 g e estavam na forma de U_3O_8 (empobrecida à 0,33% do isótopo U-235) e ThO_2 (natural). Foram confeccionadas em forma de pastilhas, com dimensões em torno de 25 mm de diâmetro por 10 mm de espessura, e encapsuladas em porta amostras de alumínio.

O arranjo experimental para a produção e utilização de radiação gama de captura, juntamente com o sistema de detecção de nêutrons, são apresentados na Figura 1 e estão descritos com detalhes nas referências (8) e (12). Em resumo, fons monocromáticos, com energias discretas variando no intervalo entre 5,14 à 10,83 MeV, são produzidos por meio da captura de nêutrons térmicos em diversos materiais alvos, quando posicionados próximos ao núcleo do reator IEA-R1. Pelo outro lado deste canal tangencial, a radiação gama é conduzida, por meio de um conjunto de colimadores cônicos de chumbo, até a posição de irradiação das amostras em estudo, localizada dentro do sistema detector long-counter. O fluxo

Figura 1: Arranjo Experimental Para Estudos de Reações Fotonucleares



de radiação gama incidindo nas amostras, foi monitoradas por meio de um espectrômetro de Ge(Li) (5%, 25 cm³, ORTEC), previamente calibrado no intervalo de energia entre 5 à 11 MeV, utilizando amostras de níquel, cromo e nitrogênio como padrões de referência (12).

As eventuais variações da potência do reator, tanto durante as irradiações das amostras físséis, como nas medidas de intensidades dos fluxos gama, foram monitoradas com o auxílio de dois detectores de nêutrons: um detector do tipo SPND (Self Powered Neutron Detector), instalado muito próximo à posição de irradiação dos alvos de captura, e uma câmara de fissão de baixa eficiência, posicionada na saída dos colimadores de chumbo.

Os nêutrons emitidos nos processos fotonucleares (γ, f) e (γ, n), foram detectados por meio de um sistema detector do tipo long-counter (8), similar ao proposto por Caldwell e outros (13). Este sistema, é constituído por 48 detectores proporcionais de He-3, 60 cm de comprimento por 2,5 cm de diâmetro e com pressões internas de 3, 4 e 6 atmosferas. Estes detectores, estão alojados dentro de um bloco de polietileno (60x60x60) cm³, contendo 60 perfurações distribuídas em 4 anéis concêntricos de raios 6,4 cm, 10,8 cm, 14,6 cm e 17,8 cm. Os detectores de He-3 estão arrançados nestes anéis da seguinte forma: 10 detectores de 6 atmosferas no anel mais interno, 9 detectores de 4 atmosferas no segundo e terceiro anéis e 20 detectores de 3 atmosferas no quarto anel ou anel mais externo. Como pode ser visto na Figura 1, este conjunto está instalado dentro de uma caixa retangular de ferro, com dimensões de (1,3x1,0x1,0) m³, preenchida com parafina borada e revestida externamente com folhas de cádmio. Pelo centro desta caixa passa um tubo de cobre, com 2 mm de espessura e 76 mm de comprimento, o qual permite a passagem do feixe gama e o posicionamento das amostras em estudo. A eficiência deste sistema detector de nêutrons, foi determinada neste experimento, utilizando uma fonte de Cf-252 calibrada, e o resultado obtido foi de (25,4 ± 1,3)%.

RESULTADOS E DISCUSSÃO

A secção de choque de fotoprodução de nêutrons $\sigma_{\gamma,N}$, para uma determinada energia de excitação, pode ser determinada de acordo com a equação:

$$\sigma_{\gamma,N} = (\epsilon_{\gamma} \cdot C_n) / (\epsilon_n \cdot N_n \cdot A_{\gamma} \cdot R_{\gamma}) \quad \text{onde,}$$

C_n - contagem de nêutrons obtida pelo long-counter, corrigida para as contribuições de background e variação de potência do reator,

ϵ_n - eficiência de detecção do detector de nêutrons long-counter,

N_n - número de núcleos de Th-232 ou U-238 nas amostras,

ϵ_{γ} - eficiência do detector de Ge(Li) nas energias de excitação de interesse,

A_{γ} - área do fotopico, produzido pela radiação gama principal emitida pelo alvo, corrigida para tempo morto, empilhamento, absorção nos filtros de chumbo e variação de potência do reator.

R_{γ} - razão das intensidades dos fluxos gama entre a posição de irradiação das amostras e a posição de medidas destes fluxos.

Na Tabela 1 são apresentados os resultados obtidos neste trabalho, juntamente com aqueles divulgados na literatura por outros autores (14-16). Os erros totais apresentados para as secções de choque foram determinados em quadratura, levando em consideração as seguintes fontes de erros, respectivamente para os alvos de berílio e chumbo: contagem de nêutrons (2,4% e 2,9%), eficiência do detector long-counter (5% e 5%), área do fotopico (0,7% e 0,3%), eficiência do detector Ge(Li) (5,6% e 4,0%). Como pode ser visto nesta tabela, os resultados deste experimento estão em razoável acordo com Mafra e colaboradores (14,15) e com a referência (16), apenas em 7,38 MeV. Na energia de 6,81 MeV, tanto os

resultados deste trabalho como aqueles divulgados nas referências (14,15), estão muito abaixo daqueles obtidos por Dickey (16), indicando, mais uma vez, a possibilidade de existência de um mínimo na curva de secções de choque, em torno desta energia de excitação, nos resultados experimentais obtidos com ftons de captura.

A secção de choque de fotoprodução de nêutrons $\sigma_{\gamma,N}$ pode ser expressa, em termos das secções de choque de fotofissão $\sigma_{\gamma,f}$ e de fotonêutrons $\sigma_{\gamma,n}$, pela seguinte equação (7):

$$\sigma_{\gamma,N} = \sigma_{\gamma,n} + v \cdot \sigma_{\gamma,f} \quad \text{one,}$$

v é o número médio de nêutrons prontos emitidos por fissão.

No intervalo de energia entre 5 e 11 MeV a secção de choque de espalhamento gama $\sigma_{\gamma,\gamma}$ é desprezível comparada com $\sigma_{\gamma,f}$ e $\sigma_{\gamma,n}$ e a secção de choque de fotoabsorção σ_a pode ser expressa como:

$$\sigma_a = \sigma_{\gamma,f} + \sigma_{\gamma,n}$$

Tanto σ_a como v são conhecidos com razoável precisão na literatura (13-16) para os núcleos de Th-232 e U-238 de forma que, estes dados podem ser utilizados para se obter informações sobre a probabilidade de fissão P_f e a competição entre emissão de nêutrons e fissão Γ_n/Γ_f , utilizando as seguintes equações:

$$P_f = (\sigma_{\gamma,N} - \sigma_a) / (\sigma_a(v - 1)) \quad \text{e} \quad \Gamma_n/\Gamma_f = (v \cdot \sigma_a - \sigma_{\gamma,N}) / (\sigma_{\gamma,N} - \sigma_a)$$

Os resultados obtidos neste trabalho para P_f e Γ_n/Γ_f , são apresentados nas Tabelas 2 e 3 respectivamente, junto com aqueles divulgados por outros autores.

Tabela 1 - Secções de choque de fotoprodução de nêutrons para os núcleos de Th-232 e U-238 (mb).

Núcleos	U-238	U-238	Th-232	Th-232
E_γ (MeV)	6,81	7,38	6,81	7,38
Refs. (14,15)	$(7,5 \pm 1,0)$	(43 ± 5)	$(5,1 \pm 0,6)$	(21 ± 3)
Ref. 16	(54 ± 7)	(59 ± 8)	(13 ± 3)	(43 ± 11)
Este Trabalho	$(5,3 \pm 0,5)$	(72 ± 5)	$(3,8 \pm 0,3)$	(39 ± 3)

Tabela 2 - Valores obtidos para a probabilidade de fissão Pf para Th-232 e U-238

Núcleos	U-238	U-238	Th-232	Th-232
E_γ (MeV)	6,81	7,38	6,81	7,38
Ref. (7)	$(0,33 \pm 0,06)$	$(0,34 \pm 0,05)$	$(0,20 \pm 0,04)$	$(0,24 \pm 0,02)$
Ref. (16)	$(0,21 \pm 0,02)$	$(0,28 \pm 0,03)$	$(0,45 \pm 0,18)$	$(0,17 \pm 0,04)$
Este Trabalho	$(0,15 \pm 0,02)$	$(0,46 \pm 0,07)$	$(0,15 \pm 0,02)$	$(0,05 \pm 0,01)$

Tabela 3 - Valores obtidos para a competição Γ_n/Γ_f para Th-232 e U-238.

Núcleos	U-238	U-238	Th-232	Th-232
E_γ (MeV)	6,81	7,38	6,81	7,38
Ref. (7)	$(2,0 \pm 0,4)$	$(1,9 \pm 0,3)$	$(3,8 \pm 0,7)$	$(6,3 \pm 1,1)$
Ref. (16)	$(4,2 \pm 0,4)$	$(2,6 \pm 0,3)$	$(1,3 \pm 0,8)$	$(4,7 \pm 1,2)$
Este Trabalho	$(5,9 \pm 0,9)$	$(1,2 \pm 0,2)$	$(5,8 \pm 0,9)$	(20 ± 5)

CONCLUSÕES

Neste trabalho, foram determinadas as secções de choque de fotoprodução de nêutrons para os núcleos de Th-232 e U-238, em duas energias de excitação: 6,81 MeV e 7,38 MeV. Comparando os resultados deste experimento com aqueles divulgados na literatura por outros autores, alguns fatos podem ser evidenciados:

- 1) As secções de choque obtidas neste trabalho, confirma a existência de um vale na curva de secção de choque de fissão em torno de 6,81 MeV.
- 2) Nas energias de excitação empregadas neste trabalho, próximas dos limiares das reações de fissão e emissão de nêutrons (5-7 MeV), a emissão de nêutrons foi mais provável para ambos os núcleos estudados. Estes resultados corroboram a justificativa que tem sido dada pela existência de uma estrutura nas secções de choque de fotofissão, próxima ao limiar de emissão de nêutrons, como sendo uma consequência da competição entre os processos de fotofissão e fotonêutrons.
- 3) A probabilidade de fissão em 7,38 MeV para o Th-232 discorda acentuadamente daqueles obtidos por outros autores. Entretanto, pode-se notar que há uma forte concordância entre os resultados experimentais, quanto à predominância quase que total de emissão de nêutrons nesta energia de excitação.
- 4) Os valores obtidos para P_f e Γ_n/Γ_f estão em razoável acordo com as previsões do Modelo da Gota Líquida, no que se refere ao aumento da fissionabilidade em função do parametro Z^2/A .

REFERÊNCIAS

- 1) V.V.Varlamov, B.S. Ishkhanov, M.E. Stepanov, V.V. Surgutanov, A.A. Khoronenko and A.P. Chernjaev. "Photofission of Nuclei", Institute of Nuclear Physics of MSV (1989).
- 2) B.L. Berman, J.T. Caldwell, E.J. Dowdy, S.S. Dietrich, P. Meyer and R.A. Alvarez. Photofission and photoneutron cross sections and photofission neutron multiplicities for U-233, U-234, Np-237 and Pu-239. *Phys. Rev. C*(34) (1986) 2201.
- 3) W.J. Varhue and T.G. Williamson. Photoneutron and photofission cross sections for U-238 and Th-232 using neutron capture gamma rays. *App. Radiat. Isot.* 38 (1987) 561.
- 4) M.A.P.V. de Moraes and M.F. Cesar. Photonuclear cross sections of U-233 using neutron capture gamma-rays near threshold. *Il Nuovo Cimento* 106A (1993) 1165.
- 5) A.S. Soldatov, V.E. Rudnikov and G.N. Smirenkin. Detailed measurements of the Np-237 photofission cross section near threshold. *Phys. At. Nuclei* 56 (1993) 1307.
- 6) C. Wagemans, "The Nuclear Fission Process", CRC Press, 1991, p.148.
- 7) L.P. Geraldo, M.T.F. Cesar and M.A.P.V. de Moraes. Study of actinide photonuclear reactions induced by gamma radiation from neutron capture. *Nucl. Sci. Eng.* 110 (1992) 128.
- 8) L.P. Geraldo, L.A. Vinhas and M.T.F. Cesar. Study of Np-237 photonuclear reactions near threshold induced by gamma rays from thermal neutron capture. *Nucl. Sci. Eng.* 89 (1985) 89.
- 9) L.P. Geraldo. Angular distribution of the photofission fragments of Np-237 at threshold energy. *J. Nucl. Phys. G - Nucl. Phys.* 12 (1986) 423.

- 10) M.A.P.V. de Moraes and M.F. Cesar. Photonuclear cross sections of Pu-239 using neutron capture gamma rays, near threshold. *Phys. Scripta* 47 (1993) 519.
- 11) M.A.P.V. de Moraes and M.F. Cesar. Photofission cross sections of U-233 and Pu-239 near threshold induced by gamma rays from thermal neutron capture. *Nucl. Inst. Methods* A277 (1989) 467.
- 12) R. Semmler and L.P. Geraldo. A new experimental apparatus for production and utilization of capture gamma rays. *Nucl. Inst. Meth.* A336 (1993) 171.
- 13) J.T. Caldwell, E.J. Dowdy, R.A. Alvarez, B.L. Berman and P. Meyer. Experimental determination of photofission neutron multiplicities for U-235, U-236, U-238 and Th-232 using monoenergetic photons. *Nucl. Sci. Eng.* 73 (1980) 153.
- 14) O.Y. Mafra, S. Kuniyoshi and J. Goldemberg. Intermediate structure in the photoneutron and photofission cross sections in U-238 and Th-232. *Nucl. Phys.* A186 (1972) 110.
- 15) O.Y. Mafra, M.F. Cesar and C. Renner. The $^{232}\text{Th}(\gamma, n)^{231}\text{Th}$ cross section near threshold. *Nucl. Phys.* A236 (1974) 1.
- 16) P.A. Dickey "Near threshold photofission and photoneutron emission in U-238 e Th-232". PhD Thesis, University of Illinois, 1975.