

NANAMI KOSAKA

ESTUDO DA VIABILIDADE NEUTRÔNICA DE UM CONJUNTO SUBCRÍTICO DE TÓRIO

Orientador: Prof. Dr. Willem Jan Oosterkamp



Dissertação apresentada a Escola Politécnica da Universidade de São Paulo, para obtenção do título de Mestre em Ciências e Tecnologia Nucleares.

São Paulo, 1976

A meus pais

## AGRADECIMENTOS

Ao Prof. Dr. Willem Jan Oosterkamp, pela eficiente orientação que permitiu a elaboração deste trabalho.

Ao Prof. Eng. Pedro Bento de Camargo, Coordenador Geral da Engenharia Nuclear, pelo apoio recebido.

Ao Prof. Dr. Yoshiyuti Hukai, pelo importante papel que tem desempenhado na nossa formação.

Aos colegas da Coordenadoria de Engenharia Nuclear, pela colaboração prestada.

Aos operadores e analistas da Coordenadoria de Processamento de Dados, pela ajuda na execução dos programas.

À Srta. Creusa Moreira Diniz, pelos serviços de datilografia.

Às Coordenadorias de Engenharia Química e Metalurgia Nuclear pelo fornecimento dos materiais e informações.

Ao Instituto de Energia Atômica, pelo apoio financeiro.

## RESUMO

Neste trabalho é apresentado um estudo da viabilidade de construção de um conjunto subcrítico de tório, utilizando somente materiais e equipamentos disponíveis no IEA. Para tanto foram calculadas taxas de captura e de fissão do Th-232 e, pelos espectros de nêutrons obtidos, verificou-se que sistema representa perfeitamente um conjunto rápido onde poderão ser realizados estudos experimentais sobre as propriedades do tório na região de nêutrons rápidos.

Pelos resultados obtidos, conclui-se que a construção do conjunto subcrítico de tório é viável, dentro das condições de contorno consideradas e, observa-se que com pequenas modificações poder-se-ã também simular a região do envoltório do reator G C F R .

## Í N D I C E

	<u>pg</u>
1. INTRODUÇÃO.....	1
1.1 - Prefácio.....	1
1.2 - Estudos anteriores.....	4
1.3 - Objetivo e justificativa do trabalho.....	7
2. MATERIAIS UTILIZADOS .....	9
2.1 - Obtenção do material.....	9
2.2 - Fontes de nêutrons.....	11
3. DESENVOLVIMENTO DOS CÁLCULOS.....	13
3.1 - Influência das impurezas.....	13
3.2 - Preparação das secções de choque.....	14
3.3 - Cálculo dos parâmetros macroscópicos.....	18
3.4 - Programas utilizados.....	19
3.4.1 - X S D R N .....	19
3.4.2 - CITATION .....	20
3.5 - Esquema dos cálculos.....	20
4. PARTE EXPERIMENTAL .....	22
4.1 - Sistema de irradiação.....	22
4.2 - Sistema de contagem.....	23
4.3 - Sistema eletrônico associado.....	25
4.4 - Resolução dos detetores.....	27
4.5 - Arranjo experimental.....	29
4.6 - Determinação das taxas de captura.....	34

ÍNDICE (CONT.)	<u>pg</u>
5. RESULTADOS.....	42
5.1 - Resultados dos cálculos.....	42
5.1.1- Taxas de reação.....	42
5.1.2- Espectros.....	44
5.1.3- Estimativa do número de contagens.....	49
5.2 - Erros .....	51
5.2.1- Erros nos cálculos.....	51
5.2.2- Erros nas medidas experimentais.....	52
5.3 - Resultados Experimentais.....	55
6. CONCLUSÃO E COMENTÁRIOS.....	60
ANEXO A - Propriedades neutrônicas do U-233.....	62
ANEXO B - Teor das impurezas contidas em ThOCO <sub>3</sub> .....	65
ANEXO C - Estrutura dos grupos de energia.....	66
ANEXO D - Método de análise por ativação.....	67
ANEXO E - Esquema de decaimento do Th-233 .....	72
ANEXO F - Relação dos equipamentos utilizados na ex- periência .....	73
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	74

## LISTA DAS FIGURAS

<u>Nº</u>	<u>Título</u>	<u>pg</u>
2.1	Linha da monazita - fluxograma	10
3.1	Representação esquemática do conjunto subcrítico	17
3.2	Esquema do desenvolvimento dos cálculos	21
4.1	Componentes do sistema de irradiação	24
4.2	Diagrama de bloco do sistema eletrônico	26
4.3	Pico para definição de resolução	28
4.4	Secção de choque de captura e fissão do Th-232	32
4.5	Arranjo experimental I	33
4.6	Arranjo experimental II	33
4.7	Esquema de decaimento combinado do Th-233 e do Np-237	39
5.1	Distribuição espacial das taxas de fissão e captura do Th-232 no sistema subcrítico	43
5.2	Taxas de capturas do Th-232 e do ThO <sub>2</sub>	45
5.3	Espectro de nêutrons no sistema subcrítico	46
5.4	Espectros de nêutrons no sistema subcrítico a 10,25 e 50 cm da fonte	47
5.5	Comparação dos espectros de nêutrons na interface Caróço-Envoltório do GCFR com o Conjunto Subcrítico a 50 cm da fonte.	48
5.6	Variação do espectro de nêutrons, a 25 cm da fonte, com a umidade	50

## LISTA DAS FIGURAS

<u>Nº</u>	<u>Título</u>	<u>pg</u>
2.1	Linha da monazita - fluxograma	10
3.1	Representação esquemática do conjunto subcrítico	17
3.2	Esquema do desenvolvimento dos cálculos	21
4.1	Componentes do sistema de irradiação	24
4.2	Diagrama de bloco do sistema eletrônico	26
4.3	Pico para definição de resolução	28
4.4	Secção de choque de captura e fissão do Th-232	32
4.5	Arranjo experimental I	33
4.6	Arranjo experimental II	33
4.7	Esquema de decaimento combinado do Th-233 e do Np-237	39
5.1	Distribuição espacial das taxas de fissão e captura do Th-232 no sistema subcrítico	43
5.2	Taxas de capturas do Th-232 e do ThO <sub>2</sub>	45
5.3	Espectro de nêutrons no sistema subcrítico	46
5.4	Espectros de nêutrons no sistema subcrítico a 10,25 e 50 cm da fonte	47
5.5	Comparação dos espectros de nêutrons na interface Carço-Envoltório do GCFR com o Conjunto Subcrítico a 50 cm da fonte.	48
5.6	Variação do espectro de nêutrons, a 25 cm da fonte, com a umidade	50

<u>Nº</u>	<u>Título</u>	<u>pg</u>
5.7	CURVA A - Espectro de raios gama dos produtos de fissão rápido do Th-232 .	56
	CURVA B - Espectro de raios gama do Th-233	
5.8	Espectro de raios gama do Th-232 não irradiado	57
5.9	Espectro de raios gama do Th-233 obtido pela irradiação da amostra com neutrons térmicos	58
A.1	Secções de choque de fissão dos isótopos físséis	64
D.1	Esquema do método de análise por ativação	71

## E R R A T A

Na lista das figuras houve a seguinte errata

<u>Nº</u>	<u>Titulo</u>	<u>Pg.</u>
5.6 -	Varição do espectro de nêutrons, a 25 cm da fonte, com a umidade	50 leia-se pg. 56
5.7 -	CURVA A- Espectro de raios gama dos produtos de fissão rápido do Th-232	56 leia-se pg. 50
5.8 -	Espectro de raios gama do Th-232 não irradiado	57 leia-se pg 58
5.9 -	Espectro de raios gama do Th-233 obtido pela irradiação da amostra com nêutrons térmicos	58 leia-se pag 57

## 1. INTRODUÇÃO

### 1.1 - Prefácio

O objetivo principal do programa de desenvolvimento dos reatores rápidos é obter uma fonte de potência capaz de satisfazer economicamente a crescente demanda de energia. Embora a reserva mundial de urânio seja razoavelmente grande, o intenso ritmo de instalação dos reatores térmicos e, conseqüentemente o grande consumo de urânio, faz com que suas reservas, com custo abaixo de U\$10 /lb de  $U_3O_8$  se esgotem rapidamente. Deste modo o custo de combustível tende a crescer, tornando proibitiva a sua utilização para suprir as necessidades de energia por longo tempo. Uma das soluções propostas para este impasse é produzir o combustível necessário por conversão do material físsil a partir do fértil. Desde que a produção de material físsil significa aumento da capacidade de produção de nêutrons, que por seu turno podem ser utilizados para produzir mais material físsil a partir do Urânio-238 (U-238) ou Tório-232 (Th-232), a conversão, portanto, é uma fonte renovável de energia, sem encarecer o custo da exploração do minério.

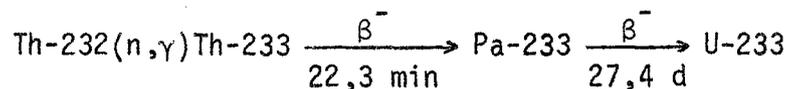
O reator que apresenta a propriedade de produzir mais isótopo físsil do que consumir (razão de conversão maior que 1), através da conversão do material fértil em físsil, é o reator rápido superconversor ("breeder"). Assim, o interesse por este tipo de

reator cresceu nesta última década e pesquisas têm sido orientadas no sentido do seu desenvolvimento e da sua otimização.

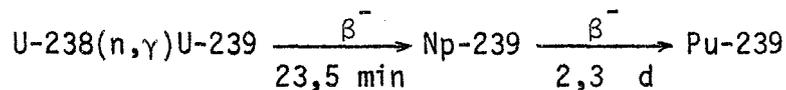
A produção do material físsil é conseguida envolvendo-se o caroço do reator com um envoltório ("blanket") de material fértil, onde a função primária desse envoltório é utilizar efetivamente nêutrons que escapam do caroço, para a conversão do material fértil em material físsil.

Dois ciclos principais são atualmente pesquisados; o ciclo de tório e o ciclo de urânio, onde as reações envolvidas são :

- ciclo do tório



- ciclo do urânio



Dentre estes dois ciclos, o que apresenta maior interesse é o do tório, pelas razões que se seguem:

- produção do U-233

Dadas as suas propriedades neutrônicas este isótopo é mais eficiente

do que U-235 ou Pu-239, quando usado em reatores térmicos (Anexo A) /31/. Isto implica um maior rendimento da central considerada como um todo e, daí, a sua importância fundamentalmente econômica.

- O tório metálico apresenta melhor estabilidade à irradiação do que o urânio /12/.

- Conforme trabalhos publicados /18,21,33/, o U-233 terá valor de mercado de 50% a 100% maior do que o Pu-239, por volta do fim deste século.

- Para o Brasil, onde as reservas de urânio conhecidas são escassas /22/, é de grande interesse a possibilidade do aproveitamento do tório em reatores. A nossa reserva de tório, a preço inferior a US\$10/lb de  $\text{ThO}_2$ , era estimada, em dezembro de 1972, em 2.400 toneladas de  $\text{ThO}_2$ ; contudo, as fontes potenciais atingem 30.000 toneladas de  $\text{ThO}_2$  (medidas) e 1.200.000 de  $\text{ThO}_2$  (estimadas) /23/.

Geralmente a utilização do tório como matéria-prima para a produção de combustível físsil representa uma maneira real de poupar as reservas de urânio, aumentando assim efetivamente o volume total do material físsil disponível em termos mundiais. Com a introdução comercial dos reatores rápidos superconversores, preconizada para futuro próximo /33/, teremos a vantagem da introdução de um sistema que produz mais isótopo físsil do que consome, fato este que estende mais a potencial capacidade de geração energética.

O presente trabalho insere-se dentro do programa de reatores rápidos que vem sendo desenvolvido pela Coordenadoria de Engenharia Nuclear no tocante à utilização do tório no envoltório de reator rápido do tipo GCFR (Gas Cooled Fast Breeder Reactor ).

## 1.2 - Estudos anteriores

O primeiro reator rápido superconversor experimental foi construído em 1949, Experimental Breeder Reactor I (EBR I) /19/. Concomitantemente com o desenvolvimento dos reatores rápidos, muitos conjuntos críticos e subcríticos /4,6,13,30,32/ foram construídos. São essencialmente conjuntos de baixa potência usados para obter dados experimentais dos parâmetros neutrônicos de reatores e compará-los com as previsões teóricas /8/. Nestes experimentos foi dada maior ênfase à região do caroço do reator, pois esta é mais crítica do que a região do envoltório para o funcionamento do reator, e por esta razão, poucas pesquisas foram realizadas sobre o comportamento do envoltório.

Mc Enhill e Weale /24/ apresentaram no 'Seminário sobre física de reatores rápidos e intermediários', realizado em Viena, em outubro de 1967, um trabalho sobre medidas integrais experimentais nos sistemas rápidos de Pu, U e Th. Os resultados experimentais obtidos não foram comparados com os cálculos e as taxas de reação foram integradas em todo o sistema. Por outro lado, Wood e Driscoll/33/ estudaram a utilização do  $\text{ThO}_2$  no envoltório de reatores do tipo LMFBR

(Liquid Metal Fast Breeder Reactor) do ponto de vista econômico e de desempenho do sistema. Muitos outros cálculos foram realizados para verificar o comportamento do tório nos envoltórios; assim A . Faya /11/ faz análise da avaliação neutrônica dos envoltórios de tório metálico nos reatores rápidos refrigerados a gás, concluindo que o emprego do tório metálico em lugar do  $UO_2$  traz maiores vantagens no que se refere à produção de material físsil.

Sobre o comportamento térmico e mecânico do tório metálico, S. Faya /12/ apresenta as distribuições de temperatura e tensões térmicas no envoltório, determinando assim o número de canais de refrigeração necessário no elemento de tório metálico. O modelo adotado em /11/ e /12/ foi um reator protótipo GCFR de 300 MWe projetado pela General Atomic. Oosterkamp /27/ faz um estudo neutrônico comparativo entre diversos materiais férteis ( $UO_2$ ,  $ThO_2$ , Th met), materiais puramente refletivos (C, BeO, Ni) ou misturas de ambos. Para um reator de 1000 MWe foi demonstrada a economicidade na utilização de  $ThO_2$ .

Em cálculo de reatores rápidos utilizam-se as secções de choque fornecidas pelas bibliotecas de constantes nucleares, como, por exemplo, ENDFB/III (Evaluation Nuclear Data File) compiladas pela Brookhaven National Laboratory. Estas bibliotecas são constituídas por coleção das melhores informações obtidas sobre constantes nucleares para todos os isótopos usados nos cálculos de reatores. Estes da-

dos foram exaustivamente testados através de medidas de parâmetros integrais realizadas em experiências em conjuntos críticos. Devido ao pouco interesse demonstrado anteriormente pelo tório, uma vez que o urânio predominava em importância, o número de experiências realizadas com o intuito de se obter valores de secções de choque do urânio é superior ao número de experiências análogas em relação ao tório (praticamente inexistente). Este fato confere aos dados referentes às secções de choque de tório, na região rápida ( $E > 10$  KeV), um caráter menos confiável do que para o urânio. Dias/10/ faz uma avaliação das secções de choque do Th-232 e U-233 usadas nos cálculos dos reatores rápidos.

Cerca de 30% da produção do material físsil ocorre no envoltório e a previsão teórica dos parâmetros físicos dessa região é mais difícil que a do caroço. Isto deve-se a grandes variações que ali ocorrem no espectro de nêutrons em função da posição. Em vista disso iniciaram-se programas de construção de conjuntos experimentais que simulassem o envoltório do reator, possibilitando a determinação de parâmetros neutrônicos. Por esta razão, em 1968, foi iniciada a construção do conjunto subcrítico denominado Blanket Test Facility (BTF 1) /13/, no laboratório do Massachusetts Institute of Technology (MIT), especificamente para simular um envoltório de óxido de urânio ( $UO_2$ ) de reator demonstração LMFBR. Em 1969 foram realizadas as primeiras experiências. Dentro deste programa foram ainda

projetados e construídos outros conjuntos, todos considerando somente U-238 como material fértil no envoltório\*. Rodrigues/28/ estuda a viabilidade de construção de um conjunto crítico térmico-rápido ( um conjunto acionado por um caroço térmico cercado radialmente por um anel conversor, de nêutrons térmicos para nêutrons rápidos, de tal forma que simule um caroço do reator rápido), com vista à futura aplicação na unidade crítica (RPZ) a ser instalada na Coordenadoria de Engenharia Nuclear (I E A ).

### 1.3 - Objetivo e justificativa do trabalho

Este trabalho consiste no estudo da viabilidade neutrônica de construção de um conjunto subcrítico contendo tório e acionado por uma fonte fixa de nêutrons rápidos. As condições básicas do projeto são que o conjunto deve apresentar geometria simples , baixo custo e ser construído somente com materiais e equipamentos atualmente disponíveis no Instituto de Energia Atômica.

---

\* Na Alemanha /20/, desde 1960, grandes esforços têm sido feitos no sentido de desenvolver métodos teóricos e experimentais de modo a prever mais realísticamente os parâmetros físicos dos reatores rápidos de potência. Em 1966 foi construído o reator de potência zero, SNEAK, onde tiveram lugar várias experiências utilizando U e Pu, visando a determinação de parâmetros neutrônicos do reator, em vista do projeto de construção do reator protótipo SNR-300.

O trabalho está dividido em duas fases:

- teórica , onde são calculadas as taxas de reação e o espectro de nêutrons.
- Experimental , onde se verifica a possibilidade de obter-se o espectro gama proveniente do decaimento do Th-233.

A construção do conjunto proposto permitirá realizar experiência onde serão determinados parâmetros integrais de reatores que apresentem envoltório de tório, tais como, taxas de captura e fissão, espectros de nêutrons, etc. Poder-se-á então testar as secções de choque utilizadas em cálculos de projetos de reatores rápidos e os métodos empregados.

## 2. MATERIAIS UTILIZADOS

Neste capítulo descreve-se a disponibilidade e escolha dos materiais usados nos cálculos.

### 2.1 - Obtenção do material

A monazita, essencialmente um ortofosfato de tório e de terras raras, continua sendo a principal fonte de tório. No Brasil, o processamento da monazita está sob a responsabilidade da Usina Santo Amaro (USAM), subordinada à Nuclebrás.

Na linha da produção da USAM, o tório e o urânio são obtidos como subprodutos das terras raras, sendo que estas são comercializadas sob a forma de concentrados, metais, ligas e compostos. Os resíduos de tório e o diuranato de urânio produzidos são entregues à Nuclebrás que os armazena, devido a seu interesse estratégico. A Figura 2.1 mostra as fases do processamento de monazita e os seus produtos finais.

O composto de urânio, sob a forma de diuranato de sódio ('Yellow cake'),  $\text{Na}_2\text{U}_2\text{O}_7$ , é usado na fabricação do combustível nuclear  $\text{UO}_2$  ou U-metálico nas Coordenadorias de Engenharia Química e Metalurgia Nuclear do IEA. A torta de tório disponível ( $\text{ThCO}_3$ ) foi usada neste trabalho. Fazendo-se a calcinação ( $T \sim 800^\circ\text{C}$ ), obtêm-se o óxido de tório (eliminando-se portanto o carbono que se desprende na forma de  $\text{CO}_2$ )

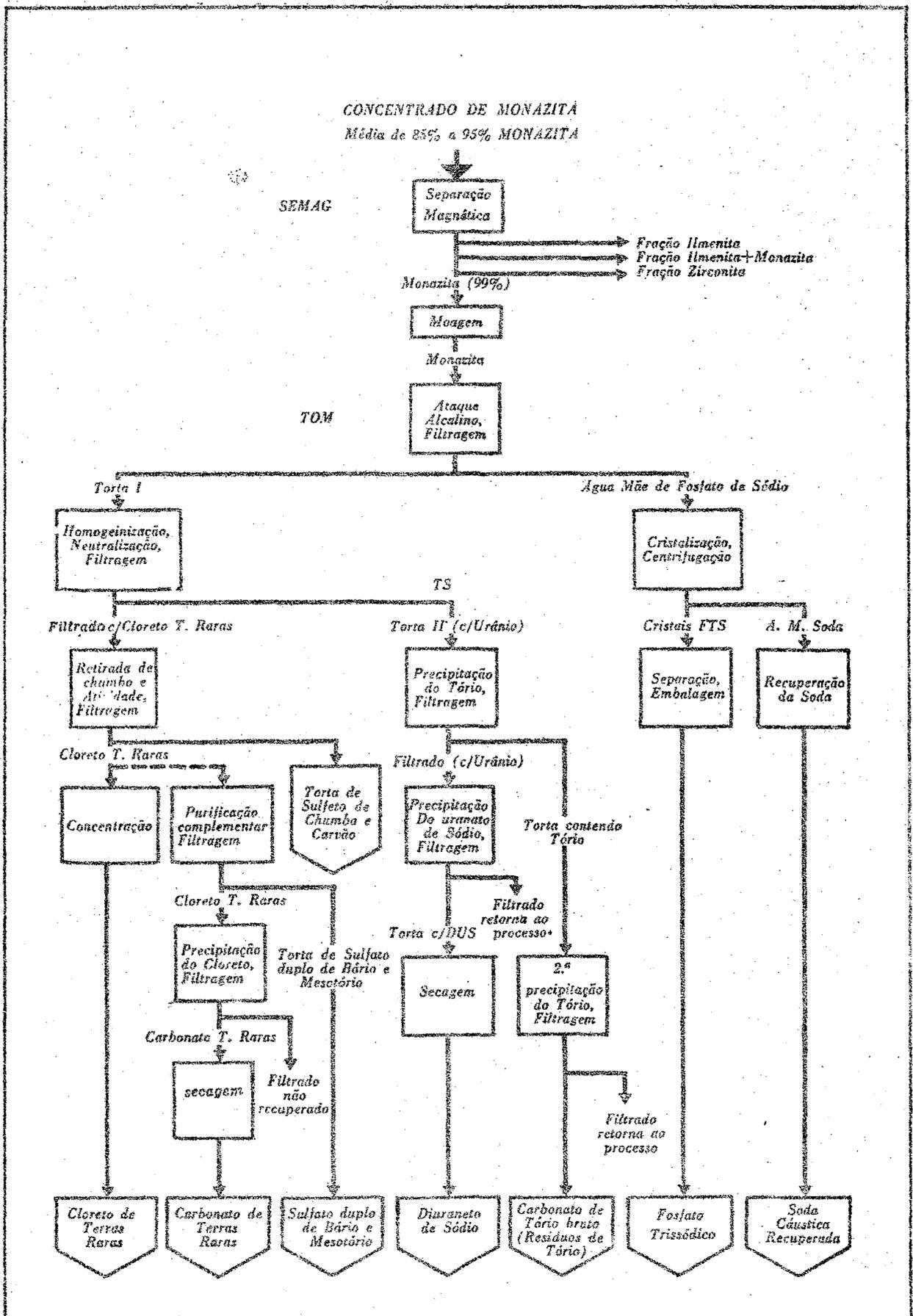


FIG. 2.1 - LINHA DA MONAZITA  
FLUXOGRAMA

que, embora esteja contaminado de terras raras e outros elementos (análise feita no Cap. 3) é ainda viável sua utilização.

Este trabalho baseou-se portanto em dados de  $\text{ThOCO}_3$ , cujo teor de impureza é apresentado no Anexo B. Deve-se salientar contudo que, devido a modificações na linha de processamento da monazita, a torta produzida atualmente contém um teor maior de impurezas, inclusive diferindo na sua composição. Entretanto este fato não afetará no prosseguimento do trabalho pois a Coordenadoria de Engenharia Química do IEA possui estocada uma quantidade apreciável de  $\text{ThOCO}_3$  com antigo teor. Com entrada em funcionamento da usina piloto de purificação de tório no IEA, previsto para o próximo ano, poder-se-á também contar com  $\text{ThO}_2$  nuclearmente puro.

## 2.2 - Fontes de nêutrons

A eficiência das fontes de nêutrons depende principalmente da sua intensidade, porque a ativação do nuclídeo é proporcional ao tempo de irradiação e ao fluxo de nêutrons. Em relação ao tempo de irradiação há um certo limite, pois a atividade atinge a saturação aproximadamente após 6 meias vidas do isótopo irradiado.

As fontes de nêutrons atualmente disponíveis no IEA são :

- Acelerador de partículas carregadas Van de Graaff de 400 KeV /1 / .

Os nêutrons são produzidos na reação deuteron-trítio e são emitidos com energia de 14 MeV, cuja intensidade é da ordem de  $10^{10}$  nêutrons por segundo.

- Californio-252 /3/.

Nêutrons com energia média de 2,35 MeV são emitidos no decaimento por fissão espontânea do Cf-252. A intensidade de emissão é da ordem de  $2,31 \times 10^{12}$  nêutrons/s.g. O Instituto de Energia Atômica adquiriu 350  $\mu$ g de Cf-252 em setembro de 1972, e a sua meia vida é de 2,65 anos, portanto devido ao decaimento, a atividade atual (março -1976) é da ordem de 40% da atividade inicial ( $3,22 \times 10^8$  n/s.).

- Tubo de fluxos de nêutrons do reator IEAR-1.

É essencialmente uma fonte de nêutrons térmicos; o fluxo de nêutrons rápidos é baixíssimo.

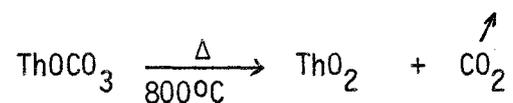
Dentre estes três, escolheu-se o acelerador Van de Graaff principalmente pela alta intensidade de emissão de nêutrons.

### 3. DESENVOLVIMENTO DOS CÁLCULOS

Neste capítulo é analisada a influência das impurezas contidas no  $\text{ThO}_2$  na absorção de nêutrons e em seguida apresenta-se o método de cálculo utilizado para determinar os parâmetros microscópicos e macroscópicos.

#### 3.1 - Influência das impurezas

De posse do concentrado de tório,  $\text{ThOCO}_3$  (óxido carbonato de tório, grau técnico) fornecido pela USAM, com o teor mínimo de 80 % de  $\text{ThO}_2$ , procedeu-se à análise quantitativa da influência das impurezas contidas em relação à absorção de nêutrons. Se a absorção verificada por parte das impurezas for muito grande, o material não poderá ser utilizado nas experiências, uma vez que o importante é a absorção pelo tório. O carbono não foi considerado porque no processo de calcinação o  $\text{CO}_2$  é liberado através da reação



Sendo  $I_i$  e  $N_i$  a integral de ressonância do isótopo  $i$  (em barns) e a concentração do isótopo  $i$  (em at/b cm), tem-se que

$$\Sigma_{ai} = N_i I_i \text{ (cm}^{-1}\text{)}$$

onde  $\Sigma_{ai}$  é a secção de choque macroscópica de absorção do isótopo  $i$ .

Desprezou-se o efeito dos elementos que apresentassem  $\Sigma_{ai}/\Sigma_{aTh}$  menor que  $10^{-3}$ , uma vez que o seu poder de absorção de nêutrons seria 1000 (mil) vezes menor que o do tório, e segundo os cálculos, não afeta o resultado. Seguindo este critério observa-se na Tabela 3.1, que somente o Lantânio (La-139) e o Samário (Sm-150) se encontram em condições de influir, podendo-se ignorar os demais elementos neste cálculo preliminar. A Tabela 3.2 mostra os isótopos utilizados nos cálculos e suas respectivas densidades.

### 3.2 - Preparação das secções de choque

Esta etapa consiste na preparação das secções de choque de multigrupos com o auxílio do programa de transporte XSDRN. /17/. A sua biblioteca contém dados de 191 isótopos para 123 grupos de energia, abrangendo um intervalo de  $10^{-4}$  eV a 15 MeV, compilados da biblioteca ENDFB/III. Estes dados referem-se a um sistema infinitamente diluído e portanto devem ser corrigidos para a situação do problema.

A presença de núclídeos com secções de choque que apresentem ressonância, para uma ou mais reações, faz com que haja perturbação no espectro de nêutrons. Assim são determinadas secções de choque efetivas usando como dados de entrada uma descrição da geometria do sistema, especificações de densidades de todos os isótopos componentes e as condições de ressonância.

O sistema em estudo apresenta uma distribuição homogênea de  $\text{ThO}_2$ , com as densidades especificadas na Tabela 3.2. A geometria é cilíndrica e a fonte de nêutrons é colocada em uma das faces, onde a emissão de nêutrons é isotrópica. Na Figura 3.1 pode-se visualizar o sistema.

A preparação das secções de choque de multigrupos é feita em três fases, a saber:

- Cálculo da ressonância, onde são calculados os parâmetros do grupo fino (secção de choque efetiva).
- Cálculo neutrônico, onde são determinadas as estruturas finas do fluxo.
- Cálculo das constantes nucleares, onde são gerados parâmetros que servirão como dados de entrada para os cálculos posteriores do reator, utilizando o programa CITATION.

As duas primeiras fases são efetuadas em 123 grupos de energia; na terceira fase ocorre a condensação dos grupos de energia onde, ponderados pelo espectro de nêutrons da reação, os 123 grupos são reduzidos a 30. (Anexo C).

Tabela 3.1 - Influência das impurezas na absorção de nêutrons

Impureza	Integral de ressonância /25/ (barn )	$\Sigma_{ia}/\Sigma_{aTh}$
Sm	$1,40 \times 10^3$	$2,435 \times 10^{-3}$
La	$1,22 \times 10^1$	$1,048 \times 10^{-3}$
Dy	$1,60 \times 10^3$	$5,597 \times 10^{-4}$
B	$3,41 \times 10^2$	$5,374 \times 10^{-4}$
Nd	$4,50 \times 10^1$	$3,227 \times 10^{-4}$
Ho	$7,00 \times 10^2$	$1,608 \times 10^{-4}$
Gd	$3,90 \times 10^2$	$1,222 \times 10^{-4}$
Eu	$2,43 \times 10^3$	$6,648 \times 10^{-5}$
Ce	$3,00 \times 10^0$	$4,527 \times 10^{-5}$
Pr	$1,41 \times 10^1$	$3,678 \times 10^{-5}$
Mo	$2,20 \times 10^1$	$8,689 \times 10^{-6}$
Zn	$2,30 \times 10^0$	$6,665 \times 10^{-6}$
Yb	$1,82 \times 10^2$	$5,179 \times 10^{-6}$
Y	$1,00 \times 10^0$	$2,136 \times 10^{-6}$
Cu	$3,20 \times 10^0$	$1,908 \times 10^{-6}$
Mn	$1,40 \times 10^1$	$1,545 \times 10^{-6}$
Ni	$2,20 \times 10^0$	$7,100 \times 10^{-7}$
Cr	$1,70 \times 10^0$	$6,190 \times 10^{-7}$
Cd	$4,00 \times 10^1$	$3,393 \times 10^{-7}$
Al	$1,70 \times 10^{-1}$	$1,190 \times 10^{-7}$
Mg	$3,80 \times 10^{-2}$	$2,700 \times 10^{-8}$
Sn	$8,50 \times 10^0$	$2,674 \times 10^{-8}$

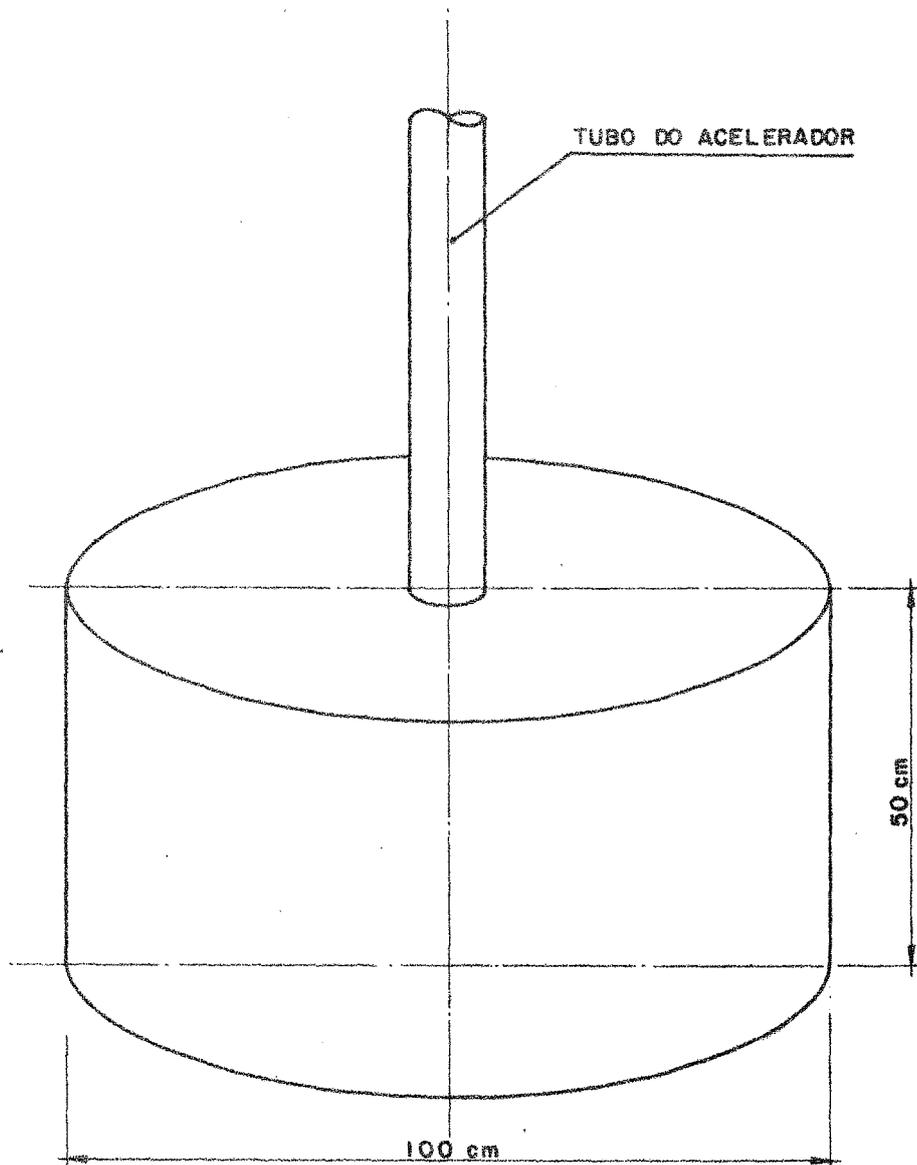


Fig 3.1 - REPRESENTAÇÃO ESQUEMÁTICA  
DO CONJUNTO SUBCRÍTICO

Tabela 3.2 - Densidade atômica dos isótopos	
Isótopos	Densidade (at/barn cm )
Th-232	$8,600 \times 10^{-3}$
O -16	$1,720 \times 10^{-2}$
La-139	$1,854 \times 10^{-6}$
Sm-150	$1,271 \times 10^{-6}$

### 3.3 - Cálculo dos parâmetros macroscópicos

Utilizando-se as secções de choque preparadas na fase anterior como dados de entrada, foram calculados os parâmetros macroscópicos do sistema. Estes cálculos foram feitos por intermédio do programa de difusão CITATION /14/ onde as equações de difusão são resolvidas - pelo método das diferenças finitas.

Fluxos de nêutrons, taxas de captura e de fissão do tório ( Tab. 3.3 ) foram determinados em vários pontos do sistema, a fim de verificar a variação destes parâmetros em relação à distância da fonte.

Distância da fonte (cm)	Taxa de Captura (cap/cm <sup>3</sup> s)	Taxa de fissão (fissão/cm <sup>3</sup> s)
2,5	$1,251 \times 10^4$	$1,021 \times 10^6$
5,0	$1,124 \times 10^4$	$4,381 \times 10^5$
10,0	$1,019 \times 10^4$	$1,386 \times 10^5$
20,0	$8,301 \times 10^3$	$3,399 \times 10^4$
30,0	$6,085 \times 10^3$	$1,218 \times 10^4$
40,0	$3,795 \times 10^3$	$5,106 \times 10^3$
50,0	$1,490 \times 10^3$	$2,448 \times 10^3$

### 3.4 - Programas utilizados

Descreve-se a seguir algumas características dos programas de computação usados para os cálculos.

#### 3.4.1 - XSDRN /17/

XSDRN é uma abreviatura para X-sections Dynamics for Reactor Nucleonics. Trata-se de um programa especial para gerar constantes nucleares de multigrupos nas regiões de energia rápida, térmica e de ressonância.

O código resolve a equação de transporte de Boltzman para geometria plana, cilíndrica e esférica, unidimensionalmente; parâ-

metros de multigrupo são calculados fazendo-se uma média ponderada sobre estrutura espacial ou sobre a estrutura de energia. Faz-se uma integração numérica direta da equação integral na determinação da densidade de colisão média, para o meio que contém elementos de absorção por ressonância.

Os dados de saída, segundo opção do usuário, poderão vir no formato de entrada para programas tais como DOT, ANISN, EXTERMINATOR, CITATION ou ROD.

#### 3.4.2 - CITATION /14/

O programa CITATION utiliza a teoria de difusão em multigrupos em concepção uni, bi e tri dimensional para os cálculos dos parâmetros macroscópicos, a equação de difusão é resolvida pelo tratamento das diferenças finitas.

Uma das suas principais características é a resolução dos problemas de queima de combustível, com a análise do sistema de recarregamento em multíciclo.

#### 3.5 - Esquema dos cálculos

A Figura 3.2 mostra o esquema da evolução dos cálculos levados a efeito no sistema de computação IBM-370 Mod. 155.

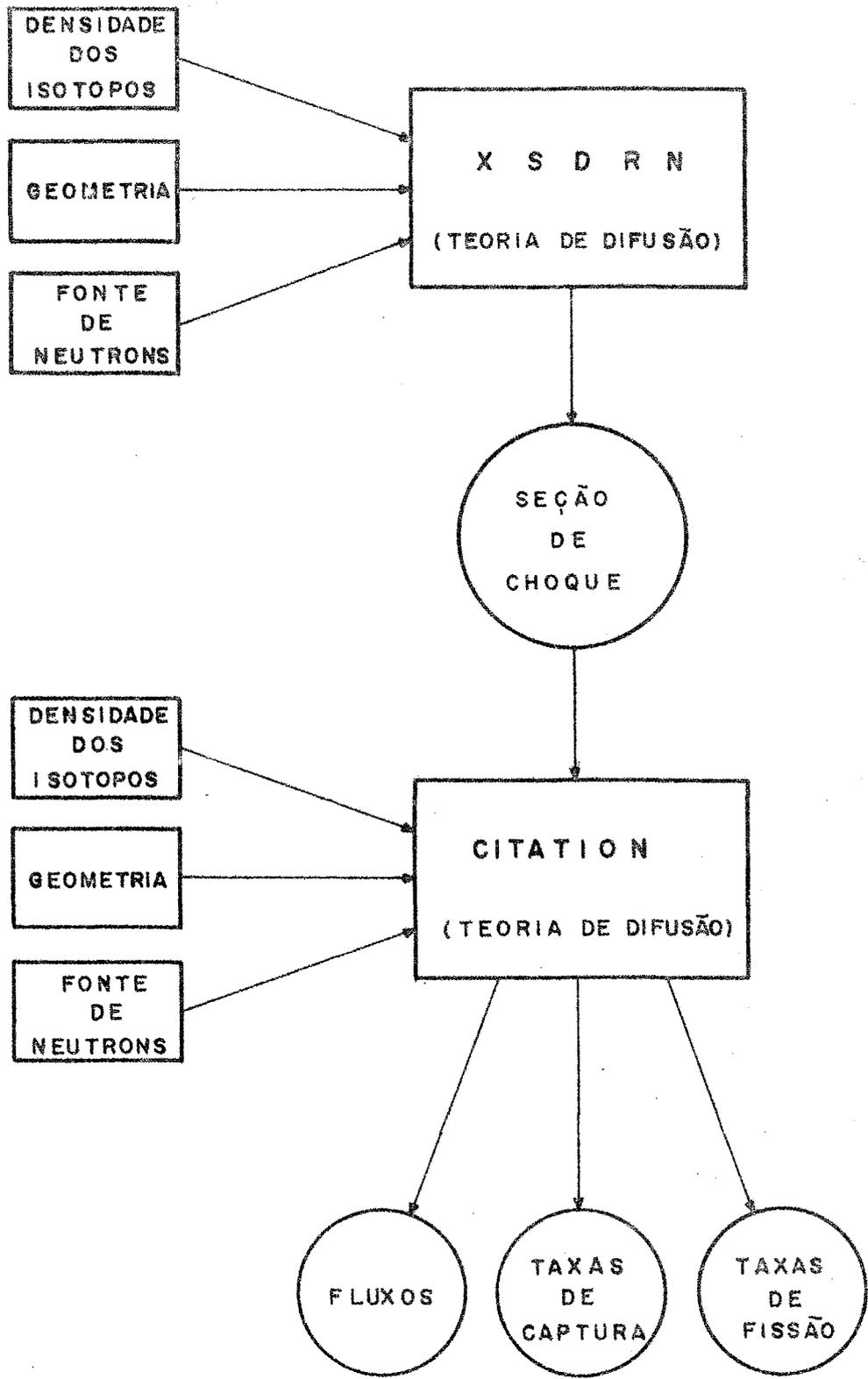
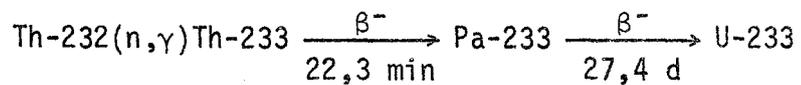


FIG. 3.2. ESQUEMA DO DESENVOLVIMENTO DOS CÁLCULOS

#### 4. PARTE EXPERIMENTAL

As experiências foram realizadas com o intuito de verificar a possibilidade de obter-se o espectro de raios  $\gamma$  do decaimento do Th-233, por meio da ativação por nêutrons. Para tanto as amostras de ThO<sub>2</sub> foram irradiadas por fluxos contínuos de nêutrons provenientes do acelerador Van de Graaff.

Nos processos de ativação ocorre a seguinte reação nuclear:



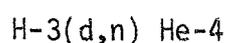
Por meio da medida da atividade do Th-233 é possível determinar o número de capturas de nêutrons ocorrido no Th-232/Anexo D /. O isótopo Th-233 formado decai para o estado excitado do Pa-233 ( Anexo E ) por emissão de raios  $\beta^-$  com uma meia vida de 22,3 minutos. As transições entre os níveis de energia (estados excitados) do Pa-233 se efetuam através da emissão de raios  $\gamma$  de energia na faixa de 86 KeV a 936 KeV . Dentre as radiações emitidas a de 459 KeV é a que predomina.

##### 4.1 - Sistemas de irradiação

A fonte de nêutrons utilizada foi o acelerador de partículas Van de Graaff /1/, modelo PN-400 da High Voltage Engineering Corporation, devido à alta intensidade de nêutrons que produz.

O acelerador consiste de uma fonte de alta tensão controlável (máxima 400 KV) , fonte de íons (deuterons), tubo onde os íons positivos são focalizados e acelerados; suporte de alvo, alvo, bomba de vácuo e acessórios; sistema de orientação e pulsação de feixe e circuitos eletrônicos associados.

Os deuterons são acelerados ( no máximo até 400 KeV), sob diferença de potencial constante, e atingem o alvo de 2,2 cm de diâmetro contendo trítio, onde ocorre a reação:



Os nêutrons assim produzidos são emitidos de maneira quase isotrópica, com energia de 14 MeV. A corrente máxima de deuterons é aproximadamente 0,15 mA e nas melhores condições, com alvo novo, a saída de nêutrons é da ordem de  $10^{10}$  n/s.

A Figura 4.1 mostra os componentes do sistema de irradiação usado.

#### 4.2 - Sistema de contagem

A detecção dos gamas emitidos pela amostra ativada de  $\text{ThO}_2$  foi feita com o detetor de estado sólido, Ge(Li), de  $73,7 \text{ cm}^3$  de volume ,

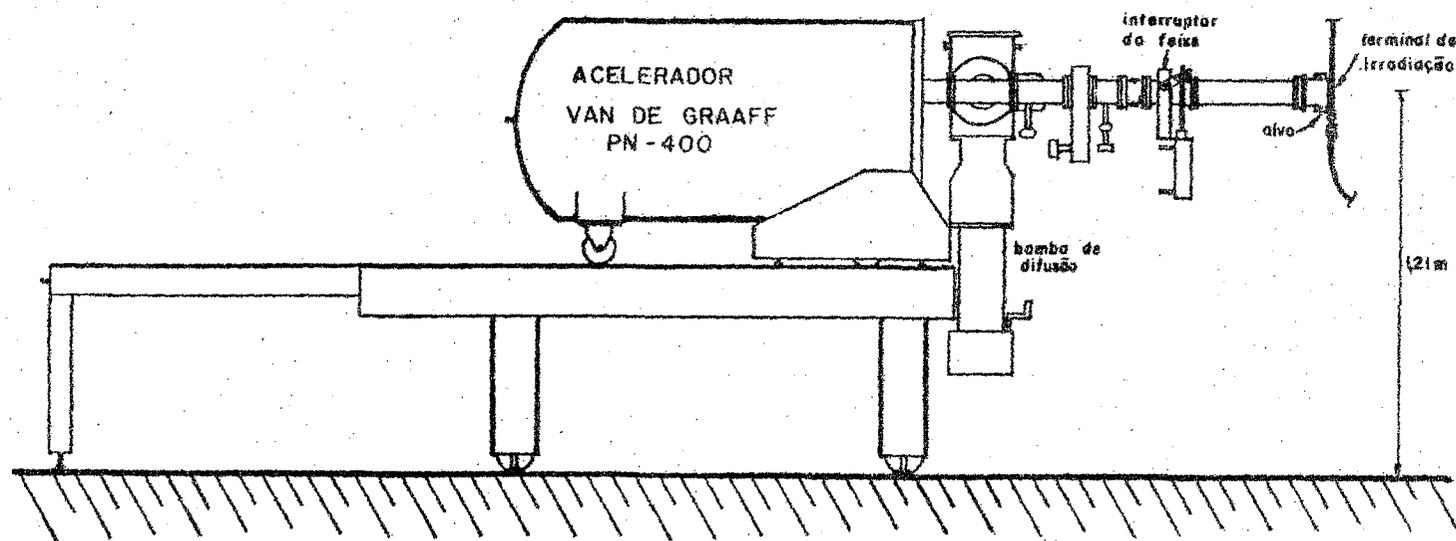


FIG. 4.1 - COMPONENTES DO SISTEMA DE IRRADIAÇÃO

fabricado pela Canberra Industries , Inc. A sua área ativa é  $18,9\text{cm}^2$  e a sua eficiência é 15% para raio gama correspondente à energia de 1,33 MeV.

Para diminuir o efeito da radiação de fundo, o detector e a amostra foram colocados dentro de uma blindagem de chumbo de 10 cm de parede, revestida internamente com Cádmio e Cobre.

O sistema de irradiação e o detector ficam localizados numa sala que dista cerca de 20 metros de outra onde estão os equipamentos eletrônicos e o painel de controle do acelerador. A resolução do detector nestas condições é de 4,8 KeV para a energia de 1,33 MeV. A capacidade dos detectores de estado sólido em apresentar alta resolução foi a principal característica da sua escolha, possibilitando assim distinguir fotopicos de energias muito próximas ( o que é essencial para espectrometria gama), apesar de exigirem equipamentos eletrônicos de baixo ruído e condições ambientais especiais.

#### 4.3 - Sistema eletrônico associado

A Figura 4.2 apresenta um diagrama de blocos do sistema eletrônico montado.

Os pulsos de saída do detector são, proporcionais à energia total da radiação gama coletada e, esses sinais, após terem passado pelos respectivos estágios de amplificação, constituídos pelo

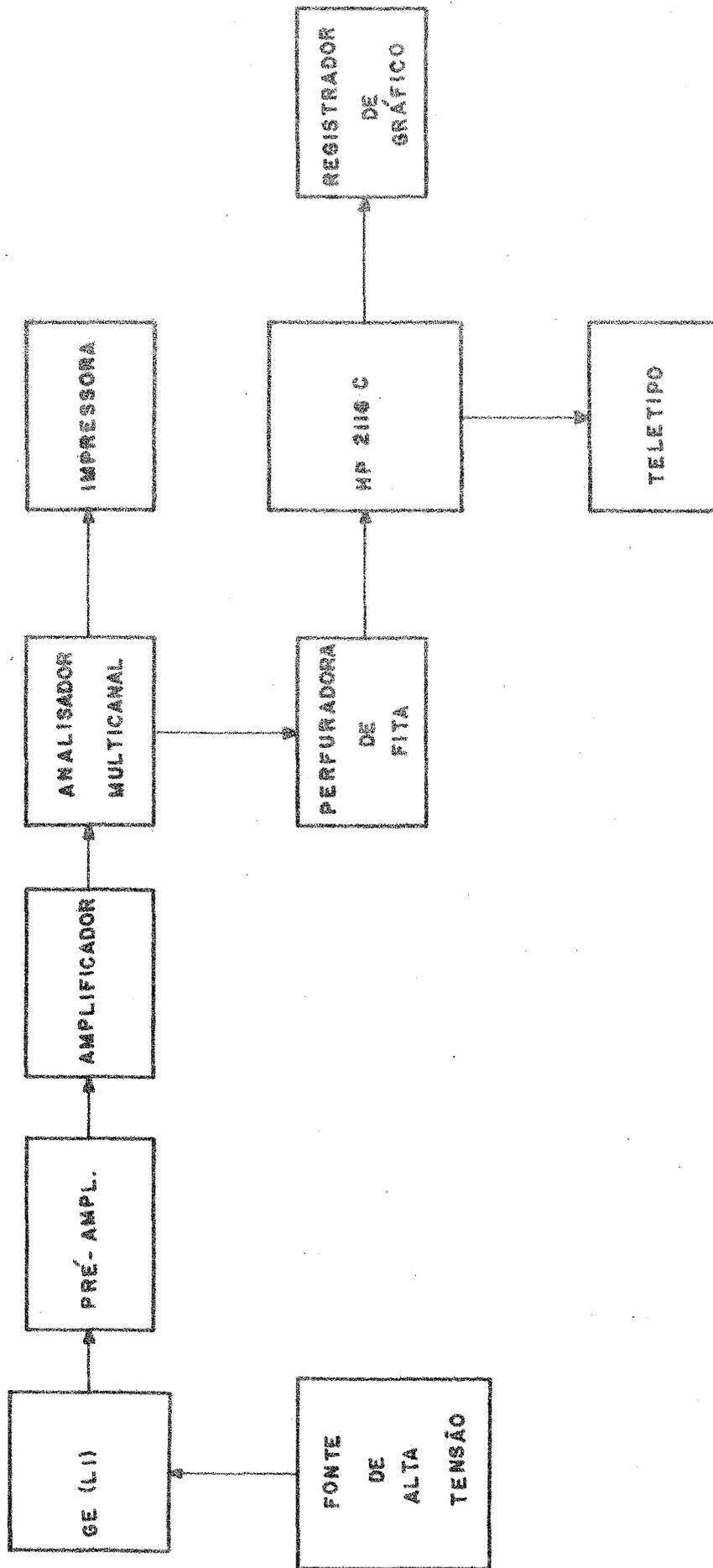


FIG. 4.2 DIAGRAMA DE BLOCO DO SISTEMA ELETRÔNICO

pré-amplificador e pelo amplificador, são registrados e discriminados pelo analisador multicanal de 4096 canais.

A calibração do sistema de contagem foi feita por meio de duas fontes radioisotópicas que apresentam no seu espectro fotopicos bem distintos, com energias bem definidas: Co-60 (1,17 MeV e 1,33 MeV) e Cs-137 (0,66 MeV).

O espectro de Th-233 armazenado no multicanal é transferido para uma fita perfurada e por meio de um sistema de aquisição de dados modelo HP-2116 C, e, através de um registrador de gráficos, o espectro é desenhado e analisado. Para essa análise foi desenvolvido por Machado /2/ um programa especial para este sistema que consta de sete opções:

- ler um espectro em fita perfurada;
- fazer "smoothing" do espectro;
- escrever no teletipo o espectro e sair fita em ASC II;
- desenhar o espectro;
- fazer regressão multilinear;
- fazer análise do espectro por "cross colleration";
- combinação linear de dois espectros;

#### 4.4 - Resolução dos detetores

A resolução é definida como sendo a razão entre a largura à meia altura do pico, pela energia do pico (Fig.4.3), tem-se assim:

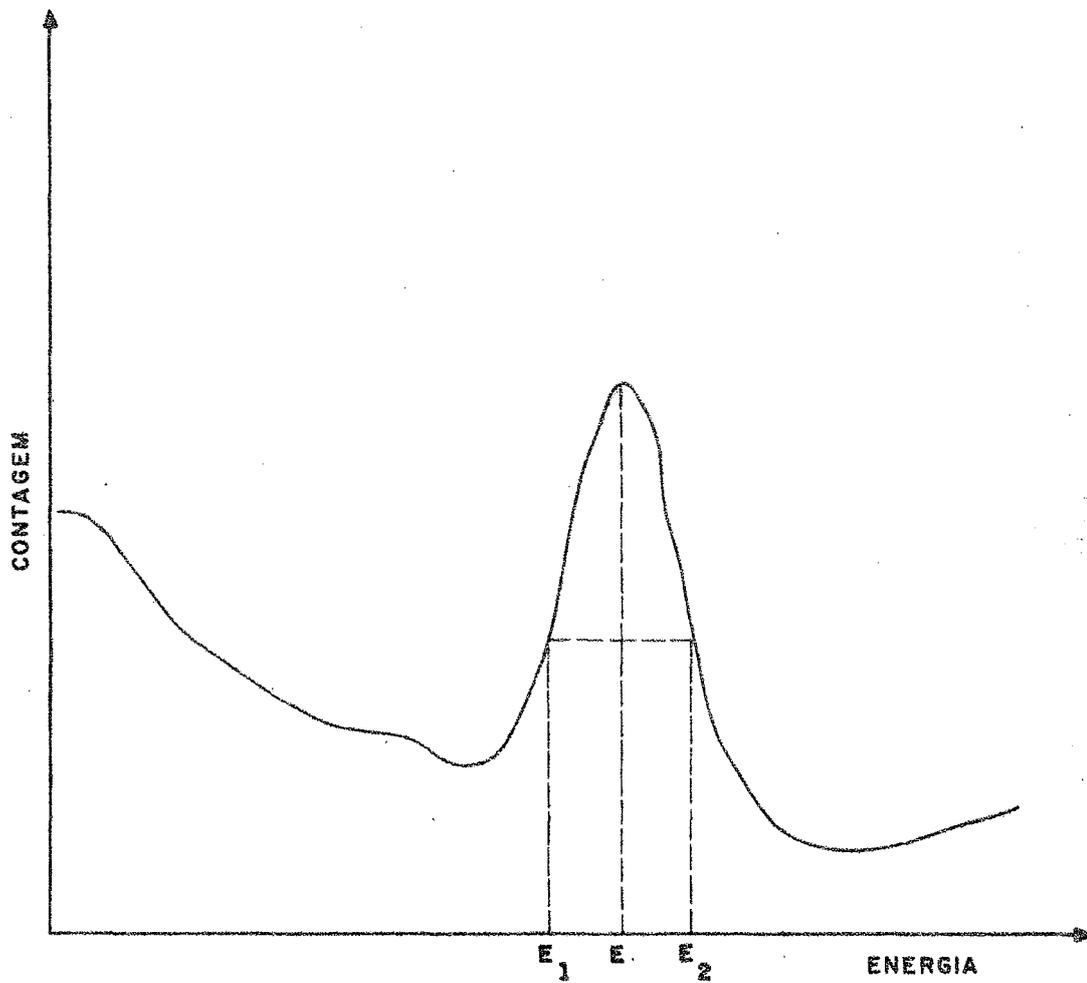


Fig. 4.3.— Pico para definição de resolução de detetor

$$R(\%) = \left( \frac{E_2 - E_1}{E} \right) \cdot 100 = \frac{\Delta E}{E} \cdot 100$$

onde

$E$  = energia do pico

$E_1$  e  $E_2$  = energias à meia altura do pico

$R$  = resolução do detetor .

Portanto, a resolução de um detetor é dada em função da energia da radiação gama. Os detetores de estado sólido apresentam picos bem resolvidos numa larga faixa de energia, o que permite discriminação das linhas espectrais de energias próximas.

#### 4.5 - Arranjo experimental

A obtenção do espectro de captura do Th-233 é dificultada dada a presença da atividade dos produtos de fissão rápida do Th-232 e dos descendentes do tório. Nas regiões térmicas e epitérmicas não há problemas de interferência de outras reações que dificultem a medida da taxa de captura, além de que, nestas regiões as secções de choque de captura são sensivelmente maiores (cerca de sete vezes às da região rápida). A energia limiar de fissão é da ordem de 1 MeV e o valor da secção de choque de fissão é comparável ao da captura nesta região de energia, dificultando assim a distinção entre a captura e a fissão.

Na Tabela 4.1 está esquematizada a série do tório. A secção de choque de captura e de fissão em função da energia é apresentada graficamente na Figura 4.4.

Para analisar o efeito dos produtos de fissão rápida no espectro de captura, dois arranjos experimentais foram montados : um onde ocorre somente a fissão e outro onde a fissão e a captura estão presentes.

#### Arranjo I

A montagem (Fig. 4.5) consiste em colocar a amostra junto ao alvo, deste modo a amostra é bombardeada pelo fluxo de nêutrons rápidos ( 14 MeV) . Assim, ocorre apenas fissão rápida, uma vez que a secção de choque de captura do tório se anula a uma energia de 9 MeV, e a energia limiar de fissão é da ordem de 1 MeV.

Conclui-se que o espectro de raios gama obtido nesta experiência é devido somente aos produtos de fissão formados.

#### Arranjo II

Neste caso espera-se obter o espectro de captura do tório. Uma placa de parafina de 5 cm de espessura foi colocada entre o alvo e a amostra ( Fig. 4.6) a fim de moderar os nêutrons rápidos ( 14 MeV) emitidos pela fonte para energia abaixo de 9 MeV.

Tabela 4.1 - Série do tório (4n)					
Nuclídeo	nome histórico	meia vida	Energia da radiação e intensidade		
			$\alpha$	$\beta$	$\gamma$
$^{232}_{90}\text{Th}$	Thorium	$1,41 \times 10^{10} \text{y}$	3,95 (24 %) 4,01 (76 %)	-----	-----
$^{238}_{88}\text{Ra}$	Mesothorium I	6,7y	-----	0,055 (100%)	-----
$^{228}_{89}\text{Ac}$	Mesothorium II	6,13h	-----	1,18 (35 %) 1,75 (12 %) 2,09 (12 %)	0,34c (15 %) 0,908 (25 %) 0,96c (20 %)
$^{228}_{90}\text{Th}$	Radiothorium	1,910y	5,34 (28 %) 5,43 (71 %)	-----	0,084 (1,6%) 0,214 (0,3%)
$^{224}_{88}\text{Ra}$	Thorium X	3,64d	5,45 (6 %) 5,68 (94 %)	-----	0,241 (3,7%)
$^{220}_{86}\text{Rn}$	Emanation Thoron (Tn)	55s	6,29 (100%)	-----	0,55 (0,07%)
$^{216}_{84}\text{Po}$	Thorium A	0,15s	6,78 (100%)	-----	-----
$^{212}_{82}\text{Pb}$	Thorium B	10,64h	-----	0,346 (81 %) 0,586 (14 %)	0,239 (47 %) 0,300 (3,2%)
$^{212}_{83}\text{Bi}$	Thorium C	60,6m	6,05 (25 %) 6,09 (10 %)	1,55 (5 %) 2,26 (55 %)	0,040 (2 %) 0,727 (7 %)
$^{212}_{84}\text{Po}$ (64,0%) $^{212}_{83}\text{Bi}$ (36,0%)	Thorium C'	30,4ns	8,78 (100%)	-----	-----
$^{212}_{84}\text{Po}$ (64,0%) $^{208}_{81}\text{Tl}$ (36,0%)	Thorium C''	3,10m	-----	1,28 (25 %) 1,52 (21 %) 1,80 (50 %)	0,511 (23 %) 0,583 (86 %) 0,860 (12 %) 2,614 (100%)
$^{208}_{82}\text{Pb}$	Thorium D	estável	-----	-----	-----

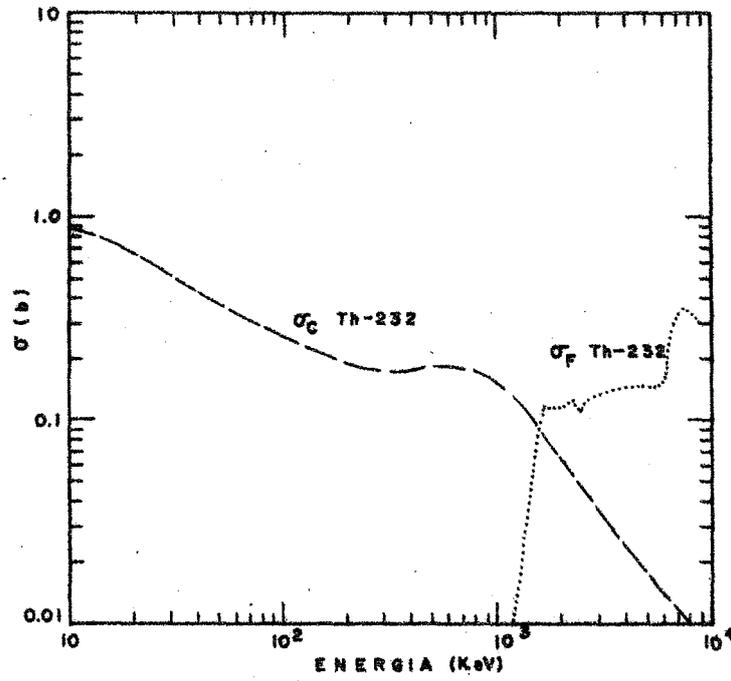


Fig. 4.4- Secções de choque de captura e de fissão do Th-232

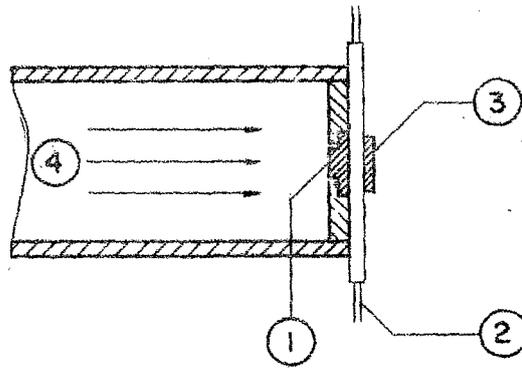


FIG. 4.5 ARRANJO EXPERIMENTAL I

1-ALVO DE TRÍTIO; 2- REFRIGERAÇÃO DO ALVO  
3-AMOSTRA DE  $\text{THO}_2$ ; 4- FEIXE DE DEUTERONS

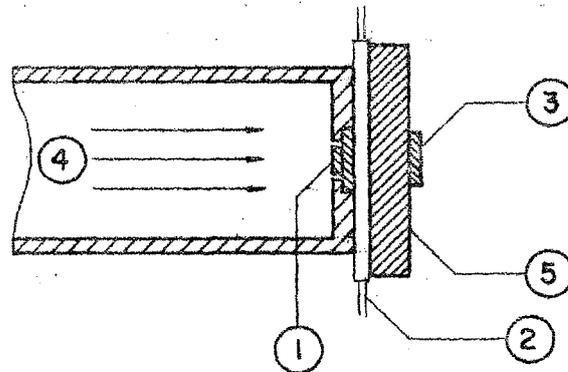


FIG. 4.6 ARRANJO EXPERIMENTAL II

1-ALVO DE TRÍTIO; 2- REFRIGERAÇÃO DO ALVO  
3-AMOSTRA DE  $\text{THO}_2$ ; 4- FEIXE DE DEUTERONS  
5-PLACA DE PARAFINA

Os nêutrons , ao colidirem com os átomos da parafina , perdem parte da sua energia moderando-se e tornam-se assim suscetíveis à captura por parte do tório. Portanto neste arranjo ocorre captura e fissão, sendo o espectro dele resultante devido ao decaimento do Th-233 e aos produtos de fissão produzidos.

Em ambos os arranjos fixou-se o limite inferior do analisador na altura de 100 KeV, a fim de minimizar o efeito do ruído nas contagens.

Comparando o espectro típico do Th-233 com aqueles obtidos nas fases I e II, pode-se determinar os fotopicos devido à captura. Através do espectro de captura pode-se determinar o número total de capturas ocorridas e a atividade absoluta, que é obtida somando-se as contagens sob o fotopico. Deve-se conhecer , então, a eficiência do detector e as características de decaimento do isótopo ativado. A contagem é então corrigida por um fator que leva em consideração a eficiência do detector, a fotofração e a geometria.

#### 4.6 - Determinação das taxas de captura

Há muitos métodos para se determinar a taxa de captura do Th-232. Neste ítem são abordadas algumas técnicas que poderão ser aplicadas quando da realização das experiências no conjunto subcrítico proposto.

As amostras de tório são irradiadas pelo fluxo de nêutrons rápidos e detectam-se as radiações  $\gamma$  emitidas pelas amostras. O que difere entre os métodos é o meio em que a atividade absoluta da amostra é determinada e a fonte de calibração utilizada.

- 1º método

Após irradiar a amostra mede-se a atividade do Th-233 formado pela captura de nêutrons pelo Th-232. Este método é muito empregado na determinação das secções de choque de captura do Th-232 - nas regiões de nêutrons de energia térmica e epitérmica. O método pode ser aplicado também na região de nêutrons rápidos, mas não se obtém a precisão necessária em virtude da atividade dos produtos de fissão - presentes, que dificultam a distinção dos gamas provenientes do decaimento do Th-233. Esta interferência é acentuada devido ao baixo valor das secções de choque de captura para nêutrons rápidos, apresentado pelo tório, assim a atividade induzida é pequena.

Neste método deve-se conhecer com exatidão a eficiência do detetor, a intensidade do raio  $\gamma$  emitido e a eficiência do sistema de contagem, de modo a se fazer correções na contagem obtida, determinando-se assim a atividade do Th-233 e conseqüentemente a taxa de captura do Th-232.

- 2º método

Um meio de eliminar a influência dos produtos de fissão

rápida é a separação química dos mesmos, após a irradiação da amostra. Este processo, entretanto, apresenta a desvantagem da destruição da amostra e, além disso, devido ao longo tempo gasto no processo químico, a atividade do Th-233 torna-se praticamente nula por sua curta meia vida. Neste caso considera-se a medida da atividade do Pa-233 ( formado por decaimento  $\beta^-$  do Th-233). Entretanto por sua longa meia vida, obter-se-ia atividade pequena e portanto, o tempo necessário para a saturação seria grande, implicando em longo tempo de bombardeamento.

### - 3º método

O problema de calibração, que envolve a determinação da massa da amostra e a eficiência do detetor é difícil ; para tanto o método de irradiação num fluxo térmico é comumente empregado. Neste processo amostras iguais de tório são irradiadas por fluxo de nêutrons térmicos e rápidos.

As secções de choque de captura do Th-232, na região térmica são bem definidas e conhecidas. Conhecendo-se absolutamente o fluxo térmico tem-se:

$$C_1 = N_1 \sigma_{ct} \phi_t$$

e

$$N_1 = \frac{C_1}{\sigma_{ct} \phi_t}$$

onde:

$C_1$  = contagem da radiação gama emitida pela amostra ativada;

$\phi_t$  = fluxo de nêutrons t̄ermicos conhecido ( $n/cm^2s$ )

$\sigma_{ct}$  = sec̄ção de choque de captura na regīão t̄ermica ( $cm^2$ )

$N_1$  = n̄mero de ̄tomos da amostra.

Da amostra irradiada no fluxo r̄apido tem-se:

$$C_2 = N_2 \sigma_{cr} \phi_r$$

$$N_2 = \frac{C_2}{\sigma_{cr} \phi_r}$$

onde:

$C_2$  = contagem da radiāção gama emitida pela amostra irradiada por fluxo r̄apido;

$\phi_r$  = fluxo de nêutrons r̄apidos;

$\sigma_{cr}$  = sec̄ção de choque de captura na regīão r̄apida;

$N_2$  = n̄mero de ̄tomos da amostra;

sendo que  $\sigma_{cr}$  e  $\phi_r$  n̄o s̄o determinados.

Da condīção de que as amostras sejam iguais, tem-se:

$$N_1 = N_2$$

donde:

$$\frac{C_1}{\sigma_{ct} \phi_t} = \frac{C_2}{\sigma_{cr} \phi_r}$$

determinando assim,

$$\sigma_{cr} \phi_r = \frac{C_2}{C_1} \phi_t \sigma_{ct}$$

e sendo  $V$  o volume das amostras consideradas, implica :

$$\frac{\sigma_{cr} \phi_r}{V} = \frac{C_2}{C_1} \frac{\phi_t \sigma_{ct}}{V}$$

Obtêm-se desta maneira a taxa de captura dos nêutrons rápidos na amostra e o fluxo de nêutrons t̄ermicos ẽ utilizado como fonte calibradora do detector .

#### - 4º m̄etodo

Um outro m̄etodo seria aquele utilizado para determinar absolutamente a taxa de captura do U-238 /28/. O princ̄ipio ẽ baseado no fa-  
to de que os is̄otopos Am-243 e U-239 decaem para o is̄otopo Np-239, e que a taxa de desintegraç̄ão  $\alpha$  do Am-243 ẽ determinada absolutamente. Assim a eficiẽcia do detector ẽ ajustada em relaç̄ão ẽ fonte Am-243.

Se este m̄etodo fosse utilizado para o caso do Th-232, a fonte a ser considerada seria o is̄otopo Np-237, que decai para Pa-233 por emiss̄o  $\alpha$  . Enquanto que o Th-233, por outro lado, tambẽm decai para Pa-233 por emiss̄o  $\beta^-$  conforme o esquema da Figura 4.7.

A atividade absoluta do Pa-233 pode ser medida usando-se uma fonte de Np-237 , da seguinte maneira: obtẽm-se a atividade absoluta da fonte Np-237 pela t̄cnica de contagem alfa em baixa eficiẽcia geom̄etrica e, calcula-se ent̄o a atividade absoluta do Pa-233 presente na fonte, pois este is̄otopo encontra-se em equil̄brio secular com Np-233.



Medindo-se os raios gama emitidos no decaimento do Pa-233 formado, a contagem  $C_\gamma$  obtida é relacionada com a atividade do Pa-233 por:

$$C_\gamma = E A(233)$$

onde

$E$  = fator de calibração;

$A(233)$  = atividade absoluta do Pa-233.

Conhecida a atividade  $A(233)$  pode-se determinar o fator de calibração  $E$ .

Tomando-se agora amostras de tório e irradiando-as no fluxo de nêutrons rápidos obtêm-se o espectro de decaimento do Pa-233. A contagem  $C_\gamma$  dos  $\gamma$  emitidos fornecerá a atividade do Pa-233. Assim,

$$C_\gamma = E A(233)$$

Como se utilizou o mesmo detetor, manteve-se a mesma geometria e contou-se o gama de mesma energia que no caso do Np-237, o fator de calibração  $E$  é a mesma em ambos caso, deste modo:

$$A(233) = C_\gamma / E$$

Determinada a atividade do Pa-233, obtêm-se a taxa de captura do Th-232.

O isótopo Np-237 foi utilizado assim como uma fonte de referência para a calibração do detetor.

O problema principal na determinação das taxas de captura do tório, na região de altas energias, é encontrar uma técnica adequada que minimize a influência dos raios  $\gamma$  provenientes dos produtos de fissão.

## 5. RESULTADOS

Neste capítulo analisam-se os resultados dos cálculos teóricos e das medidas experimentais.

### 5.1 - Resultado dos cálculos

Os resultados obtidos pela aplicação do método de cálculo descrito no capítulo 3 são apresentados e analisados. Focaliza-se a distribuição espacial das taxas de fissão e de captura do tório e a variação do espectro de nêutrons em função da posição no sistema.

#### 5.1.1 - Taxas de reação

Os cálculos das taxas de captura e de fissão foram feitos considerando amostras de tório colocadas em diferentes pontos do sistema ao longo do eixo axial.

Numa comparação entre as curvas que apresenta a distribuição espacial das taxas de captura e de fissão (Fig.5.1), nota-se que as fissões superam as capturas, evidenciando assim o predomínio de nêutrons de alta energia em todo o sistema.

A absorção de nêutrons rápidos pelo oxigênio é significativa, uma vez que este elemento apresenta uma alta secção de choque de captura até energia da ordem de 3,7 MeV. Seu valor é comparável a do tório e isto explica a grande diferença entre as curvas da

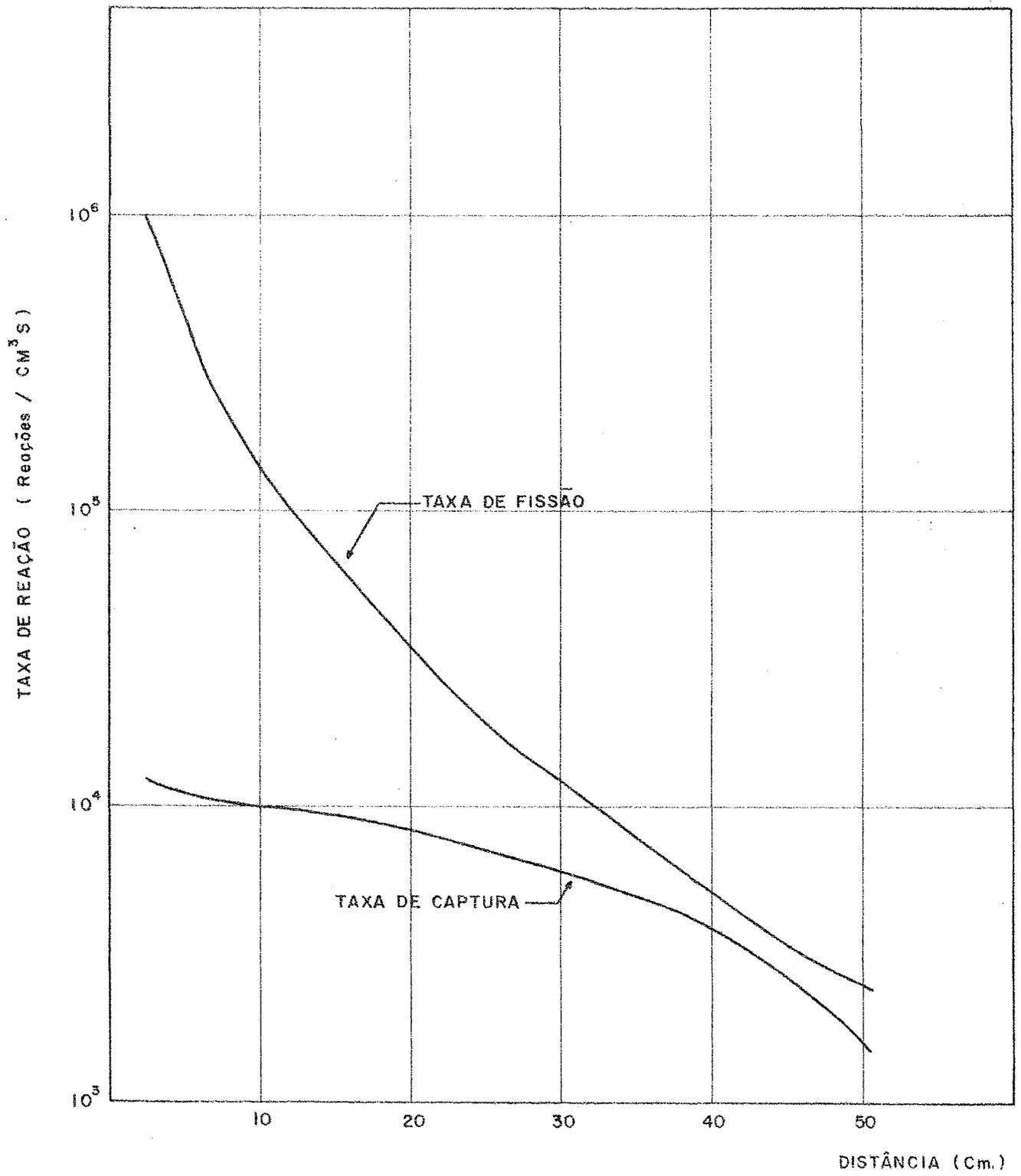


Fig. 5.1. — Distribuição espacial das taxas de fissão e de captura do Th-232 no sistema sub-crítico.

da taxa de captura do tório e do óxido de tório (Fig.5.2)

### 5.1.2 - Espectros

A Figura 5.3 mostra a variação do espectro de nêutrons em função da posição no sistema e na Figura 5.4 destacam-se os espectros para algumas posições. Tomou-se o espectro de nêutrons na interface caroço-envoltório ( de tório metálico) do reator protótipo GCFR de 300 MWe e este espectro foi comparado com os espectros do sistema subcrítico estudado. Dentro os últimos, o que mais se assemelha com o primeiro é o referente ao ponto situado a 50 cm da fonte ( Fig. 5.5). Conclui-se que nas demais posições os espectros são mais duros ( o sistema em questão , deste modo, representaria perfeitamente um sistema rápido). Para simular o envoltório do GCFR é necessário colocar entre a fonte e o sistema , um moderador de nêutrons (água, carbono, parafina, etc.) de modo que o espectro inicial do conjunto subcrítico seja igual ao do interface caroço-envoltório do reator. Por outro lado , pode-se colocar um conversor, como  $UO_2$  natural, onde o espectro devido aos nêutrons produzidos na fissão rápida do urânio se apresenta mais mole .

Um outro aspecto foi analisado. O material  $ThO_2$  é extremamente higroscópico, portanto para eliminar a umidade submete-se o material a um aquecimento à temperatura de  $110^{\circ}C$ . Mesmo assim, devido à sua alta higroscopicidade o material poderá ainda, por ocasião da experiência, apresentar percentuais de umidade significativos. Para verificar esse efeito foram estudados diferentes casos

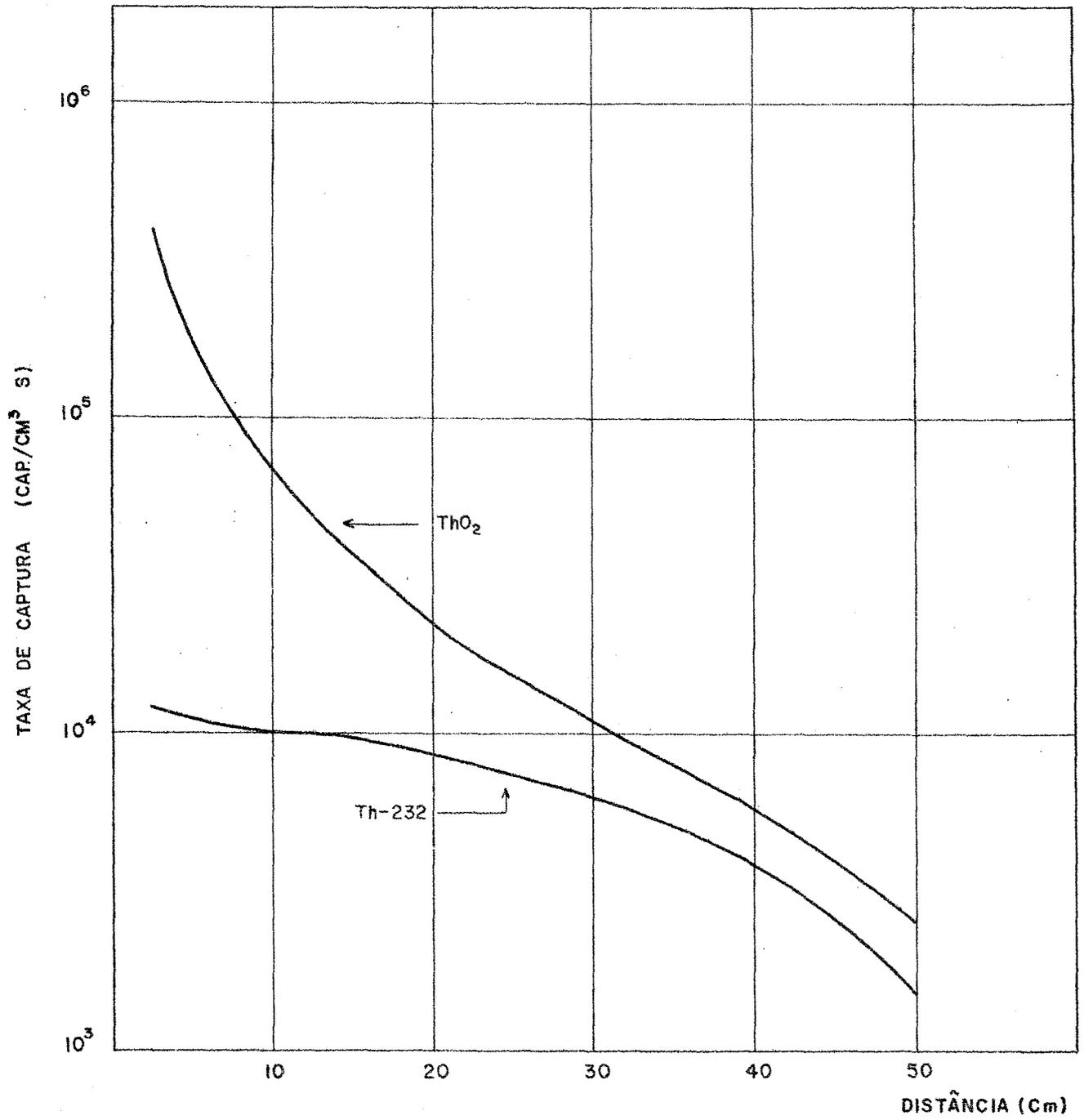


Fig. 5.2.—Taxas de capturas do Th-232 e do  $\text{ThO}_2$

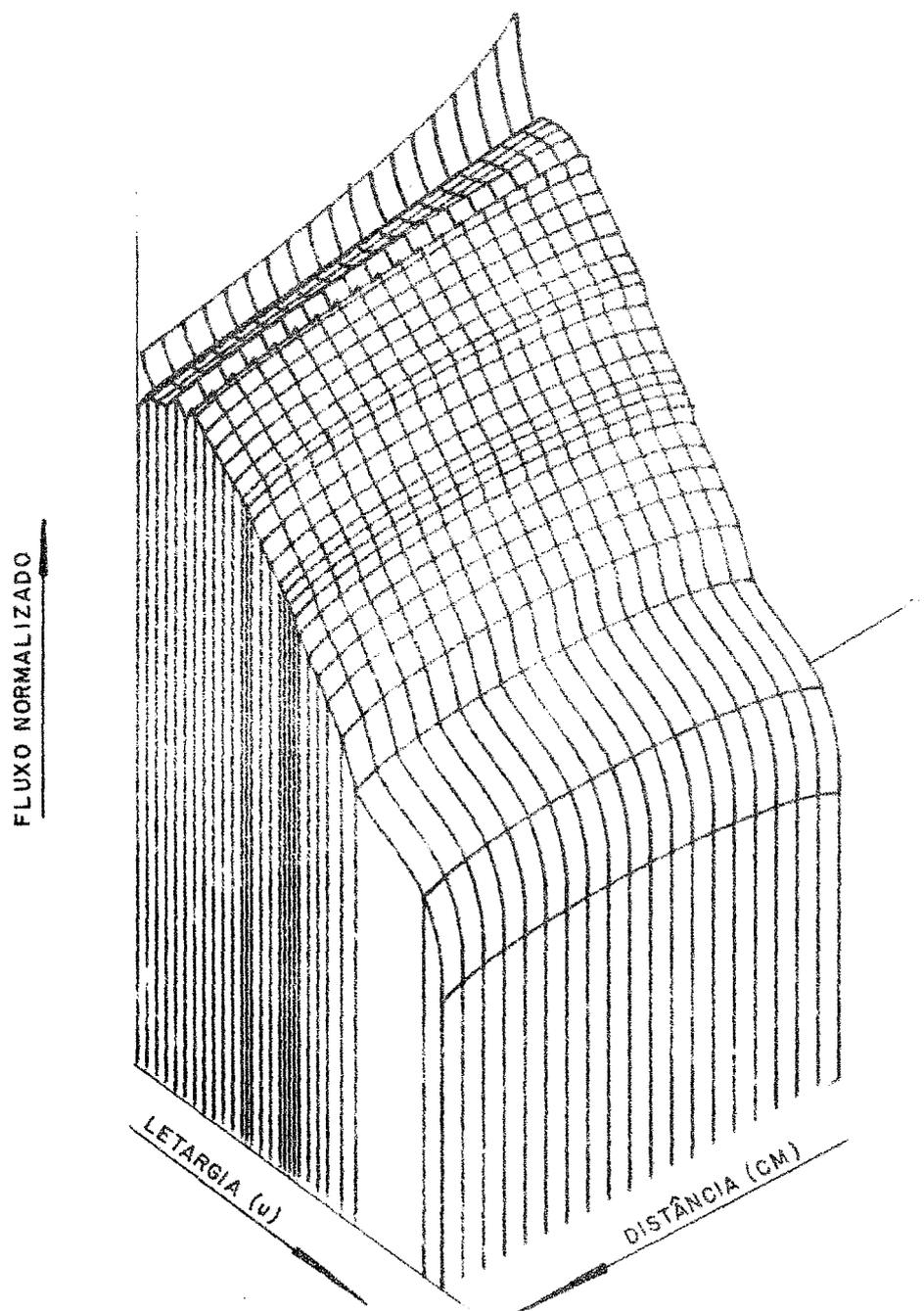


FIG. 5.3 ESPECTRO DE NEUTRONS NO SISTEMA SUBCRÍTICO

FLUXO NORMALIZADO  $\phi(u)$   
(Unidade Arbitraria)

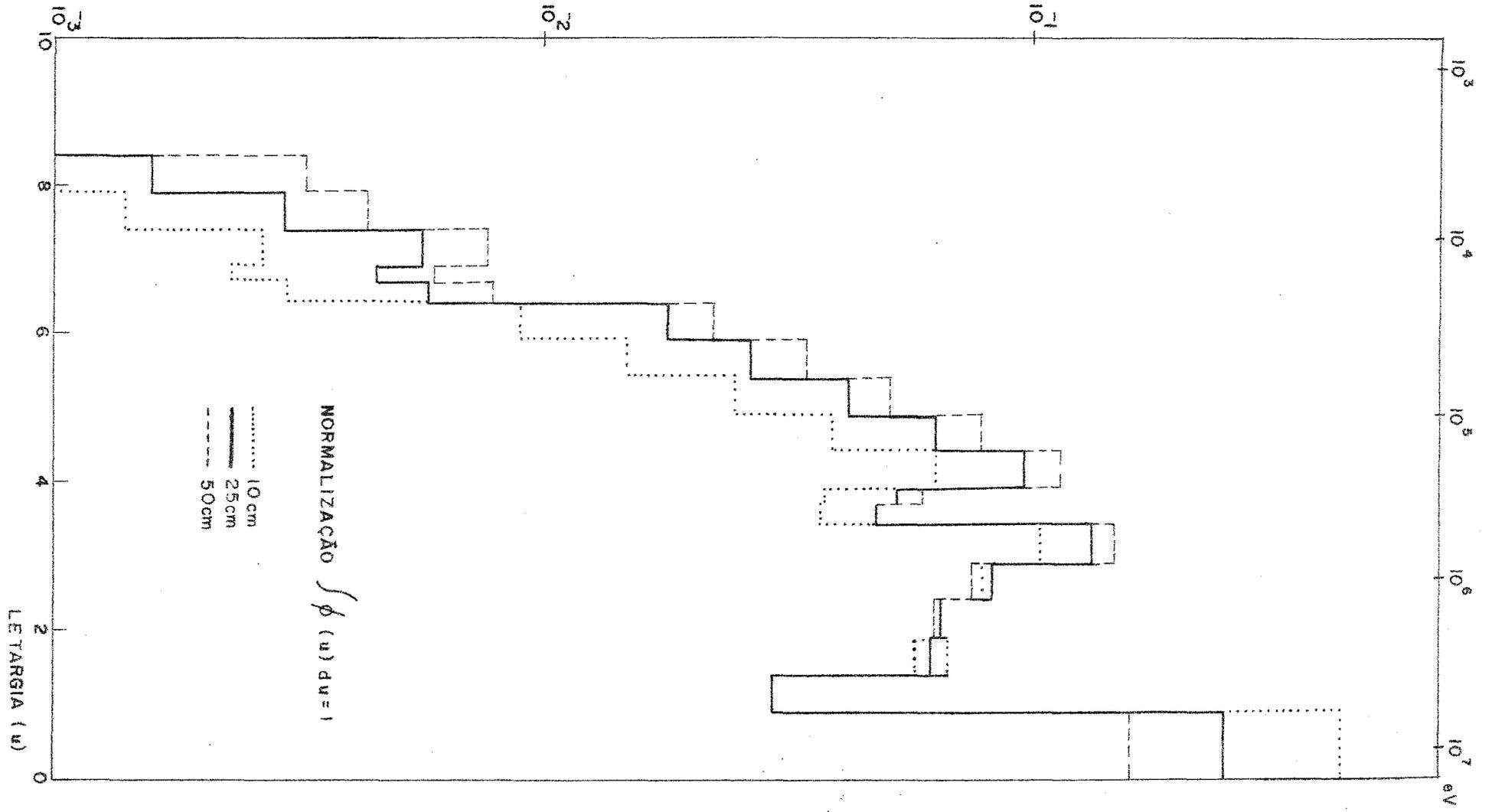


Fig. 5.4 Espectros de neutrons no sistema subcritico a 10, 25 e 50 cm da fonte

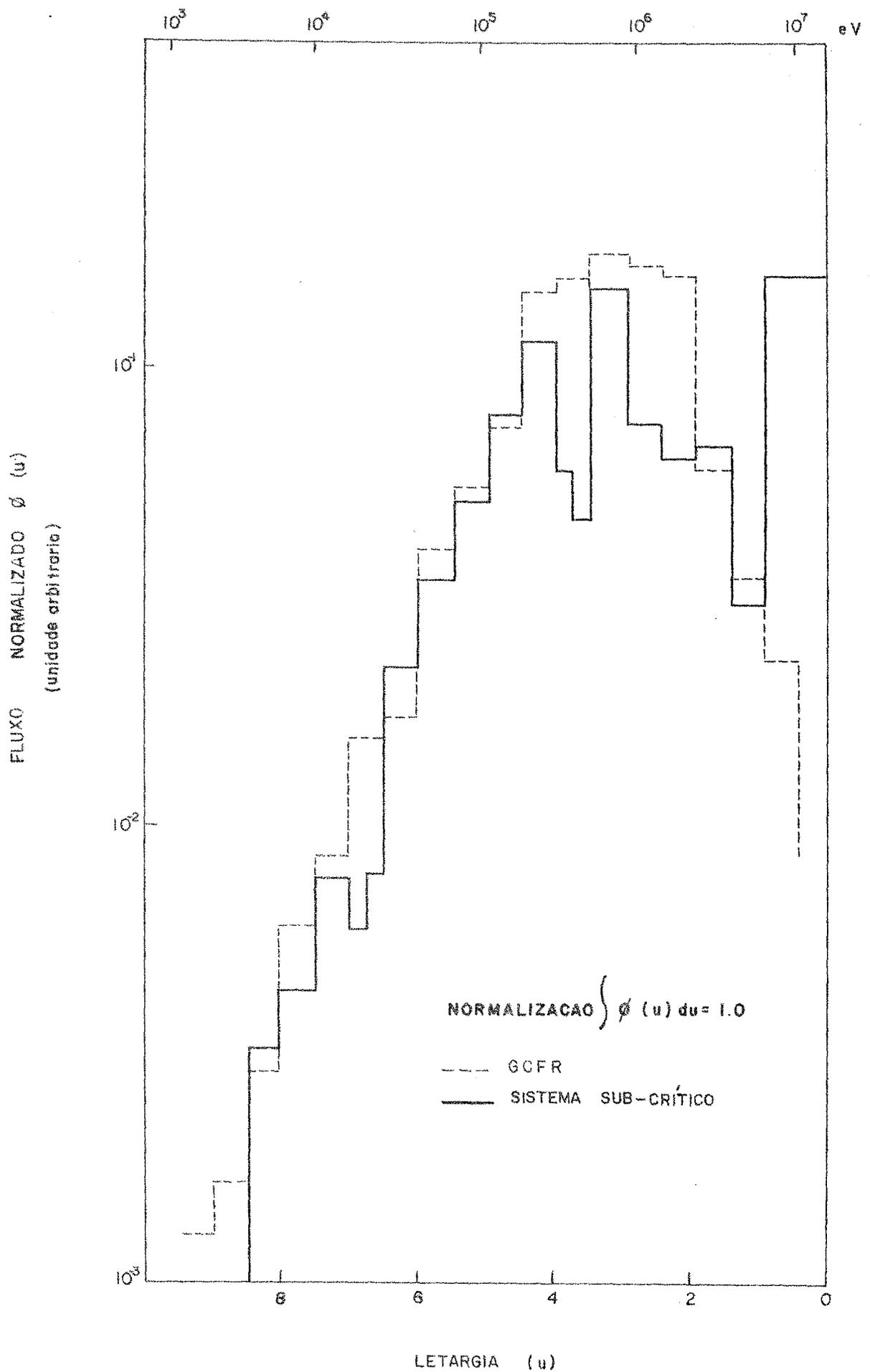


Fig. 5.5 — Comparação dos Espectros de Neutrons na Interface Carço-Envoltura do GCFR com o Conjunto Subcrítico a 50cm da Fonte.

considerando 10%, 5% e 1% de umidade. Os espectros assim obtidos são apresentados na Figura 5.6 e se referem à posição 25 cm da fonte . Pelo fato de o hidrogênio ser um bom moderador, o espectro amolece à medida que a umidade aumenta, portanto precauções devem ser tomadas no sentido de que a amostra em uso e o sistema não apresentem "excessiva" umidade quando da realização de uma experiência.

### 5.1.3 - Estimativa do número de contagens

Uma vez conhecido o modo de decaimento do Th-233, verifica-se se o fluxo da fonte de nêutrons utilizado é suficientemente alto para que se obtenham as medidas experimentais desejadas. Faz-se portanto uma estimativa do número de contagens a partir das taxas de captura calculadas. Este cálculo foi feito considerando:

- tempo de irradiação: 1 hora
- tempo de contagem : 1 hora
- volume da amostra irradiada:  $0,23 \text{ cm}^3$
- distância amostra-detetor: 0,1 cm
- energia do fotopico medido: 459 KeV
- percentagem do raio gama de 459 KeV que provem do decaimento do Th-233 : 1 %
- detetor utilizado : Ge(Li)
- eficiência do reator: 19%

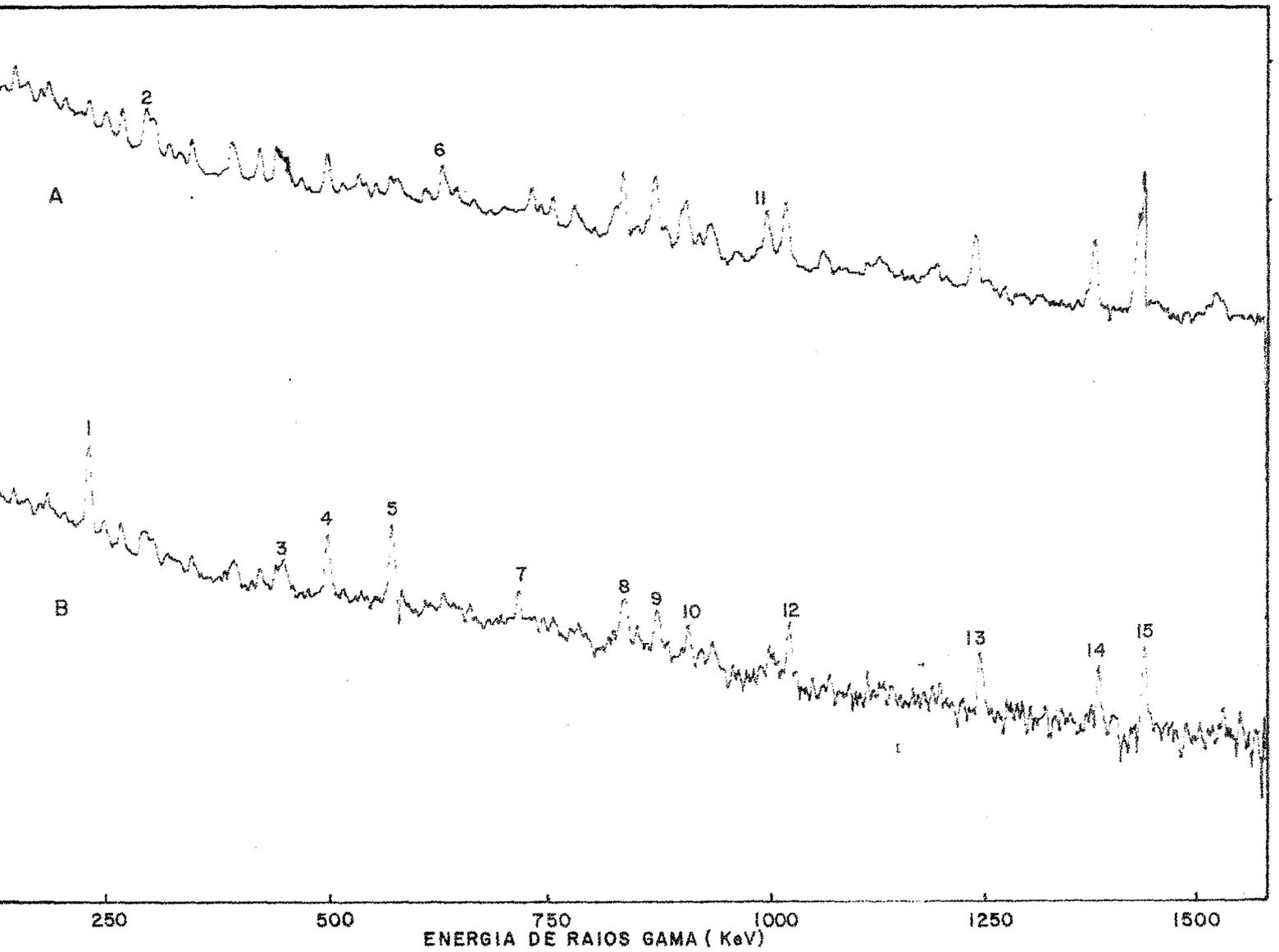


FIG. 5.7 CURVA A - ESPECTRO DE RAIOS GAMA DOS PRODUTOS DE FISSÃO RAPIDO DO Th.232  
 CURVA B - ESPECTRO DE RAIOS GAMA DO Th-233

Pela Tabela 3.3 , a 50 cm , tem-se  $1,49 \times 10^3$  cap./cm<sup>3</sup> s e o cálculo do número de contagens para a amostra nesta posição foi  $2,354 \times 10^3$ , que é um valor perfeitamente mensurável. Nos valores calculados e nas contagens muitos fatores de erro devem ser considerados para estimar a incerteza nestas medidas.

## 5.2 - Erros

### 5.2.1 - Erros nos cálculos

As incertezas dos resultados nos cálculos de reatores provêm em geral do método de cálculo aplicado e das constantes nucleares utilizadas. Dado o desenvolvimento atual dos métodos de cálculo e do avanço no sistema de computação, as incertezas dos resultados provêm quase que exclusivamente das constantes nucleares. Principalmente na faixa de energia do espectro do reator rápido , de 100 eV a 10 MeV , os valores das secções de choque do Th-232 não são bem conhecidas e determinadas.

Davey /7/ mostra como os valores da secção de choque de captura do U-238 variam de autor para autor. Estas diferenças provêm dos diferentes métodos experimentais empregados e do padrão tomado, já que as medidas absolutas são muito difíceis de serem realizadas, e em geral são determinadas em relação a um padrão . Por outro lado, uma pesquisa em 1969 /16/ revelou que a incerteza na secção de choque de captura do Th-232 e U-238, no in

tervalo de energia de 100 eV a 100 KeV, era aproximadamente  $\pm 25\%$ . As secções de choque do U-238 foram recentemente atualizadas, o mesmo não tendo ainda acontecido com as secções de choque do Th-232. As avaliações mais recentes evidenciam diferenças de 2% a 10% na determinação das secções de choque de captura do U-238 na faixa de energia compreendida entre 1 KeV a 100 KeV ( Tabela 5.1).

Estas incertezas nas constantes nucleares, por sua vez, induzem outras incertezas nos cálculos dos parâmetros de reatores ( Tabela 5.2). Assim, para os cálculos de projetos de reatores, o problema principal é obter dados mais precisos das secções de choque. Com esta finalidade foram criadas bibliotecas de secções de choque, onde os dados mais recentes são coletados e comparados.

À medida que os métodos experimentais evoluem e a aparelhagem torna-se mais sofisticada, espera-se obter melhores resultados.

### 5.2.2 - Erros nas medidas experimentais

Várias fontes de erros devem ser consideradas nas medidas obtidas experimentalmente. Assim tem-se:

- variação do fluxo

A atividade induzida nas amostras deve ser corrigida para a variação do fluxo de nêutrons durante a irradiação ; a correção deve ser feita usando um monitor de fluxo.

- Variação no sistema de contagem

A variação no ganho do sistema ocorre principalmente devido à variação de temperatura e à variação de tensão de alimentação.

As variações devidas à tensão de alimentação são minimizadas pelo uso de estabilizador de tensão para todo o sistema; as variações de temperatura do ambiente são controladas pelos aparelhos condicionadores de ar. Mas mesmo com todos esses cuidados, verificam-se variações ao longo do tempo e é difícil estimar o erro produzido. Assim, a irradiação e a contagem devem ser repetidas em intervalos de tempo convenientes, de modo a corrigir os efeitos de variações eventuais ocorridos no ganho.

- Flutuação estatística das contagens

A emissão da radiação e sua detecção têm um caráter estatístico, obedecendo a distribuição binomial.

O desvio padrão médio pode ser calculado pela expressão:

$$\sigma = \sqrt{\bar{n}}$$

onde  $\bar{n}$  é o valor médio das contagens.

Tabela 5.1 - Diferentes valores das secções de choque de captura do U-238 para nêutrons de 30 KeV de energia /9 /

$\sigma(n, \gamma)$	Autores	
556 $\pm$ 56	Macklin et al	(1957)
376 $\pm$ 77	Hanna & Rose	(1959)
461 $\pm$ 46	Bilpuch et al	(1960)
473 $\pm$ 47	Gibbons et al	(1961)
470 $\pm$ 38	de Saussure et al	(1962)
507 $\pm$ 51	Macklin et al	(1963)
394 $\pm$ 85	Berguist	(1963)
422 $\pm$ 34	Belonova	(1966)
540 $\pm$ 60	Miessner and Aray	(1966)
479 $\pm$ 14	Menroleve and Poenitz	(1968)
467 $\pm$ 18	Poenitz	(1968)
418 $\pm$ 29	Moxon	(1969)
463 $\pm$ 23	Friesenhahn et al	(1970)
528 $\pm$ 30	de Saussure et al	(1973)

Tabela 5.2 - Incertezas nos principais parâmetros do reator rápido de potência devido a incerteza nas constantes nucleares /15/

Parâmetros	Incerteza ( % )
Massa físsil no reator	8
Taxa de regeneração	0,1
Coefficiente Doppler	20
Reatividade das barras de controle	15
Fator de Forma	5

### 5.3 - Resultados experimentais

Foram obtidos espectros de raios gama com o detector Ge(Li) a partir de amostras de  $\text{ThO}_2$  irradiadas por nêutrons. Dois arranjos foram montados, como foi descrito no capítulo 4, para se obter dois espectros; um devido aos produtos de fissão do tório-232, produzidos pelo bombardeamento por nêutrons de 14 MeV, e outro devido ao decaimento do Th-233. Em ambos os casos as amostras foram irradiadas durante 30 minutos.

Comparando estes dois espectros (Fig. 5.7) verifica-se o efeito dos produtos de fissão no espectro de Th-233. Além desta interferência deve-se levar em conta, a influência da atividade dos elementos formados no processo de decaimento natural do Th-232 ( Fig. 4.4 e 5.8).

O espectro de raios gama padrão do Th-233 (Fig. 5.9) é obtido irradiando a amostra por um alto fluxo de nêutrons térmicos. Comparando os três espectros conclui-se que do espectro de captura pode-se distinguir apenas o fotopico correspondente a 459 KeV de energia, sendo os demais mascarados pelos  $\gamma$  emitidos pelos produtos de fissão e pelos descendentes do tório.

Os raios gama mais importantes dos espectros obtidos e os respectivos isótopos emissores estão listados na Tabela 5.3.

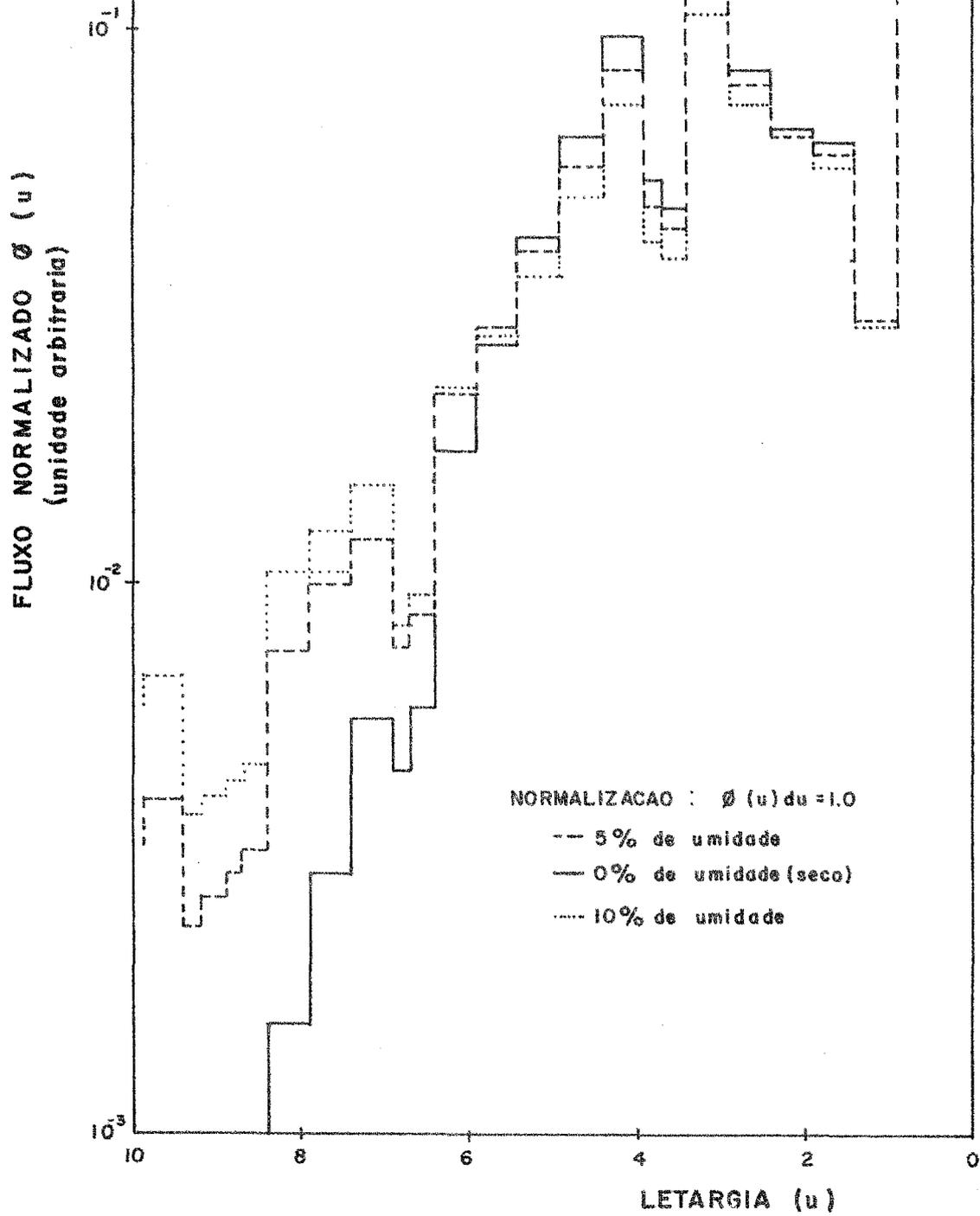


Fig. 5.6 - VARIAÇÃO DO ESPECTRO DE NEUTRONS, A 25 cm DA FONTE, COM A UMIDADE

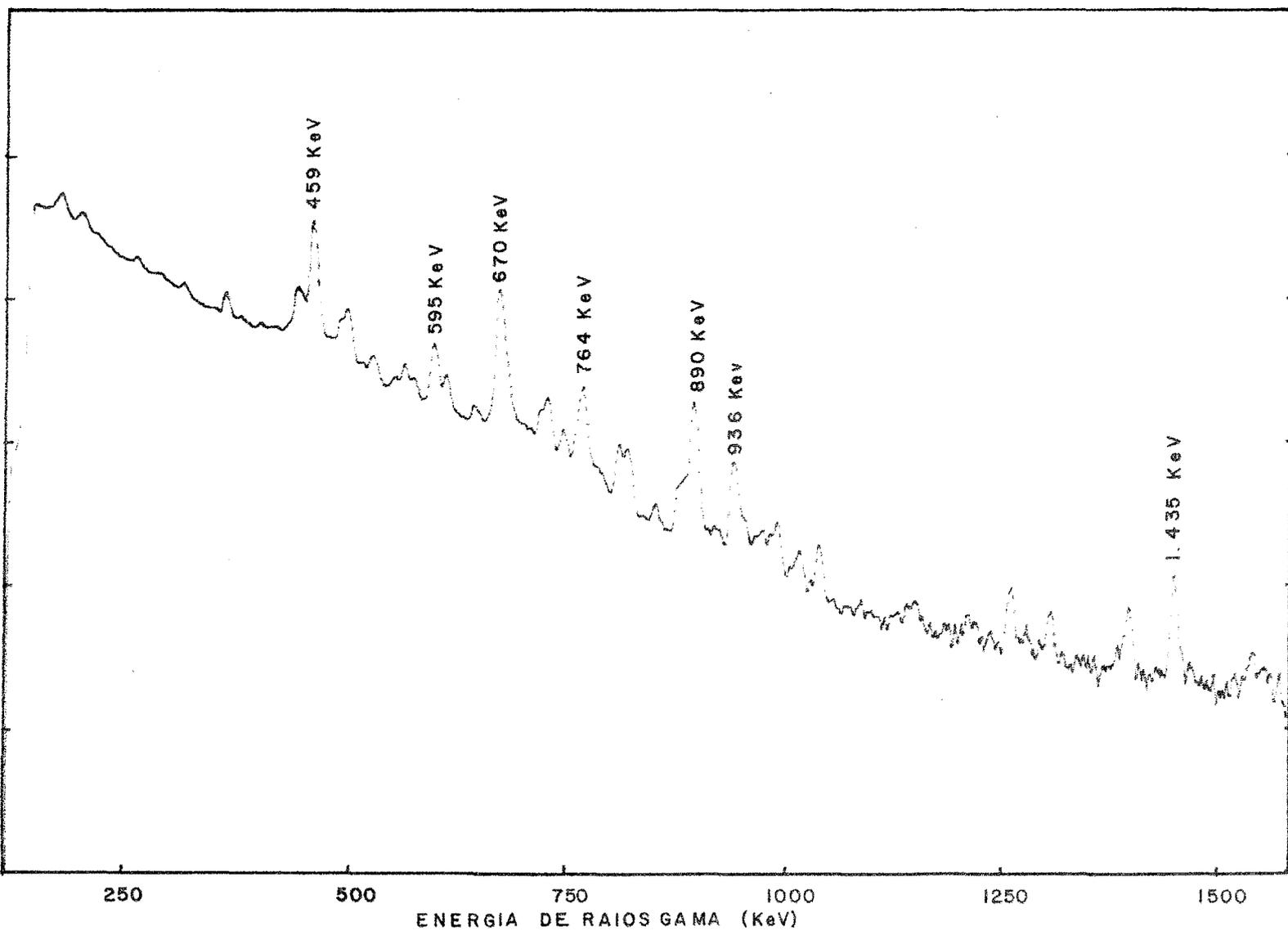


FIG. 5.9 ESPECTRO DE RAIOS GAMA DO Th-233 OBTIDO PELA IRRADIAÇÃO DA AMOSTRA COM NEUTRONS TÉRMICOS

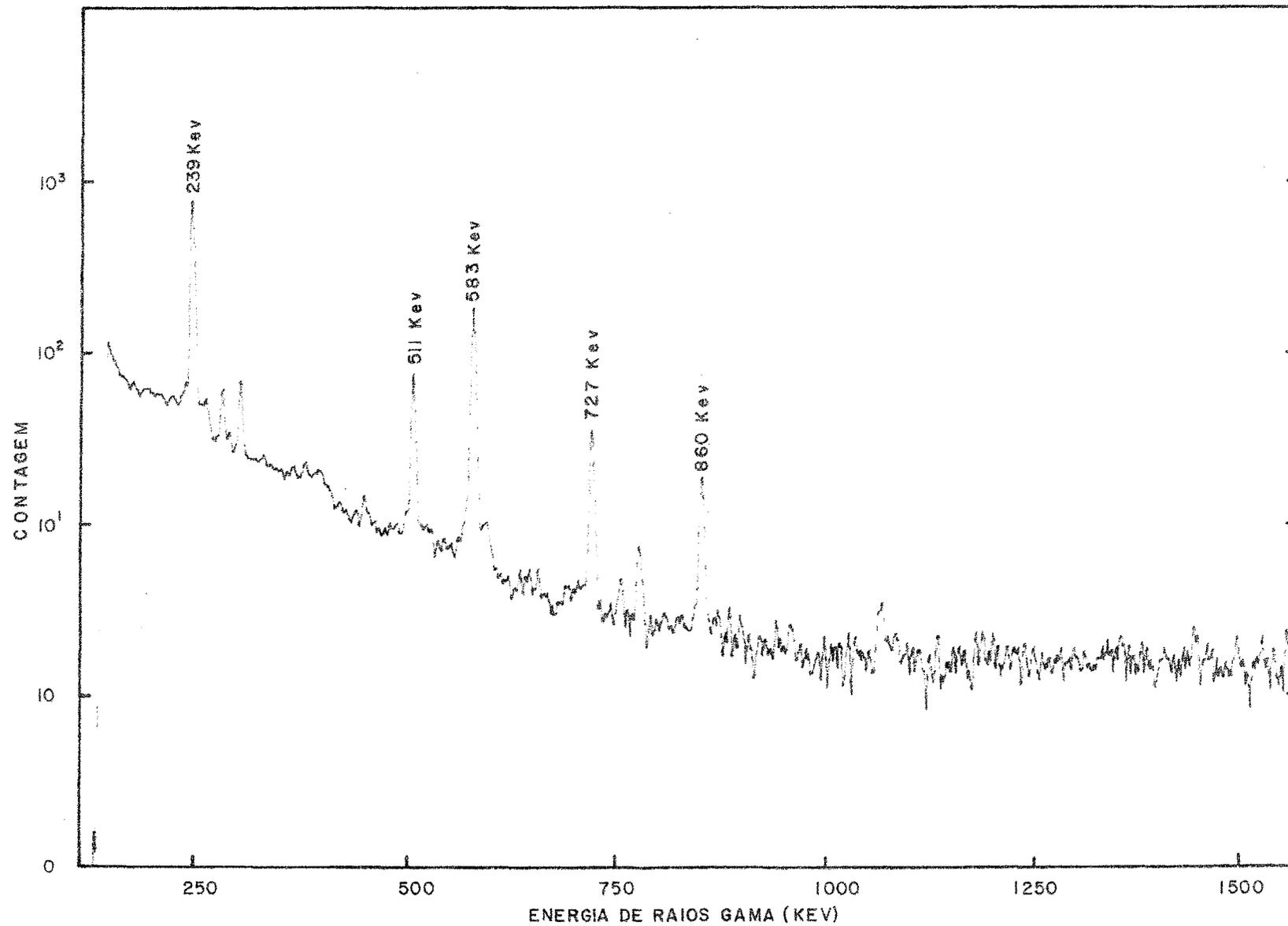


FIG. 5.8 ESPECTRO DE RAIOS GAMA DO Th-232 NÃO IRRADIADO

Tabela 5.3 - Raios gama mais importantes emitidos pela amostra de  $\text{ThO}_2$  irradiada

Pico	Energia (KeV)	Isótopo emissor
1	239	Pb-212
2	357	P. f.
3	459	Th-233
4	511	Tl-208
5	583	Tl-208
6	640	P. f.
7	727	Bi-212
8	845	P. f.
9	881	P. f.
10	894	P. f.
11	1010	P. f.
12	1039	P. f.
13	1248	P. f.
14	1382	P. f.
15	1435	P. f.

## 6. CONCLUSÕES E COMENTÁRIOS

Os resultados obtidos neste estudo preliminar permitem concluir que é viável a construção de um conjunto subcrítico rápido com os recursos do IEA. O acelerador Van de Graaff mostrou-se uma fonte potencial de nêutrons e a sua intensidade de  $10^{10}$  n/s é suficiente para a realização das experiências.

Por outro lado, o detetor Ge(Li) permite identificar o fotopico principal de 459 KeV de energia do espectro de decaimento do Th-233, apesar das interferências das linhas espectrais provenientes dos  $\gamma$  dos produtos de fissão rápida, e dos descendentes do tório. Assim, para obter melhores resultados surge a necessidade de se eliminar o mais possível os produtos de decaimento natural do tório presentes na amostra, antes de submetê-la ao bombardeamento, especialmente se o composto de tório já foi preparado há muito tempo. Quanto aos produtos de fissão deve-se escolher, para a medida da taxa de captura, uma técnica que minimize a sua influência.

O espectro de raios gama pode ser otimizado aumentando-se a resolução do detetor. Isto é conseguido aperfeiçoando-se o arranjo experimental, como por exemplo, colocando-se o detetor e o analisador multicanal mais próximos entre si.

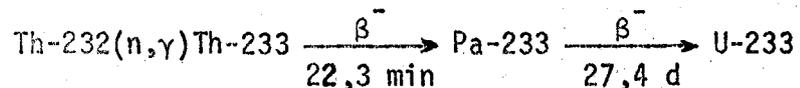
Conclui-se que a construção do sistema subcrítico proposto permitirá a realização de experiências onde dados sobre as

propriedades do tório na região de nêutrons de alta energia serão obtidos.

Este conjunto representa de modo conveniente um sistema rápido. Portanto, para que ele possa simular a região do envoltório do reator GCFR, deve-se amolecer o espectro da fonte de nêutrons, de maneira a se assemelhar ao espectro da interface caroço-envoltório do reator. Isto é obtido colocando-se entre a fonte e o conjunto uma região de moderador ou uma placa conversora de urânio natural.

ANEXO A - PROPRIEDADES NEUTRÔNICAS DO U-233

U-233, pelas suas características físicas, é o melhor combustível para os reatores térmicos comparado com U-235 e Pu-239, mas infelizmente não se encontra naturalmente na crosta terrestre. A sua produção provém do Th-232, pela captura de nêutrons, da seguinte maneira:



As características relevantes do U-233 nos reatores térmicos são:

- alto valor do fator de regeneração ( $\eta$ ).

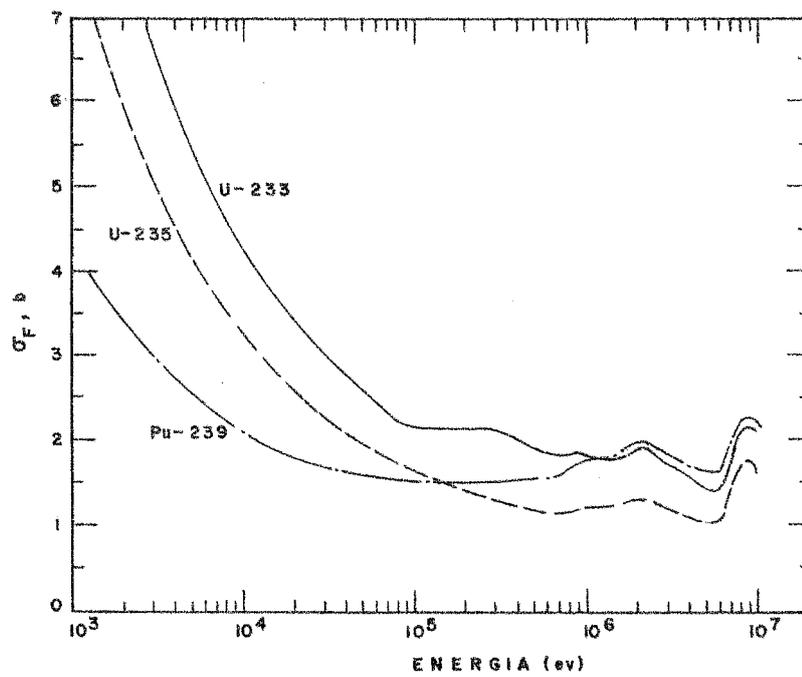
A absorção térmica em U-233 produz mais nêutrons por nêutron absorvido, do que a correspondente absorção em Pu-239 ou U-235, resultando em uma maior razão de conversão. A Tabela A.1 mostra os valores do  $\eta$  para vários isótopos físséis.

- Secção de choque de fissão

U-233 apresenta uma grande secção de choque na região de nêutrons térmicos, implicando maior taxa de fissão, e consequentemente geração de mais calor.

Tabela A.1 - Valores de $\eta$ para isótopos físséis /32/			
<u>Espectros de nêutrons</u>	<u>U-233</u>	<u>U-236</u>	<u>Pu-239</u>
Térmicos	2,28	2,07	2,07
Rápidos	2,64	2,45	3,03

Na Figura A.1 são dadas as secções de choque de fissão dos isótopos físséis mais importantes.



**Fig. A1 -** Secções de choque de fissão dos isótopos físeis

ANEXO B - TEOR DAS IMPUREZAS CONTIDAS NO ThCO<sub>3</sub> /5/

<u>Elementos</u>	<u>ppm</u>
Mn	1,6
B	4,5
Mg	4,5
Cr	5,0
Sn	0,1
Al	5,0
Ni	5,0
Mo	10,0
Y	50,0
Cu	0,1
Cd	0,3
Zn	50,0
Gd	13,0
Eu	1,1
La	93,0
Nd	273,0
Pr	97,0
Ce	558,0
Sm	69,0
Yb	1,3
Tb	n.d
Dy	15,0
Ho	10,0

ANEXO C - ESTRUTURA DOS GRUPOS DE ENERGIA

<u>Grupos</u>	<u>Limite superior de energia (eV)</u>
1	$1,50 \times 10^7$
2	$6,06 \times 10^6$
3	$3,68 \times 10^6$
4	$2,23 \times 10^6$
5	$1,35 \times 10^6$
6	$8,21 \times 10^5$
7	$4,98 \times 10^5$
8	$3,69 \times 10^5$
9	$3,02 \times 10^5$
10	$1,83 \times 10^5$
11	$1,11 \times 10^5$
12	$6,74 \times 10^4$
13	$4,09 \times 10^4$
14	$2,48 \times 10^4$
15	$1,93 \times 10^4$
16	$1,50 \times 10^4$
17	$9,12 \times 10^3$
18	$5,53 \times 10^3$
19	$3,35 \times 10^3$
20	$2,61 \times 10^3$
21	$2,03 \times 10^3$
22	$1,58 \times 10^3$
23	$1,23 \times 10^3$
24	$7,48 \times 10^2$
25	$4,54 \times 10^2$
26	$2,75 \times 10^2$
27	$1,30 \times 10^2$
28	$6,14 \times 10^1$
29	$1,86 \times 10^1$
30	$6,55 \times 10^{-1}$

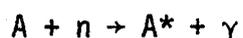
## ANEXO D - MÉTODO DE ANÁLISE POR ATIVAÇÃO

O método de análise por ativação é uma técnica nuclear onde a amostra é ativada por bombardeamento de nêutrons. Os raios gama provenientes das amostras ativadas são medidos para obter o espectro gama, e este espectro é então utilizado para identificar os elementos na amostra bem como medir a concentração destes elementos.

Este método apresenta várias vantagens, tais como:

- é aplicável para a maioria das amostras, líquidas ou sólidas;
- amostras de vários tamanhos (mg a kg) são possíveis;
- alta sensibilidade para a maioria dos elementos;
- é uma análise não destrutiva.

A análise envolve reação na qual nêutrons são capturados pelos isótopos da amostra e o subsequente decaimento do mesmo, assim tem-se:



onde:

A = núclídeos da amostra

n = nêutrons capturados por A para produzir A\*

A\* = núcleo instável, produto da captura de nêutrons

$\gamma$  = radiação  $\gamma$  emitida.

A maioria dos produtos de ativação decaem por emissão de partículas beta, acompanhados por emissão gama.

A radiação gama exige energias discretas, características de cada produto de ativação. Assim a espectrometria de raios gama é utilizada para identificar diferentes elementos.

Dois tipos de detetores são em geral usados na espectrometria de raios gama para a análise por ativação ; detetor de cintilação como o Iodeto de sódio ativado com Tálcio , NaI(Tl), e o detetor de estado sólido como Germanio dopado de Lítio, Ge(Li). As duas características espectrométricas de mais interesse são a eficiência da contagem e a resolução da energia. Eficiência da contagem é a fração de raios gama de interesse que são contados. Resolução é a largura do intervalo de energia sobre o qual a contagem é feita , portanto quanto melhor a resolução, maior capacidade indica de distinguir as energias. Alta eficiência e alta resolução são desejados , mas na prática é impossível. NaI(Tl) apresenta eficiência relativamente alta e baixa resolução enquanto que Ge(Li) tem baixa eficiência e alta resolução. Portanto, dependendo da finalidade do estudo utiliza-se NaI(Tl) ou Ge(Li).

A sensibilidade da análise por ativação é proporcional ao fluxo de nêutrons usado para irradiação. Três fontes são em geral usadas: o reator, o acelerador de partículas ou isótopo radiativo.

D - 1 - Equação da ativação

A equação básica que rege o processo de ativação da amostra é:

$$\frac{dN^*}{dt} = N \sigma \phi(t) - \lambda N^* \quad ( 1 )$$

onde

$N^*$  = número de átomos ativados da amostra

$N$  = número de átomos alvo na amostra

$t$  = tempo (seg.)

$\sigma$  = secção de choque microscópica (barn =  $10^{-24} \text{ cm}^2$ )

$\phi(t)$  = fluxo de nêutrons (nêutron.  $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )

$T_{1/2}$  = meia vida do isótopo.

A solução da equação (1), durante a ativação, para o fluxo independente do tempo é:

$$A = N \sigma \phi ( 1 - e^{-\lambda t_i} ) \quad ( 2 )$$

onde

$A = \lambda N^*$  = atividade da amostra (desintegração por segundo)

$t_i$  = tempo de irradiação.

A atividade da amostra, assim, cresce assintoticamente para o valor  $N\sigma\phi$ , que é chamada de atividade de saturação.

## D.2 - Aplicação

O método de ativação é um dos meios mais simples e mais usados modos de medir secção de choque de captura. Entre as suas vantagens está a possibilidade de medir secção de choque de isótopos individuais, mas a aplicabilidade do método é, todavia, limitada pelos isótopos a serem ativados.

A experiência consiste em expor a amostra em um fluxo de nêutrons  $\phi$  e contar os eventos  $R$  correspondentes à captura ocorrida. A equação usada para determinar a secção de choque é:

$$\sigma = R / N\phi$$

onde

$\sigma$  = secção de choque microscópica de captura

$\phi$  = fluxo de nêutrons

$R$  = taxa de captura

$N$  = número de átomos da amostra

A medida é considerada absoluta se a taxa de captura e o fluxo de nêutrons forem determinados absolutamente; relativa, se for determinada relativamente a outra secção de choque padrão.

A Figura D.1 mostra o esquema do método de análise - por ativação.

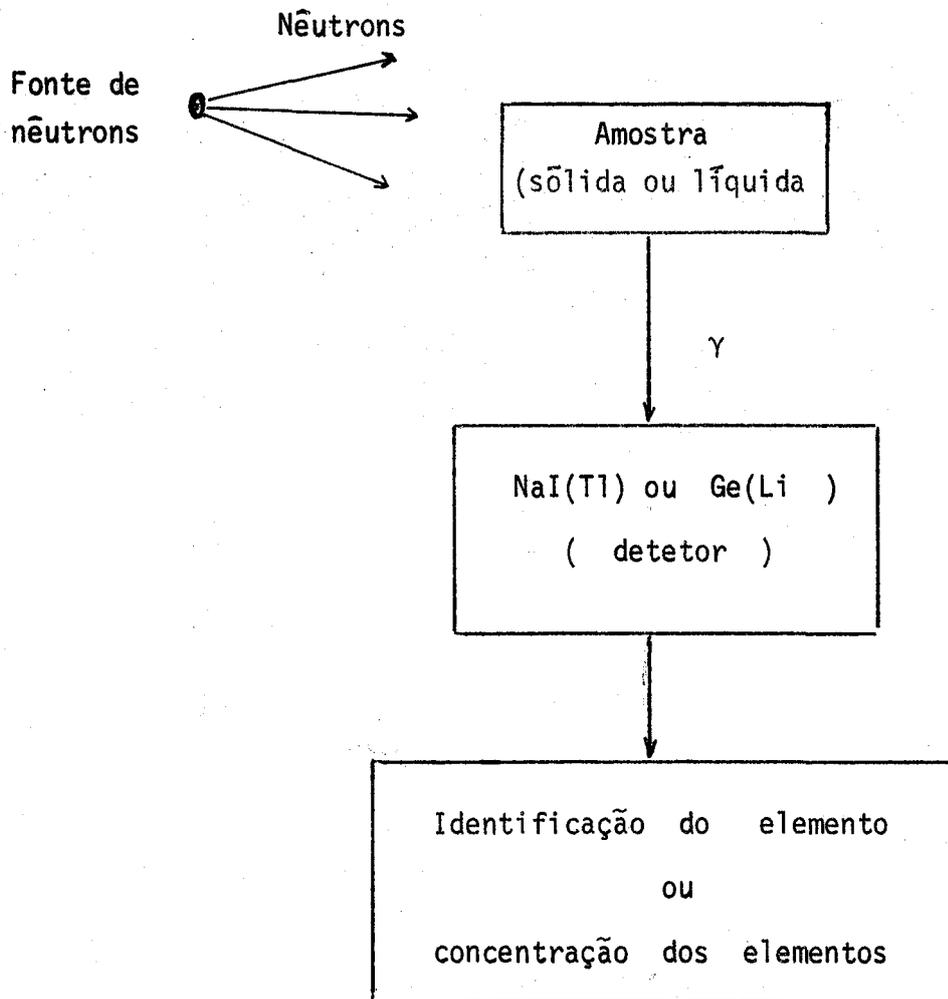
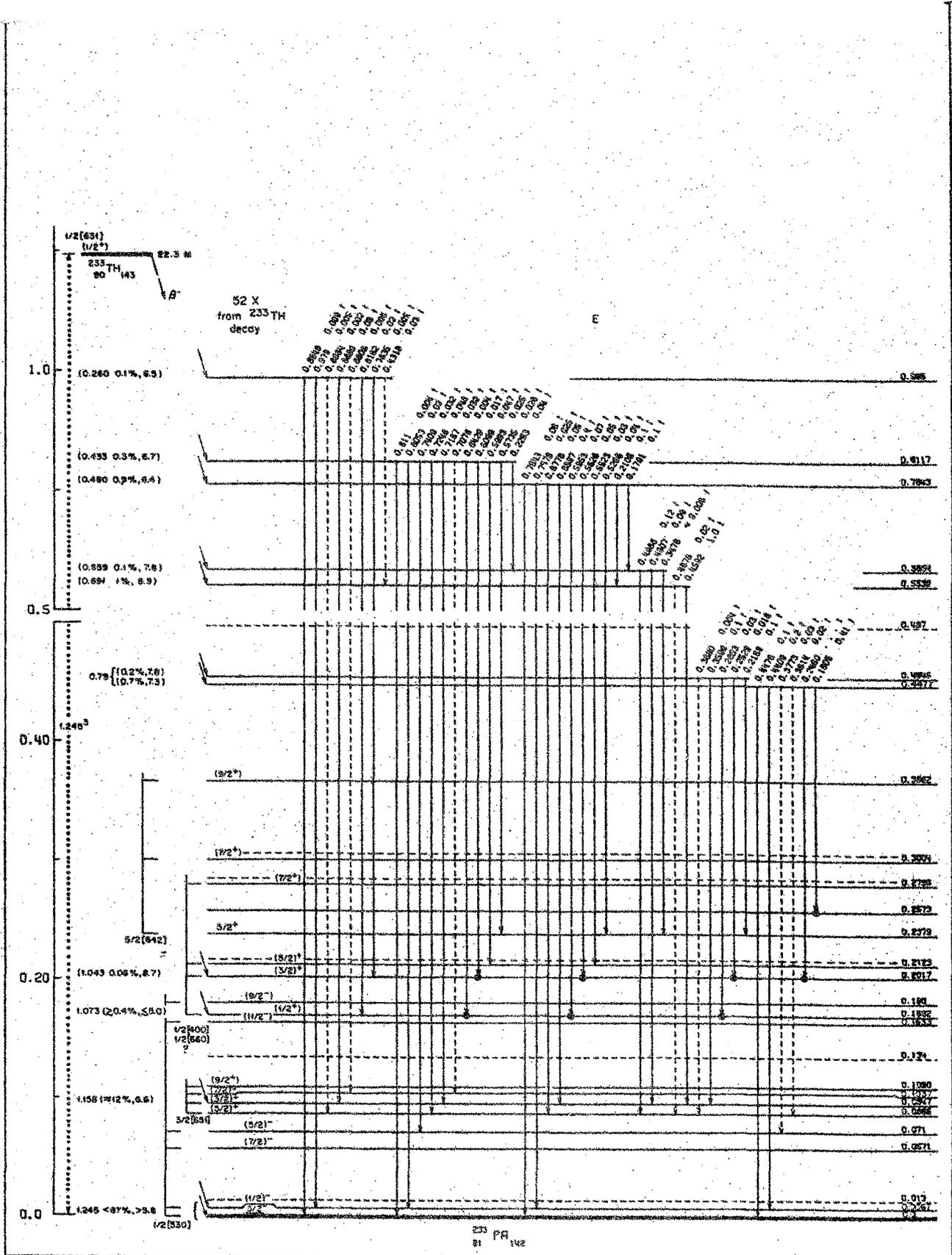


FIG. D.1 - Esquema do método de análise por ativação

ANEXO E - ESQUEMA DE DECAIMENTO DO Th-233 /26/.



ANEXO F - RELAÇÃO DOS EQUIPAMENTOS UTILIZADOS NA EXPERIÊNCIA

- Acelerador de partículas carregadas Van de Graaff  
Modelo PN-400 da High Voltage Engineering Corporation.
- Detetor de estado sólido Ge(Li)  
Série 7000 da Canberra Industries , Inc.
- Fonte alimentadora do pré-amplificador  
Modelo 435 A da ORTEC Incorporated .
- Pré-amplificador  
Modelo 970 da Canberra Industries , Inc.
- Fonte de alta tensão  
Modelo 456 da ORTEC Incorporated.
- Analisador Multicanal com 4096 canais  
Modelo 8100 da Canberra Industries, Inc.
- Perfuradora de fita de papel  
Modelo 420 da Tally Corporation.
- Sistema de aquisição de dados  
Modelo 2116 C da Hewlett Packard.
- Registrador de gráficos  
Modelo 7200 A da Hewlett Packard

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. BURRIL, E.A. & Mac GREGOR, M.H. Using accelerator neutrons. Nucleonics, New York, 18(12):64-8, 1960.
2. CALADO, C.E. & MACHADO, E.L. Implantação de um sistema de análise por ativação com nêutrons de 14 MeV. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, abr. 1974. ( IEA-332).
3. CHARACTERISTICS of californium-252. Californium-252 Prog. Californium-252 Review 1969-1970, Aiken, S.C.:3-4, 1970. (Special number).
4. CHEZEM, C.G. A uranium-metal exponential experiment. Nucl. Sci. Engng., New York, 8:652-69, 1960
5. COORDENADORIA DE ENGENHARIA QUÍMICA - INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA - Informação pessoal, São Paulo.
6. DATES, L.R. Design, construction details, and preoperational testing of an Argonne fast critical facility. Argonne, Argonne National Lab., Apr. 1966 ( ANL-7195).
7. DAVEY, W.G. An analysis of the capture cross section of  $^{238}\text{U}$  between 1 KeV and 15 MeV. Nucl. Sci. Engng, New York, 39 : 337-60, 1970.
8. DAVEY, W.G. & REDMAN, W.C. Techniques in fast reactor critical experiments. New York, Gordon and Breach, 1970.
9. DE SAUSSURE, G. et alii. Measurement of the uranium-238 capture cross section for incident neutron energies up to 100KeV. Nucl. Sci. Engng., New York, 51:385-04,1973.
10. DIAS, A.M. Avaliação das secções de choque do Th-232 e U-233. (Dissertação de Mestrado), São Paulo, 1976.
11. FAYA, A.J. Avaliação neutrônica de "blankets" de tório metálico em reatores rápidos refrigerados por gás. São Paulo, 1975 (Dissertação de Mestrado).

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS ( CONT. )

12. FAYA, S.C.S. Estudo do comportamento térmico e mecânico do envol-  
tório de tório metálico em reatores rápidos refrigerados por gás.  
São Paulo, 1975 ( Dissertação de Mestrado).
13. FORBES, I.A. et alii. Design, construction, and evaluation of a  
facility for the simulation of fast reactor blankets. Cambridge,  
Massachusetts Institute of Technology, Feb. 1970 (MIT-4105-a e  
MITNE-110).
14. FOWLER, T.B. & VONDY, D.R. Nuclear reactor core analysis code:  
CITATION. Oak Ridge, Oak Ridge National Lab., July 1971. (ORNL-  
TM-2496, Rev.2 ).
15. GREEBLER, P. et alii. Implications of nuclear data uncertainties  
to reactor design. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna.  
Nuclear data for reactors: proceedings of the 2nd conference on...  
held in Helsinki, 15-19 June 1970. Vienna, 1970. v.1, p.17-33
16. GREEBLER, P. & HUTCHINS, B.A. User requirements for cross sections  
in the energy range from 100 eV to 100 KeV. Conference on neutron  
cross section technology. Conf.66303, Book 1, 357-80 (March,1966)  
apud WOOD, P.J. & DRISCOLL, M.J. Assessment of thorium blankets  
for fast breeder reactors. Cambridge, Massachusetts Institute of  
Technology, July 1973 .( C00-2250-2; e MITNE-148).
17. GREENE, N.M. & GRAVEN, C.W. XSDRN: a discrete ordinates spectral  
averaging code. Oak Ridge, Oak Ridge National Lab., July 1968 .  
(ORNL-TM-2500).
18. HANKEL, R. et alii. An evaluation of U-233-thorium fast breeder  
power reactors. White Plains, N.Y., United Nuclear Corp., Develop-  
ment Division, Apr. 1962. (NDA-2164-3).
19. KAFALAS, M.L. & STEVENS, C.M. Determination of the ratio of capture  
to fission cross sections in EBR-I. Nucl. Sci. Engng, New York ,  
2:657-63, 1957.
20. KUSTERS, H., comp. Progress in fast reactor physics in the Federal  
Republic of Germany. Karlsruhe, Kernforschungszentrum, Aug.1973.  
( KFK-1632).

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS (CONT.)

- ~~21.~~ LANG, L.W. Power cost reduction by crossed-progeny fueling of thermal and fast reactors. Nucl. Appl., Hinsdale, Ill., 5: 302-10, 1968.
- ~~22.~~ MACIEL, A.C. & CRUZ, P.R. Perfil analítico do urânio. Rio de Janeiro, Departamento Nacional da Produção Mineral, 1973. (Boletim nº 27).
- ~~23.~~ MACIEL, A.C. & CRUZ, P.R. Perfil analítico do tório e terras raras. Rio de Janeiro, Departamento Nacional da Produção Mineral, 1973. (Boletim nº 28).
- ~~24.~~ McENHILL, J.J. & WEALE, J. W. Integral experiments on fast systems of plutonium, uranium and thorium. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna, Physics of fast and intermediate reactors: proceedings of the seminar of..., held in Vienna, 3-11 August, 1961. Vienna, 1961. v.1, p.253-62.
- ~~25.~~ MUGHABGHAB, S.F. & GARBER, D.I. Neutron cross sections, v.1: Resonance parameters. 3.ed. Upton, New York, Brookhaven National Lab., Jun. , 1973 (BNL-325).
- ~~26.~~ NUCLEAR DATA SHEETS, New York, v.6, n.3, Sep. 1971.
- ~~27.~~ OOSTERKAMP, W.J. An evaluation of fast reactor blankets. São Paulo Instituto de Energia Atômica, Set. 1974 (IEA-354).
- ~~28.~~ RODRIGUES, W.G. Viabilidade neutrônica de um conjunto crítico térmico-rápido destinado ao estudo de envoltórios de reatores rápidos. São Paulo, 1976 (Dissertação de Mestrado).
- ~~29.~~ SEUFERT, H. & STEGEMANN, D. A method for absolute determination of  $^{238}\text{U}$  capture rates in fast zero-power reactors. Nucl. Sci. Engng. New York, 28:277-85, 1967.
- ~~30.~~ U.S. ATOMIC ENERGY COMMISSION, Division of Reactor Development & Technology, Washington, D.C. Reactor Physics efforts required in support of the fast breeder development program. Washington, D.C Jan. 1966. (WASH-1066).

## REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS (CONT.)

- ~~31.~~ U.S. ATOMIC ENERGY COMMISSION, Division of Reactor Development & Technology, Washington, D.C. The use of thorium in nuclear power reactors. Washington, D.C., June 1969 (WASH-1097).
- ~~32.~~ YOUNG, L.C. et alii. Measurement and analysis of neutron spectra in a fast subcritical assembly containing U-235, U-238 and beryllium oxide. Nucl. Sci. Engng., New York, 48:45-50, 1972.
- ~~33.~~ WOOD, P.J. & DRISCOLL, M.J. Assessment of thorium blankets for fast breeder reactors. Cambridge, Massachusetts Institute of Technology, July 1973. (COO-2250-2; e MITNE-148).