

CÂMARAS DE FISSÃO — CONSTRUÇÃO E CARACTERÍSTICAS

OLGA Y. MAFRA e FERNANDO G. BIANCHINI

PUBLICAÇÃO IEA N.º **145**

Junho — 1967

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

CÂMARAS DE FISSÃO - CONSTRUÇÃO E CARACTERÍSTICAS

Olga Y. Mafra e Fernando G. Bianchini

Divisão de Física Nuclear
Instituto de Energia Atômica
São Paulo - Brasil

Publicação IEA nº 145

Junho - 1967

Comissão Nacional de Energia Nuclear

Presidente: Prof. Uriel da Costa Ribeiro

Universidade de São Paulo

Reitor: Prof. Dr. Luiz Antonio da Gama e Silva

Instituto de Energia Atômica

Diretor: Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni

Conselho Técnico-Científico do IEA

Prof. Dr. José Moura Gonçalves	}	pela USP
Prof. Dr. José Augusto Martins		
Prof. Dr. Rui Ribeiro Franco	}	pela CNEN
Prof. Dr. Theodoro H. I. de Arruda Souto		

Divisões Didático-Científicas

Divisão de Física Nuclear -

Chefe: Prof. Dr. Marcello D. S. Santos

Divisão de Radioquímica -

Chefe: Prof. Dr. Fausto Walter de Lima

Divisão de Radiobiologia -

Chefe: Prof. Dr. Rômulo Ribeiro Pieroni

Divisão de Metalurgia Nuclear -

Chefe: Prof. Dr. Tharcísio D. S. Santos

Divisão de Engenharia Nuclear -

Chefe: Eng^o Pedro Bento de Camargo

Divisão de Engenharia Química -

Chefe: Lic. Alcídio Abrão

Divisão de Operação e Manutenção de Reatores -

Chefe: Eng^o Azor Camargo Penteado Filho

Divisão de Física de Reatores -

Chefe: Prof. Paulo Saraiva de Toledo

Divisão de Ensino e Formação -

CÂMARAS DE FISSÃO - CONSTRUÇÃO E CARACTERÍSTICAS

Olga Y. Mafra e Fernando G. Bianchini

RESUMO

Neste trabalho são apresentadas técnicas de eletrodeposição de urânio natural e tório na forma de óxidos, em placas de alumínio, com a finalidade de serem utilizadas em câmaras de fissão. Os limites conseguidos nestes depósitos foram de $2,5 \text{ mg/cm}^2$ e $1,5 \text{ mg/cm}^2$ de UO_2 e ThO_2 respectivamente. Estas placas foram montadas transversalmente ao eixo de uma câmara de ionização de gás circulante, constituído por uma mistura de 97% de argônio e 3% de nitrogênio. Uma justificativa para o uso desta mistura e as consequências da eventual presença de traços de oxigênio e vapor de água são analisadas. São apresentadas as características de funcionamento do detetor como câmara de ionização e gráficos da variação da altura de pulso em função da distância entre os eletrodos.

RESUMÉ

On expose les techniques utilisées dans le dépôt électrolytique des oxydes d'uranium et de thorium sur des disques d'aluminium destinés à la construction d'une chambre à fission. Les disques sont disposés perpendiculairement à l'axe d'une chambre tronco cylindrique où l'on fait la circulation d'un mélange gazeux d'argon (97%) et d'azote (3%). Les limites supérieures de la densité superficielle des dépôts obtenus ont été de $2,5 \text{ mg/cm}^2$ pour UO_2 et de $1,5 \text{ mg/cm}^2$ pour ThO_2 .

Les caractéristiques d'opération du détecteur comme une chambre d'ionization et la variation du niveau des impulsions, avec les distances entre les disques, sont présentées ici.

ABSTRACT

A technical description of the electrodeposition techniques of uranium and thorium oxides on aluminium plates, to be used as electrodes of a fission chamber is presented.

The maximum thickness of the coating obtained is 2,5 and 1,5 mg/cm² of uranium and thorium oxides respectively. These plates were used as the collecting electrodes of a gas flow ionization chamber; the filling gas being a mixture of 97% of argon and 3% of nitrogen.

Graphs showing the influence of oxygen and water vapor traces on the electron collection, and the pulse height distribution versus electrode separation are presented.

The data related to the operation of the detector as an ionization chamber is discussed.

I - INTRODUÇÃO

A reação de fissão é de grande importância em muitos aspectos da Física Nuclear, particularmente no que diz respeito ao seu emprego na detecção de radiações capazes de produzir fissão. Nestas aplicações é utilizada a ionização provocada pelos fragmentos de fissão.

Os fragmentos de fissão perdem sua energia cinética nos gases, principalmente por ionização, podendo esta ser utilizada em câmaras de ionização ou em detetores proporcionais, dependendo da finalidade a que se destine.

Câmaras de ionização não integradoras, isto é, câmaras de pulso, registram eventos individuais. A principal diferença destas com as câmaras integradoras reside na constante de tempo RC relativa à frequência das partículas incidentes. Consequentemente, um circuito detetor de pulsos deve ter uma constante de tempo pequena.

Se a constante de tempo for menor que 20 micro-segundos,

o movimento dos ions positivos não contribui para a corrente e neste caso, o sistema opera somente por coleção de eletrons, obtendo-se uma câmara que fornece pulsos correspondentes a eventos individuais.

O principal problema neste tipo de câmara é manter a pureza do gás com que elas são preenchidas, pois traços de oxigênio, de vapor de água ou de halogênios capturam eletrons facilmente, dando origem à formação de ions negativos de baixa mobilidade.

A vantagem mais importante da câmara de pulso é utilização na detecção de partículas fortemente ionizantes, isto é, de partículas alfa e produtos de fissão, na presença de intensidades consideráveis de radiações de baixa ionização específica (beta e gama).

II - DESCRIÇÃO DA CÂMARA DE FISSÃO

II.1 - Considerações Gerais

Em vista de linha de pesquisa a ser desenvolvida, a saber, a fotodesintegração do urânio e do tório, tornou-se necessário realizar o projeto e a construção de câmaras de fissão especiais.

A necessidade de obter condições de funcionamento caracterizadas por estabilidade a longo prazo, levou os autores a utilizar o regime de funcionamento de captação da ionização primária sem multiplicação no gás. Essa técnica obviamente requer o emprego de um pré-amplificador sensível à carga de maior sensibilidade do que os utilizados com os contadores proporcionais comuns, mas apresenta a vantagem de não requerer o emprego de fontes de alta tensão de grande estabilidade.

A câmara de fissão construída, do tipo a gás circulante, apresenta a vantagem de manter a pureza do gás, minimizando a influência da contaminação proveniente da libertação de gases oclusos

pelo material interno.

A utilização desta câmara em um feixe de radiação, e a exposição a este feixe da maior quantidade de material físsil possível, para se obter maior sensibilidade, foram os fatores que determinaram a forma da câmara e a disposição do material físsil no seu interior.

O material físsil foi depositado em forma sólida em ambos os lados de placas de alumínio. Este depósito não deve ser muito espesso devido a auto-absorção dos fragmentos de fissão.

Quando a radiação incidente é constituída por neutrons, a sensibilidade S para uma câmara de fissão é definida como a razão entre o número de reações nucleares (fissões) e o fluxo de neutrons incidentes.

$$S \phi = NV \int_0^{\infty} \sigma_f(E) \phi(E) dE$$

onde, N é o número de núcleos de urânio 235 por cm^3
V volume total de urânio dentro da câmara
E energia do neutron.

Se o espectro do fluxo de neutrons abrange uma gama de energia em que a seção de choque eficaz de fissão segue a lei $1/v$, resulta:

$$S \phi = NV \frac{\sigma_{f_0} v_0}{v} \phi$$

substituindo $NV = \frac{N_0}{A} \epsilon M$ e $\frac{v_0}{v} = \frac{1}{1,1284}$, resulta que a sensibilidade por unidade de superfície ($S/\text{unid. sup}$) = $1,53 \times 10^{-3} \epsilon.M.$,

onde ϵ é o fator de enriquecimento
M a massa superficial em mg/cm^2

Analisando-se a fórmula acima, verifica-se que a sensibilidade da câmara de fissão por unidade de superfície aumenta linearmente com a espessura do depósito. Entretanto, devido a auto-absorção dos fragmentos de fissão, a sensibilidade efetiva (rendimento) da câmara, em lugar de crescer com a espessura do material depositado tende a um valor de saturação, o que mostra não haver vantagens em se utilizar espessuras muito grandes. Esta espessura segundo cálculos de Mai⁽¹⁾ é da ordem de 2 mg/cm^2 .

Os fragmentos de fissão, originados nesta forma sólida de depósito, apresentam um intervalo de energia muito grande, variando de zero até cerca de 110 MeV. Isto é devido em parte ao intervalo natural que vai desde 40 a 110 MeV, e em parte à perda de energia do fragmento ao atravessar o próprio material.

Mesmo nestas condições é possível obter-se uma boa discriminação entre os pulsos devidos aos produtos de fissão e os pulsos devidos às partículas alfa emitidas pelo material físsil, pois uma vez fixados a forma da câmara, natureza do gás e pressão, a discriminação entre os dois grupos de produtos de fissão (leves e pesados) e as partículas alfa é função da distância entre os eletrodos⁽²⁾.

Com efeito, as partículas alfa dos elementos físséis têm um percurso nos gases, nas condições normais de pressão e temperatura, um pouco superior àquele dos produtos de fissão, e, por outro lado, a ionização específica não varia do mesmo modo para os produtos de fissão e as partículas alfa (tabela I). Esta ionização é maior no início do percurso para os fragmentos de fissão enquanto que ocorre o inverso para as partículas alfa. Portanto, consegue-se uma melhor discriminação entre os pulsos originados pelos produtos de fissão e as partículas alfa escolhendo-se a distância entre os eletrodos inferior ao percurso máximo das partículas (este percurso é inversamente proporcional à pressão do gás).

• O empilhamento de várias partículas alfa simulando a

altura de um pulso de fissão, com isso prejudicando a discriminação e a eficiência, pode ser diminuído melhorando-se o tempo de resolução do detetor e do sistema de detecção, o que pode ser verificado pela expressão:

$$C(n) = \frac{n_0}{1 - n_0 T} \frac{(n_0 T)^{n-1}}{(n-1)!} e^{-n_0 T} \quad (I)$$

onde

$C(n)$ = número de contagens por unidade de tempo, contendo n impulsos não resolvidos.

n_0 = número de desintegração por unidade de tempo.

T = duração do impulso, tomado como retangular.

Verifica-se que, uma vez fixado o tempo de resolução T , e o número de empilhamentos n desejado, fica determinada uma massa de material físsil adequada a ser depositada no interior da câmara.

II.2 - Detalhes da Câmara e Equipamento Eletrônico

A câmara de fissão projetada e construída é do tipo a gás circulante, sendo constituída de um cilindro de alumínio de 7,5 cm de diâmetro e 15 cm de altura, com paredes de 2 mm de espessura (figuras 1 e 2). No interior deste cilindro estão montadas 13 placas de alumínio paralelas entre si, transversalmente ao eixo, com espessura 0,2 mm, nas quais está depositado o material físsil dos dois lados. A primeira e a última placa possuem depósito somente de um lado. Estas placas são montadas de maneira a formar dois conjuntos, um servindo como eletrodo negativo e outro conjunto como eletrodo de alta tensão.

A distância entre as placas é de 0,5 cm, distância esta escolhida para obter-se uma melhor discriminação entre os pulsos devidos às partículas alfa emitidas pelo material físsil e aqueles devidos aos produtos de fissão ⁽²⁾ à pressão atmosférica.

O equipamento eletrônico (figura 3) consiste de um pré-amplificador, amplificador linear, analisador monocanal, escalímetro e medidor de tempo. Para maior facilidade os testes foram realizados com um analisador de 1024 canais TMC.

A maior parte do equipamento eletrônico é padrão, mas o pré-amplificador sensível à carga foi construído de modo a apresentar baixo ruído de saída.

O feixe de neutrons utilizado nos testes da câmara é monocromático, proveniente do reator após a reflexão de um feixe térmico por um monocristal de chumbo.

II.3 - Gás Utilizado - Propriedades

O gás utilizado é uma mistura de 97% de argônio com 3% de nitrogênio.

Uma das vantagens dessa mistura é a de manter a energia dos eletrons na descarga em torno de 1 eV, energia esta para a qual a seção de choque de absorção de eletrons pelo oxigênio apresenta um mínimo (figura 4). Com isso a câmara torna-se insensível à contaminação de oxigênio da ordem de 0,5%, como mostram os gráficos publicados por Facchini e Malvicini⁽⁴⁾ (figuras 5, 6 e 7).

Outra vantagem é a melhora do tempo de trânsito dos eletrons, diminuindo a largura do pulso⁽⁵⁾ e o seu tempo de subida, o que é importante para evitar o empilhamento de pulsos, conforme pode-se observar pela expressão (I).

Esta mistura pode ser obtida comercialmente com contaminações inferiores à 5 vpm de oxigênio e 5 vpm de vapor de água⁽⁶⁾.

II.4 - Preparação das Placas de Material Físsil

Existem três métodos para a deposição de material físsil em placas:

- Eletrodeposição
- Evaporação no vácuo
- Deposição simples (pintura com solução do material físsil e posterior queima para redução).

Dentre êstes foi escolhido o da eletrodeposição por apresentar a vantagem de permitir um depósito mais espesso por unidade de área e mais uniforme do que os obtidos pelos outros métodos citados.

O método de eletrodeposição consiste na eletrólise de uma solução que contenha o material a ser depositado. A maior dificuldade encontrada foi a determinação das condições ideais para a eletrólise, pois deve-se ter em mente que a corrente é também transportada por outros ions além dos do material a ser depositado. Assim a temperatura e a corrente foram obtidas empiricamente para cada caso específico:

Essas condições de eletrólise se referem a: tipo de solução, ph, tempo de deposição, corrente, temperatura, forma de cuba, forma e material do anodo, tratamento das placas antes e depois de efetuado o depósito.

Cuidados devem ser tomados quanto à purificação do material físsil, pois qualquer impureza da solução será depositada no catodo, especialmente para as correntes elevadas.

Estudamos as condições para a deposição do urânio e do tório. Os depósitos destes radionuclídeos foram feitos em alumínio.

II.5 - Método de Deposição

II.5.1 - Deposição de Óxido de Urânio em Alumínio

Como já foi justificado anteriormente, o método utilizado para a deposição foi o da eletrólise.

O urânio é depositado como $U(OH)_4$ na área do catodo depois da redução do UO_2^{++} . Após a deposição um ligeiro aquecimento transforma o depósito em U_3O_8 .

O eletrólito usado foi uma solução de nitrato de urânio $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ dissolvido em oxalato de amônia $C_2O_4(NH_4)_2 \cdot H_2O$ numa concentração 0,02M. A concentração do oxalato de amônia é de 0,2 M. O pH da solução foi ajustado para 8 com amoníaco⁽⁸⁾.

Utilizou-se um ânodo de platina, sob a forma de fio enrolado em espiral e mantido a uma distância da ordem de 2 cm do catodo, a fim de ser obtido um campo elétrico praticamente uniforme. A platina foi escolhida por não sofrer ataque da solução.

Como catodo utilizamos as placas de alumínio, lixadas com abrasivos em ordem decrescente de tamanho de grão, e em seguida limpas com tricloroetileno. O abrasivo possui a propriedade de eliminar a camada de óxido existente e de aumentar a superfície efetiva utilizável da placa.

A obtenção de uma estrutura cristalina fina no depósito é função da concentração de urânio na solução, de sua agitação e da densidade da corrente.

A velocidade de deposição do óxido de urânio é máxima à temperatura de $80^\circ C$; acima desta o depósito não fica aderente. A esta temperatura, as correntes de convecção são suficientes para agitar o eletrólito.

O potencial utilizado foi de 4 volts e a densidade de corrente mantida na ordem de 10 mA/cm^2 .

Nas condições descritas, conseguimos depósitos da ordem de $2,5 \text{ mg/cm}^2$, no tempo de 2,5 horas. Esta quantidade está em torno do máximo conseguido por este processo, conforme é descrito pela literatura existente (7, 8, 9, 10 e 11).

Tentamos depositar quantidades maiores e mais uniformes

com concentração de oxalato de amônia 0,4 M, ph de 3 a 5 e corrente variando desde 30 a 130 mA/cm². Não obtivemos resultados satisfatórios, pois os depósitos não ficaram aderentes às placas de alumínio.

II.5.2 - Deposição de Óxido de Tório em Alumínio

Na deposição do tório, também, foi usada a eletrólise. O tratamento das placas foi o mesmo descrito no método anterior.

Inicialmente foi tentado o método de deposição dado por Parker⁽¹²⁾, que usa uma solução de nitrato de tório $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ em acetona na concentração de 1,25 mg de tório em 15 ml de acetona.

Neste método não conseguimos depósitos aderentes, apesar de terem sido reproduzidas as condições dadas às placas e submetê-las a um tratamento térmico após o depósito.

Outro método tentado foi o de Gunten⁽¹³⁾, que utiliza solução de nitrato de tório em álcool etílico, numa concentração de 10 mg de tório em 100 ml de álcool.

Utilizou-se uma concentração de 145 mg de tório em 1000 ml de álcool, pois o objetivo era depositar quantidades maiores.

A corrente utilizada foi de 0,4 mA/cm², à temperatura ambiente. Após duas horas, o depósito obtido foi da ordem de 1,3 mg/cm², quantidade esta ligeiramente superior à encontrada na literatura⁽¹³⁾.

III - CARACTERÍSTICAS DA CÂMARA - COM URÂNIO NATURAL

Nas figuras 8 e 9 são apresentados os espectros da distribuição de altura de pulso contra o número de contagens, mantendo-se a distância entre os eletrodos 10 e 5 milímetros respectivamente.

Pode-se verificar por esses gráficos que com a distân-

cia de 5 mm obtem-se uma melhor resolução dos pulsos devidos aos fragmentos de fissão. Devido a isto consegue-se melhor discriminação entre os pulsos dos fragmentos de fissão e das partículas alfa.

Com a distância entre os elementos de 5 mm e o gás circulante à pressão atmosférica, foi feito o gráfico da figura 10 em que é representada a voltagem aplicada contra contagem por unidade de tempo. Neste, pode-se observar que a partir de 200 volts, o número de pulsos é constante com a variação da tensão, havendo assim grande estabilidade da câmara face às oscilações de tensão.

A verificação do regime de funcionamento da câmara, foi determinada através do cálculo da perda de energia do fragmento de fissão no espaço compreendido entre os eletrodos, o que tornou possível avaliar o salto de potencial produzido pela carga eletrônica primária no sistema cuja capacidade foi medida.

A altura média dos pulsos medida na câmara foi da ordem de 200 microvolts. A capacidade do sistema, que compreende a da câmara (170 pF), mais a do cabo coaxial (110 pF), é de 280 picofarad; em consequência a carga coletada devida à perda máxima de energia de um fragmento de fissão é de

$$Q_c \approx 5,6 \cdot 10^{-14} \text{ Coulomb}$$

Por outro lado, a perda média de energia de um fragmento de fissão no argônio, à pressão atmosférica, é da ordem de 4,5 MeV/mm⁽¹⁾. Sendo a energia média necessária para a formação de um par de ions (por fragmento de fissão) 25 eV resulta para uma distância entre eletrodos de 5 milímetros, uma carga total produzida de

$$Q_p \approx 2 \cdot 10^{-13} \text{ Coulomb}$$

Verificamos que $Q_p > Q_c$, ou seja, não há multiplicação

no gás, o que permite concluir que a câmara opera no regime de simples coleção da ionização primária.

Essa conclusão é reforçada pelo seguinte raciocínio: Supondo que um fragmento de fissão do grupo leve emitido tangencialmente à superfície da placa, perca toda sua energia (≈ 100 MeV) no espaço entre eletrodos, teríamos uma carga liberada de:

$$Q \approx 10^{-12} \text{ Coulomb.}$$

O máximo pulso detectado é da ordem de 400 microvolts, o que corresponde a uma carga coletada de

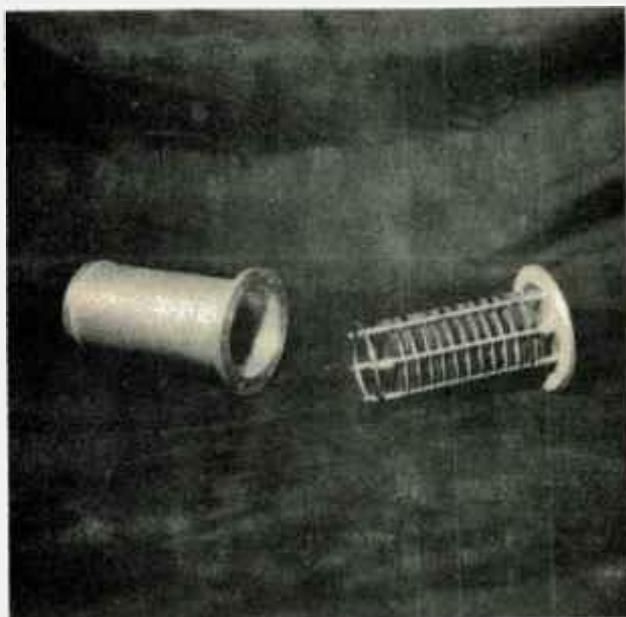
$$Q = 1,1 \cdot 10^{-13} \text{ Coulomb.}$$

Mesmo nestas condições extremas a carga coletada é menor do que a carga liberada.

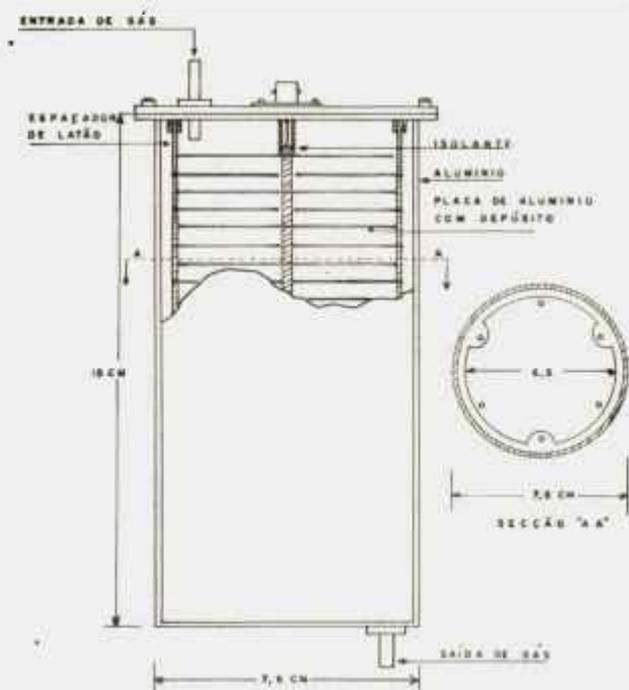
TABELA I

PROPRIEDADES DOS PRODUTOS DE FISSÃO DO U^{235}		
Propriedade	Grupo Leve	Grupo Pesado
número de massa	~ 95	~ 139
número atômico	~ 38	~ 54
carga média inicial	$\sim + 20 e$	$\sim + 22 e$
energia inicial, MeV	97	65
alcance no ar à NPT, mm	27	21

NPT - condições normais de pressão e temperatura.

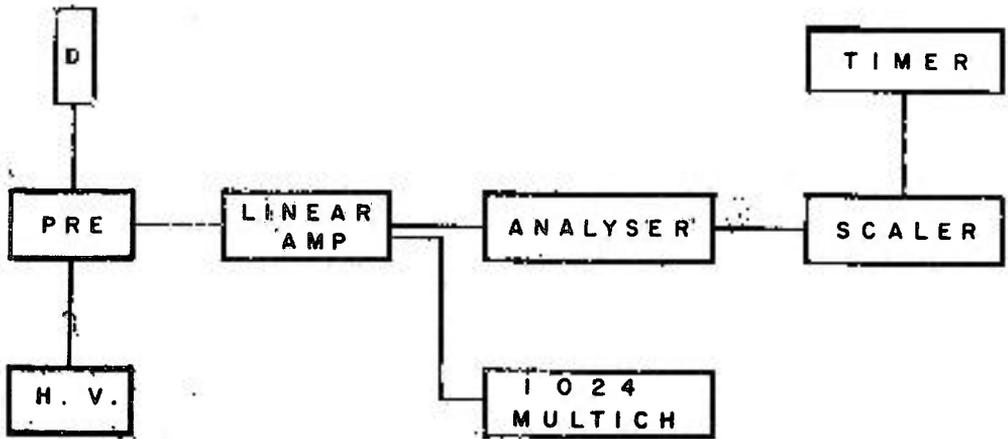


Fotografia da câmara de fissão antes da montagem
 Figura 1



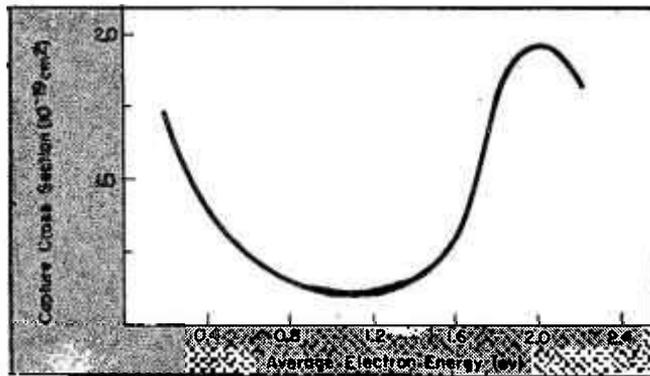
ESQUEMA DA CÂMARA DE FISSÃO

Figura 2



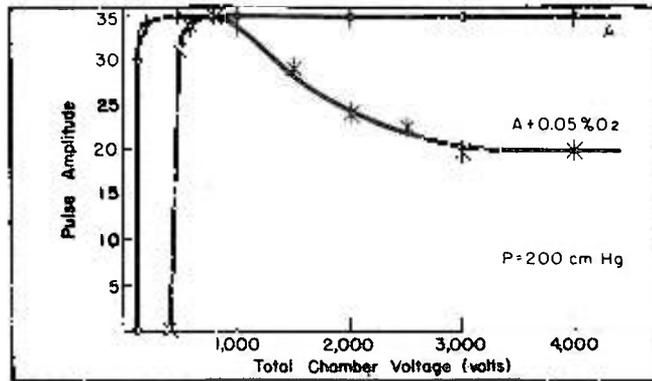
EQUIPAMENTO ELETRÔNICO

Figura 3



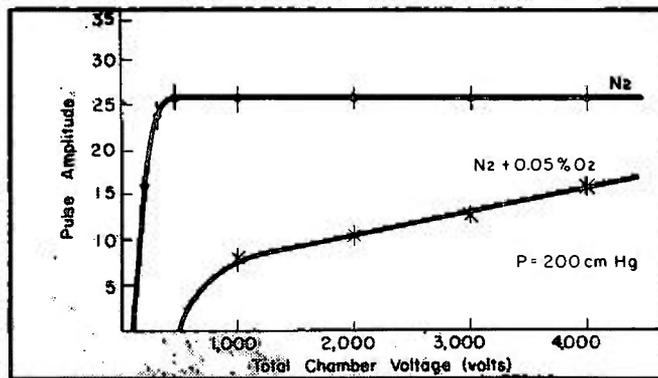
Seção de choque do O_2 para captura de eletrons

Figura 4



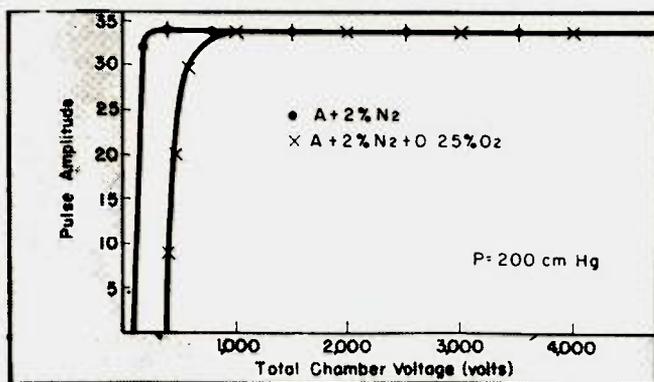
Altura de pulso versus voltagem aplicada à câmara
para A puro com 0,05% de O₂

Figura 5



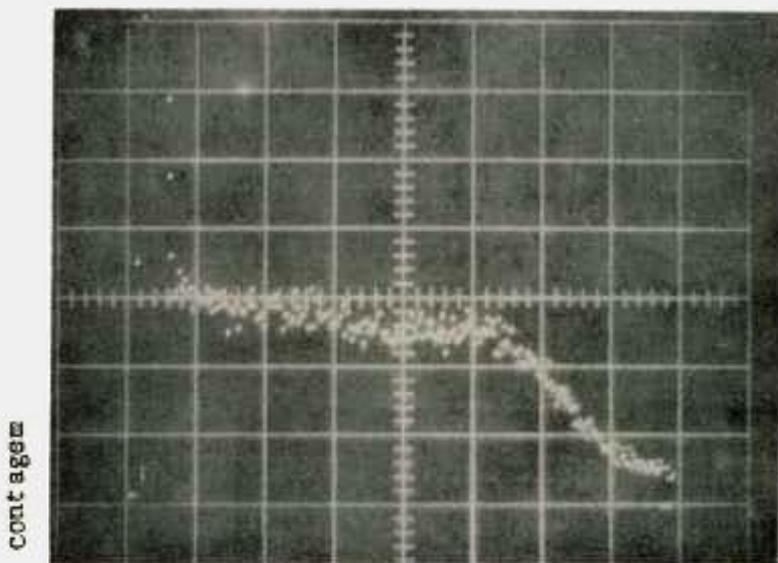
Altura de pulso versus voltagem aplicada à câmara
para N₂ puro com 0,05% de O₂

Figura 6



A altura de pulso para uma mistura de A-N₂ é pouco afetada pela adição de 0,25% de O₂

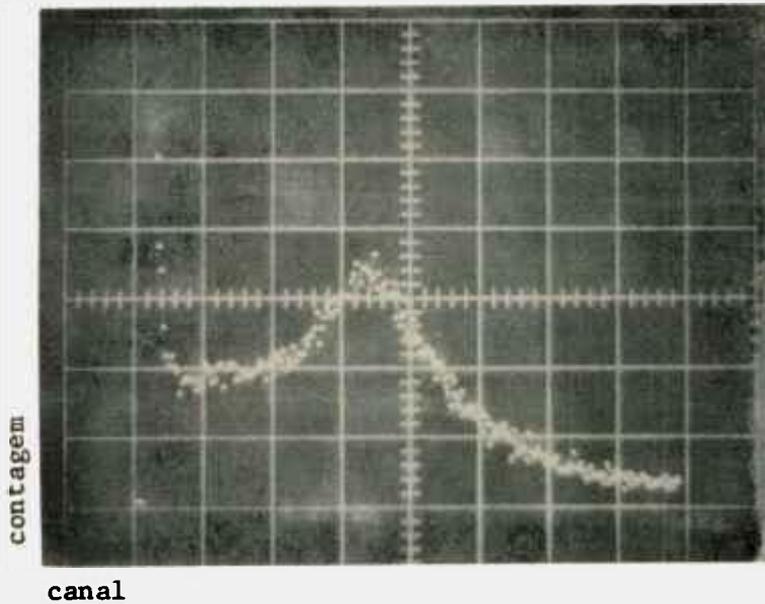
Figura 7



canal

Distribuição de altura de pulso obtida com analisador multicanal. Distância entre os eletrodos 10 mm. Gás utilizado A + 3% N₂ nas condições normais de pressão e tensão aplicada 400 volts.

Figura 8



Distribuição de altura de pulso obtida com analisador multicanal. Distância entre os eletrodos 5 mm. Gás utilizado A + 3% N₂ nas condições normais de pressão e tensão aplicada 400 volts.

Figura 9

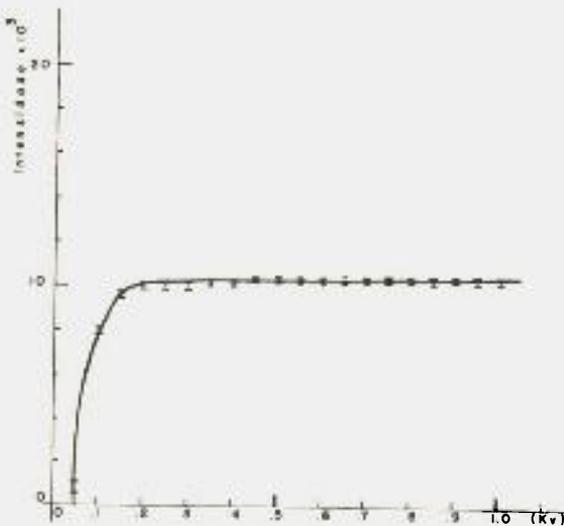


Gráfico da voltagem aplicada à câmara versus contagem por unidade de tempo

Figura 10

AGRADECIMENTOS

Ao Prof. Marcello Damy de Souza Santos, Chefe da Divisão de Física Nuclear, os autores desejam agradecer o especial interesse na orientação e em suas críticas construtivas.

Nossos agradecimentos ao Eng^o H. Motta Haydt, da Divisão de Metalurgia Nuclear pela laminação das placas de alumínio, à Oficina Mecânica na pessoa do Sr. José Ferreira, na confecção da câmara e ao bolsista Susumo Kuniyoshi, pelo trabalho de eletro-deposição dos materiais físséis nas placas.

REFERÊNCIAS

1. Mai, Vuong Quan - CEA-R-2962.
2. Lassen, N.O. - Phys. Rev. 70 (1946) pg. 577.
3. Rossi; Staub - Ionization Chambers and Counters - pg. 204.
4. Facchini, U.; Malvicini, A. - Nucleonics 13 (1955) pg. 36.
5. Nagy, T.; Nagy, L.; Desi, S - Nuclear Instr. and Meth. 8 (1960), pg. 327.
6. Oxigênio do Brasil S.A.
7. Laul, J.C.; Ramaniah, M.V.; Rad, C.L. - International Journal of Applied Rad and Isotopes - 17 (1966) nº 5, pg. 306.
8. Koch, L.; - Journal Nuclear Energy 2 (1955) pg. 110.
9. Choppin, G.R. - Experimental Nuclear Chemistry - Prentice - Hall - New Jersey, 1961.

10. Yaffe, L.A. - Review Nucl. Science, 12 (1962) pg. 153.
11. Cohen, B. and Hull, D.E. - The Transuranium Elements, -
National Nuclear Energy Series IV - 14 - B - Mc Graw Hill -
New York 1949.
12. Parker; Bildstein, W.; Getoffn, H. - Nuclear Instr. and
Meth. 26 (1964) pg. 55.
13. Gunten, H.R. von; Scherle, W. - The International Journal
of Applied Radiation and Isotopes - vol 15 (1964) pg. 169.
