

MEDIDA DE SECÇÃO DE CHOQUE DE ATIVAÇÃO EM ESPECTRO DE NEÚTRONS DA FISSÃO DO ^{235}U

Professor Responsável :
Luiz Paulo Geraldo

Participantes:
Johnny Ferraz Dias, Maria Lucia Yoneama, Paula Vercelli, Garabed Kenchian, Arnaldo Gammal, Ulysses Bitelli e Renato Semmler.

RESUMO

Medida relativa da secção de choque de ativação para a reação $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ foi realizada, em um espectro de nêutrons de fissão obtido junto ao núcleo do reator IEA-R1. O fluxo de nêutrons foi monitorado utilizando as seguintes reações padrões: $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ e $^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$. O valor da secção de choque integral obtida para a reação $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ foi de $(0,0039 \pm 0,00015)$ mb. Este resultado, apesar de estar em excelente acordo com outros autores, não resolve a discrepância ainda existente entre os valores experimental e calculado.

ACTIVATION CROSS SECTION MEASUREMENT IN THE ^{235}U FISSION NEUTRON SPECTRUM

ABSTRACT

Relative measurement of activation cross section for the $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ reaction has been performed in the fission neutron spectrum obtained near the core of the IEA-R1 reactor. The neutron flux was monitored using the following standard reactions : $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ and $^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$. An integral cross section value of $(0,0039 \pm 0,00015)$ mb has been obtained for the $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ reaction. Despite to be in excellent agreement with other authors, the present result does not resolve the existing discrepancy between measured and calculated values.

INTRODUÇÃO

Dados sobre secções de choque integrais ($\bar{\sigma}$) em espectros de nêutrons padrões tais como: ^{252}Cf e fissão do ^{235}U , são importantes tanto para os programas de dosimetria de nêutrons rápidos em reatores de fissão e fusão como para a avaliação da consistência das respectivas secções de choque diferenciais.

Neste trabalho, foi realizada uma medida relativa da secção de choque integral para a reação $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$, utilizando o espectro de fissão obtido junto ao núcleo do reator IEA-R1. Esta reação, apesar de apresentar as características essenciais (vide tabela 1) para ser um dosímetro padrão para nêutrons rápidos, infelizmente apresenta ainda discrepâncias acentuadas (aproximadamente 26%)⁽¹⁾ entre os valores experimental e calculado para a secção de choque. Desta maneira, informações experimentais adicionais sobre esta secção de choque são importantes tanto para se resolver as discrepâncias citadas como para reduzir a incerteza no conhecimento deste importante parâmetro.

O presente experimento foi realizado com estes objetivos em mente, já que nenhum resultado relevante foi apresentado na literatura desde a publicação de Kobayashi⁽²⁾ a aproximadamente uma década atrás.

PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

A secção de choque integral ou média, para uma reação com energia limiar E_1 , em um espectro de nêutrons $\phi(E)$, como por exemplo o da fissão do ^{235}U , é

definida como:

$$(1) \quad \bar{\sigma} = \frac{\int_0^{\infty} \sigma(E) \phi(E) dE}{\int_0^{\infty} \phi(E) dE} \quad \text{onde,}$$

$\sigma(E)$ - representa a secção de choque diferencial dependente da energia.

Desta forma $\bar{\sigma}$ pode ser obtida fazendo medidas integrais em um espectro de fissão, ou calculada usando a forma conhecida deste espectro de nêutrons, juntamente com as respectivas secções de choque diferenciais $\sigma(E)$.

Para se obter informações experimentais sobre $\bar{\sigma}$ em um determinado campo de nêutrons, em geral é necessário:

- i) Uma caracterização cuidadosa do espectro de nêutrons incidindo sobre a amostra, e
- ii) Uma monitoração do fluxo ou fluência de nêutrons.

Neste experimento, foi admitido que o espectro de nêutrons rápidos, próximo ao elemento combustível, é similar ao espectro de fissão do ^{235}U . Esta hipótese é razoável considerando os resultados obtidos por Kimura et al.⁽⁶⁾, utilizando um reator muito similar ao IEA-R1.

Para monitoração do fluxo de nêutrons foram empregadas duas reações padrões: $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$, e $^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$. A escolha destes dois monitores deveu-se

aos seguintes fatos: i) Possuem limiares de reação efetivos relativamente altos, diferentes e menores que o da reação $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ (veja tabela 1). As seções de choque integrais no espectro de fissão são muito bem conhecidas; e iii) A utilização de dois monitores permitiu um controle melhor do erro sistemático envolvido na determinação do fluxo de nêutrons.

Folhas de Níquel, Alumínio e Magnésio com nível de pureza superior a 99,9%, revestidas com Cádmio (0,5mm de espessura), foram irradiadas próximo ao núcleo do reator por um período de tempo de três horas. O fluxo de nêutrons rápidos neste local é da ordem de 10^{12} n/cm²s. A posição de irradiação escolhida foi a mais próxima possível do elemento combustível, a fim de que a perturbação do espectro de fissão provocada pelo moderador (água leve) do reator fosse mínima. Apesar de terem limiares de reação relativamente altos, as folhas de ativação foram irradiadas envoltas com Cádmio, a fim de evitar ativações de impurezas e outras reações indesejáveis, produzidas pela presença do alto fluxo de nêutrons térmicos local, que é da ordem de 10^{13} n/cm²s.

Após a irradiação, as atividades gama induzidas nas folhas foram medidas utilizando um detetor Ge(Li), em uma geometria que pode ser vista na figura 1. A calibração da eficiência relativa deste detetor foi efetuada no intervalo de 0,356 a 1,408 Mev, utilizando quatro fontes padrões (^{152}Eu , ^{133}Ba , ^{137}Cs e ^{60}Co) produzidas pela AIEA (Agência Internacional de Energia Atômica). Métodos de mínimos quadrados e matriz de covariância foram aplicados na análise dos dados e, detalhes sobre esta metodologia podem ser encontrados nas referências (7)-(9).

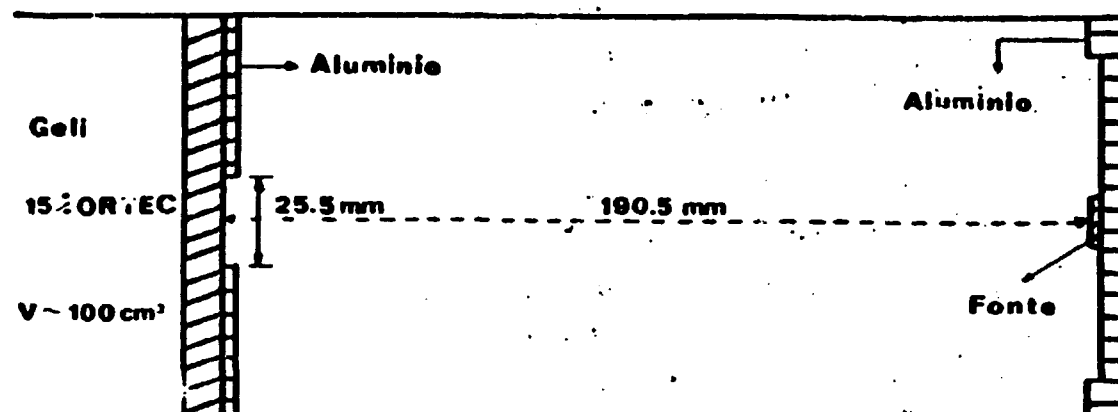


FIG. 1

A equação representando o melhor ajuste é dada por:

$$(2) \quad \ln(\bar{E}_p) = (-0,11 \pm 0,12) - (1,06 \pm 0,02) \ln(E)$$

e as matrizes de covariância (\bar{V}_p) e correlação (\bar{C}_p) para os parâmetros ajustados são:

$$(3) \quad \bar{V}_p = \begin{vmatrix} 0,01650 & \\ -0,00247 & 0,00037 \end{vmatrix}$$

$$\bar{C}_p = \begin{vmatrix} 1 & \\ -0,997 & 1 \end{vmatrix}$$

O χ^2 normalizado obtido para o polinómio ajustado (grau 2) foi próximo de um, e portanto, a solução representada pela equação (2) pode ser considerada satisfatória.

Os dados referentes as contagens gama foram a seguir corrigidos para a eficiência do detetor Ge(Li). A produção total de núcleos radioativos, logo após a irradiação, foi obtida após as correções para decaimento durante o tempo de irradiação, tempo de espera e tempo de contagem. Os fluxos de nêutrons bem como a secção de choque integral foram obtidos utilizando a seguinte equação, e os dados apresentados na tabela 1:

$$(4) \quad R = N_T \phi_n \bar{\sigma} \quad \text{onde}$$

R - Taxa de reações;

N_T - Número total de átomos da amostra;

ϕ_n - Fluxo de nêutrons

Os fluxos de nêutrons rápidos determinados através dos monitores concordaram entre si dentro de 1,55%, e o valor médio obtido foi de $\phi_n = (3,90 \pm 0,06) \times 10^{12}$ n/cm²s. Este valor foi utilizado na equação (4) para se extrair a secção de choque integral para a reação $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$. O resultado obtido foi de $(0,00390 \pm 0,00015)$ mb, e é comparado na tabela 2 com os dados apresentados por outros autores. O erro final na secção de choque foi determinado por quadratura levando em consideração as seguintes fontes de erros: contagem da radiação gama (2,5%), determinação da massa (0,29%), eficiência (1,55%), determinação do fluxo

(1,55%), meia-vida (0,25%) e razão de decaimento (1,03%).

De acordo com Sekine e Bada⁽¹⁰⁾, a sistemática para a secção de choque média $\bar{\sigma}_{n,2n}$, em espectro de fissão, para diversos núcleos segue a seguinte equação empírica:

$$(5) \quad \bar{\sigma}_{n,2n} \text{ (mb)} = 2,8 \times 10^3 (0,12 A^{1/3} + 0,21)^2 (1 - 1,764 \times \exp[-18,14 (N - Z)/A]) \times \exp(-0,794 E_1)$$

De acordo com a equação (5), a secção de choque integral para a reacção $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ é 0,0038 mb, um valor que está em excelente concordância com o obtido no presente experimento.

Tabela 1

Características principais das reacções :
 $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$, $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ e $^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$

Reacção	$^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$	$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	$^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$
E_L (MeV) ⁽⁶⁾	13,4	7,20	6,60
E_γ (MeV) ⁽⁸⁾	1,378	1,369	1,369
$T_{1/2}$ ⁽⁴⁾	(36,08 ± 0,09)H	(15,02 ± 0,007)H	(15,02 ± 0,007)H
Branch. ratio (%) ⁽⁸⁾	77,6 ± 0,8	100	100
secções de choque ⁽¹⁾	$2,859 \times 10^{-6}$ b	$7,194 \times 10^{-6}$ b	$1,507 \times 10^{-6}$ b
percent. isotópica ⁽⁴⁾	68,27 ± 0,01	100	78,99 ± 0,03
massa (g)	0,3740 ± 0,0005	0,0555 ± 0,0005	0,00511 ± 0,0005

Tabela 2
Secções de choque integrais para a reacção
 $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ (em mb)

Presente Resultado	0,00390 ± 0,00015
Kobayashi (80) ⁽²⁾	0,00360 ± 0,00024
Sekine (78) ⁽¹⁰⁾	0,00380 ± 0,00050
Braun (68) ⁽¹¹⁾	0,004 ± 0,0009
Pearlstein (65) ⁽¹²⁾	0,002
Calamand (74) ⁽¹³⁾	0,0049 ± 0,0014
Fabri (78) ⁽¹⁴⁾	0,00577 ± 0,00031

CONCLUSÃO

O presente experimento apresenta um novo resultado experimental para a secção de choque integral para a reacção $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$, no espectro de fissão do ^{235}U . Esta nova informação oferece mais uma oportunidade, para a redução do erro na secção de choque avaliada para esta importante reacção nuclear. Entretanto, a grande discrepância entre os valores calculados (Tabela 1) e experimental (Tabela 2), continua existindo e portanto, estudos adicionais para resolver este impasse, são ainda necessários.

REFERÊNCIAS

- (1) CULLEN, D.E. and Mc LAUGHLIN, P.K. "The International Reactor Dosimetry File (IRDF-85)", International Atomic Energy Agency, Nuclear Data Services, 1985 - IAEA-NDS-41;
- (2) KOBAYASHI, K. and KIMURA, I. "The average cross sections for the (n,2n) reactions of ^{55}Mn , ^{58}Ni , ^{59}Co , and ^{127}I to the fission neutrons of ^{235}U ": KIKUCHI, S. "Japanese Nuclear Data Committee" - Tokai-mura, Ibaraki-Ken, Japan, 1980, p.42, NEAMDC(J)-67/U;
- (3) LEDERER, C.M. and SHIRLEY, U.S. "Table of Isotopes" 7th Edn. Wiley, New York, 1978;
- (4) TULI, J.K. "Nuclear Properties" in: Vienna, International Atomic Energy Agency, Technical Reports Series n^o 273, Handbook on Nuclear Activation Data, 1987, p.3;
- (5) KIMURA, I.; KOBAYASHI, K. and SHIBATA, T. "Measurements of Average Cross Sections for some threshold reactions for neutrons with fission-type reactor spectrum". J.Nucl.Sci.Tech. 8(2): 59-69, 1971;
- (6) ZIJP, W.L. and BAARD, J.H. "Nuclear Data guide for reactor neutron metrology", Luxembourg, Commission of the European Communities, 1979, EUR7164En;
- (7) GERALDO, L.P. and SMITH, D.L. - "Least Square methods and covariance matrix applied to the relative efficiency calibration of a Ge(Li) detector". São Paulo, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares,

1989 (Pub.IPEN-243);

(8) SMITH, D.L. "Covariance matrices and applications to the field of nuclear data", Idaho Falls, Argonne National Lab, 1981. (ANL/NDM-62);

(9) GERALDO, L.P.; SMITH, D.L. and MEADOWS, J.W. "Activation cross section measurements near threshold for the $^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$ and $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ reactions" *Ann.Nucl.Energy*, V16(6): 293-299, 1989;

(10) SEKINE, T. and BABA, H. "Yields of ^{66}Ni and ^{57}Ni in the irradiation of Nickel with reactor neutrons", *J.Inorg.Nucl.Chem.* V40: 1977-1980, 1978;

(11) BRAUN, VON H. and NAGY, L. "Mittlere reaktions querschnitte für reaktor-neutronen für (n,p), (n, α) und (n,2n) reaktionen an ^{50}Co , ^{58}Ni , ^{54}Fe und ^{90}Y . *Radiochim.Acta*, 10: 15-19, 1968;

(12) PEARLSTEIN, S. "Analysis of (n,2n) cross sections for medium and heavy mass nuclei" *Nucl.Sc.Eng.* V23: 238-250, 1965;

(13) CALAMAND, A. "Cross section for fission neutron spectrum induced reactions", In: Vienna, International Atomic Energy Agency, Handbook on Nuclear activation cross sections, Technical reports series n^o 156, 1974, p.273;

(14) FABBY, A.; Mc ELROY, W.N.; KELLOGG, L.S.; LIPPINCOTT, E.P.; GRUNDL, J.A.; GILLIAM, D.M. and HANSEN, G.E., "Review of microscopic integral cross section data in fundamental reactor dosimetry benchmark

neutron fields", In: **Neutron Cross Sections for reactor dosimetry, VI: proceedings of a consultant's meeting on ... held in Vienna, November 15-19, 1976.**