



22 a 27 de abril de 1990

ANAIS - PROCEEDINGS

ESPECTROMETRIA DE FRAGMENTOS DE FISSÃO PARA OTIMIZAÇÃO DA
ESPESSURA DE U308 EM ELETRODOS DE CÂMARAS DE FISSÃO.

Teresinha Ferreira Lima Daltro
Carmen Cecília Bueno Tobias *

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR - SP
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Caixa Postal 11049 - Pinheiros
05508 - São Paulo - BRASIL

SUMÁRIO

A fim de otimizar a espessura da camada de U308 (enriquecido a 93% em U-235) a ser depositada em eletrodos de câmaras de fissão, foi feito um estudo da auto-absorção dos fragmentos de fissão produzidos por nêutrons térmicos. A técnica utilizada foi a da espectrometria, com um detector de barreira de superfície, analisando os fragmentos de fissão produzidos em alvos de alumínio com U308 eletrodepositado molecularmente, com massas superficiais desde 0,09mg/cm² até 1,53mg/cm². Os resultados obtidos permitiram determinar o valor ideal da espessura do depósito (1,0mg/cm²) para a obtenção da maior eficiência de detecção.

ABSTRACT

This paper describes the results of experiments made in order to determine the optimum thickness of U308 (enriched to 93% of U-235) layers to be used for coating the electrodes of fission chambers. The experimental technique utilized was based on the use of a silicon barrier detector for the measurement of the fission tracks, produced in molecular plating layers with the thickness ranging from 0,09mg/cm² up to 1,53mg/cm². The obtained results allowed a determination of the influence of the self-absorption of the tracks in the U308 layer in order to achieve the optimum thickness corresponding to the highest efficiency of the chamber for fission detection.

* Pontifícia Universidade Católica de São Paulo (PUC-SP)

INTRODUÇÃO

No desenvolvimento de câmaras de fissão é importante o conhecimento da correlação existente entre a sensibilidade do detector e a massa superficial do depósito do material físsil utilizado. A resposta do detector, seja como a magnitude da corrente coletada ou a taxa de pulsos produzidos, será função do número de reações de fissão que ocorrem na camada sensível, e da proporção de fragmentos de fissão que emergem da camada em direção ao gás. Entretanto, como todos os elementos físsis utilizados são emissores alfa, é necessário que os fragmentos de fissão tenham uma energia residual, no gás de enchimento da câmara, que corresponda a impulsos de amplitudes superiores àqueles devidos a radiação alfa.

Experimentalmente este limiar de energia, necessário para uma perfeita discriminação entre os impulsos devidos a fragmentos de fissão e aos de radiação alfa, é aumentado devido ao empilhamento dos impulsos alfa. Em consequência, em se aumentando a espessura do depósito além de um certo valor, não se obtém uma melhora significativa da sensibilidade da câmara pois o fenômeno da auto-absorção dos fragmentos de fissão limita o número daqueles que conseguem emergir do depósito. Considerando-se que as dificuldades de deposição de materiais físsis em eletrodos de câmaras de fissão crescem quando se deseja obter maiores massas superficiais, procurou-se estudar a auto-absorção dos fragmentos de fissão produzidos no U308 (enriquecido a 93% em U-235) por nêutrons térmicos.

Para tanto, empregou-se a técnica de espectrometria destes fragmentos utilizando-se um detector de barreira de superfície. Os dados obtidos permitiram estabelecer o melhor valor da massa superficial de U308 a ser depositada no eletrodo da câmara de fissão.

SENSIBILIDADE À NÊUTRONS E RENDIMENTO DE DETECÇÃO DOS FRAGMENTOS DE FISSÃO

Quando uma câmara de fissão é exposta a um fluxo (ϕ) constante de nêutrons, o número de reações que ocorrem por segundo, por unidade de área do revestimento do material físsil utilizado, é dado pela seguinte relação:

$$R = N \int_0^{\infty} \sigma_f(E) \phi(E) dE \quad (1)$$

onde N é o número de núcleos do elemento físsil, depositado no eletrodo da câmara, por unidade de área e E a energia dos nêutrons. Contudo, se o espectro de energia dos nêutrons situa-se dentro da faixa em que a secção de choque do elemento físsil (σ_f) varia conforme a lei de "1/v", a equação (1) pode ser reescrita da seguinte forma:

$$R = N \sigma_{fo} v_o \int \frac{\phi(E)}{v(E)} dE = N \sigma_{fo} v_o \bar{v}^{-1} \phi \quad (2)$$

onde σ_{fo} é a secção de choque do elemento físsil para nêutrons térmicos e v_o é a velocidade mais provável dos nêutrons. Podemos admitir, com boa aproximação, que no fluxo de nêutrons térmicos a distribuição de velocidades corresponde à distribuição Maxwelliana para qual a velocidade média \bar{v} é igual a $1,1284v_o$, a equação (2) será dada pela relação:

$$R = \frac{N \sigma_{fo} \phi}{1,1284} \quad (3)$$

Considerando-se que a probabilidade $p(E)$ de que cada reação de fissão resulte em uma contagem seja igual a 1, a taxa de contagens registradas por unidade de fluxo, por unidade de área do depósito, é dada pela expressão:

$$S = \frac{R}{\phi} = \frac{N \sigma_{fo}}{1,1284} \quad (4)$$

A equação (4) representa a sensibilidade da câmara de fissão por unidade de área do depósito. No caso do U308 (enriquecido a 93% em U235), onde a secção de choque no U235 para fissão induzida por nêutrons térmicos é $(582,6 + 1,1)b$, a sensibilidade S é dada por:

$$S = 1,23 \cdot 10^{-3} m \quad (5)$$

onde m é a espessura do revestimento da câmara expressa em mg/cm^2 .

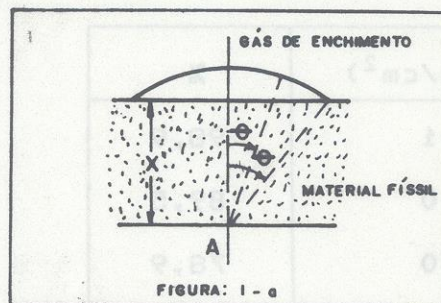
Uma análise da expressão (5) nos permite concluir que a sensibilidade da câmara cresce linearmente com a espessura do depósito; contudo um limite deste valor é encontrado devido a auto-absorção dos fragmentos de fissão. Desta forma, se faz necessário um estudo da correlação existente entre a sensibilidade relativa (S) da câmara e a absorção dos fragmentos no material físsil, na medida em que se aumenta a espessura do depósito.

Com esse propósito introduz-se uma variável x definida pela relação entre a massa superficial m e o alcance máximo dos fragmentos de fissão ($R_{máx}$) no U308 ($7,90 mg/cm^2$). Então para o caso da massa superficial ser igual a $7,90 mg/cm^2$ a sensibilidade relativa da câmara é igual a $9,72E-03 cps/cm^2 nv$, ou seja apenas 0,97% dos nêutrons interagem em cada cm do urânio depositado. Então a sensibilidade relativa para massas superficiais menores que o alcance máximo dos fragmentos de fissão é dada por:

$$S = 9,72 \cdot 10^{-3} x \quad (6)$$

Por outro lado, a ionização total produzida no gás, pelos fragmentos de fissão, depende da profundidade do depósito onde ocorreu a reação bem como do ângulo (θ) de emissão do fragmento em relação a normal à superfície do depósito. Em consequência existe um ângulo de inclinação máximo (θ_1) para o qual os fragmentos emergentes têm ainda um alcance residual mínimo (δ) - suficiente para serem discriminados das partículas alfa.

Se o alcance for considerado unitário e o mesmo (em unidades de densidade superficial) tanto no depósito quanto no gás de enchimento da câmara, o alcance residual dos fragmentos de fissão (figura 1-a) é dado por: $(1 - x/\cos \theta)$.



Se admitirmos que a ionização é constante ao longo da trajetória dos fragmentos de fissão, a ionização produzida no gás devida àqueles que foram originados em uma profundidade x será:

$$\frac{\int_0^{\theta_1} (1 - \frac{x}{\cos \theta}) 2\pi \sin \theta d\theta}{\int_0^{\pi} 2\pi \sin \theta d\theta} = \frac{1}{2} (1 - x + x \log x) \quad (7)$$

Integrando-se a expressão 7 para todos valores possíveis de x obtem-se:

$$F(x) = \frac{1}{2} (x - \frac{3x^2}{4} + \frac{x^2}{2} \log x) \quad (8)$$

a qual pode ser normalizada de forma que $F_n(x)=1$ para $x=1$. O resultado desta normalização é:

$$F_n(x) = 4x - 3x^2 + 2x^2 \log x \quad (9)$$

O produto da equação (9) pela equação (5) permite

encontrar o valor de x para o qual a ionização produzida no gás pelos fragmentos de fissão é máxima. O resultado encontrado para massa superficial é de $4,74 \text{ mg/cm}^2$. É evidente que experimentalmente este valor é bem menor visto que no cálculo feito considerou-se que todos os fragmentos de fissão são emitidos com a energia máxima e igual a 97 MeV . Por outro lado, de forma análoga a dedução anteriormente feita, pode se obter a expressão para o rendimento (η) de detecção dos fragmentos de fissão emergentes do depósito de massa superficial m , por:

$$\eta(\%) = 1 - \frac{m}{2R(1 - \delta)} \quad (10)$$

Então para $R = 7,9 \text{ mg/cm}^2$ e $\delta = 0,4$ pode-se construir a seguinte tabela (1).

Tabela 1. Rendimento de detecção dos fragmentos de fissão em função da massa superficial de U308

$m \text{ (mg/cm}^2\text{)}$	%
0,1	98,9
1,0	89,5
2,0	78,9
3,0	68,4

A análise da tabela (1) mostra que o aumento da massa superficial do depósito fica comprometido pelo fenômeno de auto absorção e que portanto não se deve esperar uma melhora significativa da sensibilidade de câmaras com depósitos de espessuras superiores a 2 mg/cm^2 .

ARRANJO EXPERIMENTAL

Os nêutrons térmicos foram obtidos a partir de uma fonte de Am-Be de $0,56 \text{ GBq}$ (15 Ci) submersa em $1,05 \cdot 10^5 \text{ cm}^3$ de água leve. Após percorrerem cerca de 15 cm neste meio, os nêutrons incidiam em um bloco de polietileno que serviu também como suporte dos alvos de urânio. Estes foram obtidos pelo processo de eletrodeposição molecular do U308 em discos de alumínio estando os valores de massas superficiais situados na faixa de $0,09 \text{ mg/cm}^2$ a $1,53 \text{ mg/cm}^2$.

A detecção dos fragmentos de fissão foi feita utilizando-se um detector de barreira de superfície Ortec, modelo BA - 17 - 100 - 100 mantendo-se o conjunto alvo-detector em uma pressão inferior a $1,33E-05$ mbar. A figura 1 representa o esquema do arranjo experimental utilizado.

Os impulsos provenientes do detector, após passarem por estágios de amplificação, foram analisados em um sistema ADCAM - Ortec, modelo 918 - A, acoplado a um microcomputador IBM, PC - AT. O diagrama de blocos do equipamento eletrônico utilizado está representado na figura 2.

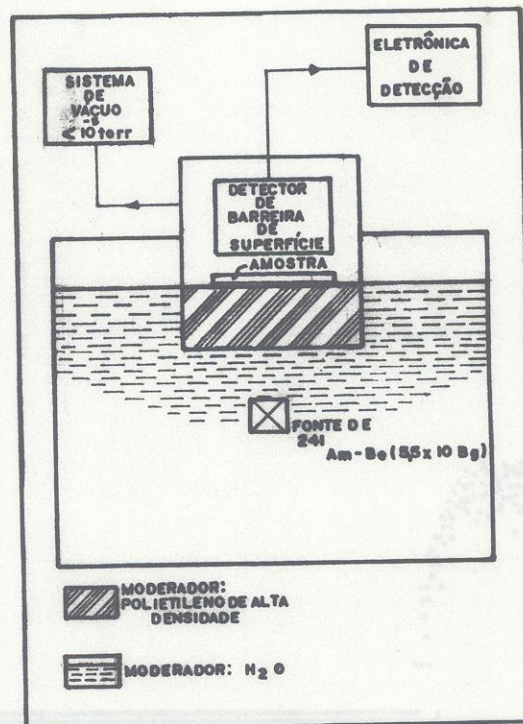


Figura 1. Esquema do arranjo experimental

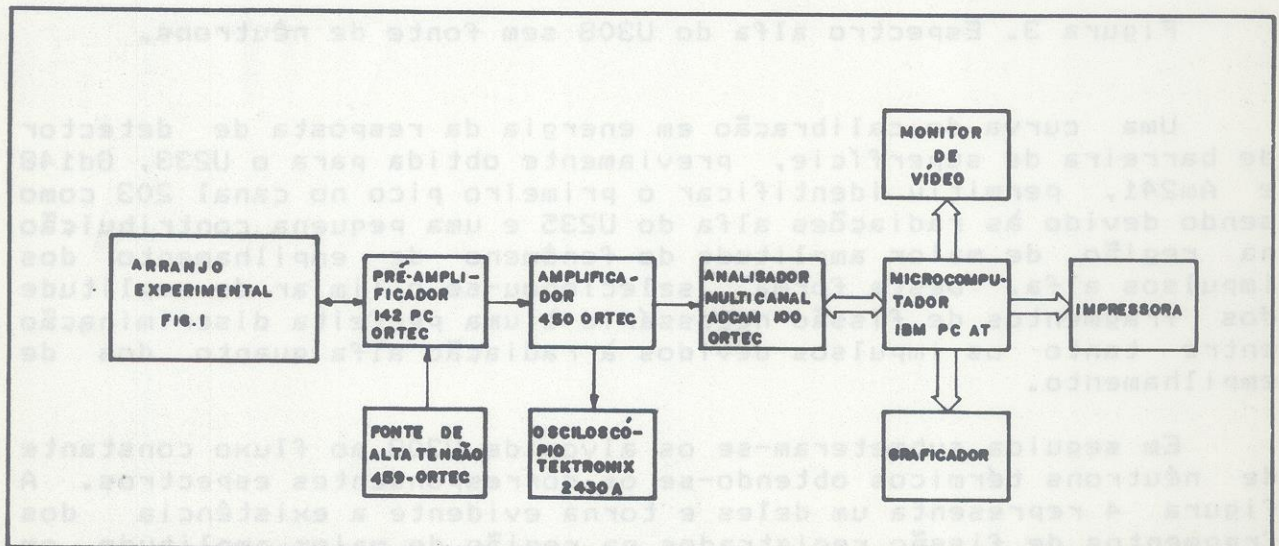


Figura 2. Diagrama de blocos do equipamento eletrônico utilizado.

RESULTADOS OBTIDOS

Com a finalidade de discriminar os impulsos provenientes do detector de barreira de superfície devidos aos fragmentos de fissão e os de radiação alfa, construiu-se, em ausência da fonte de nêutrons, o espectro de energia das partículas alfa emitidas pelo depósito de U308, o qual está representado na figura 3.

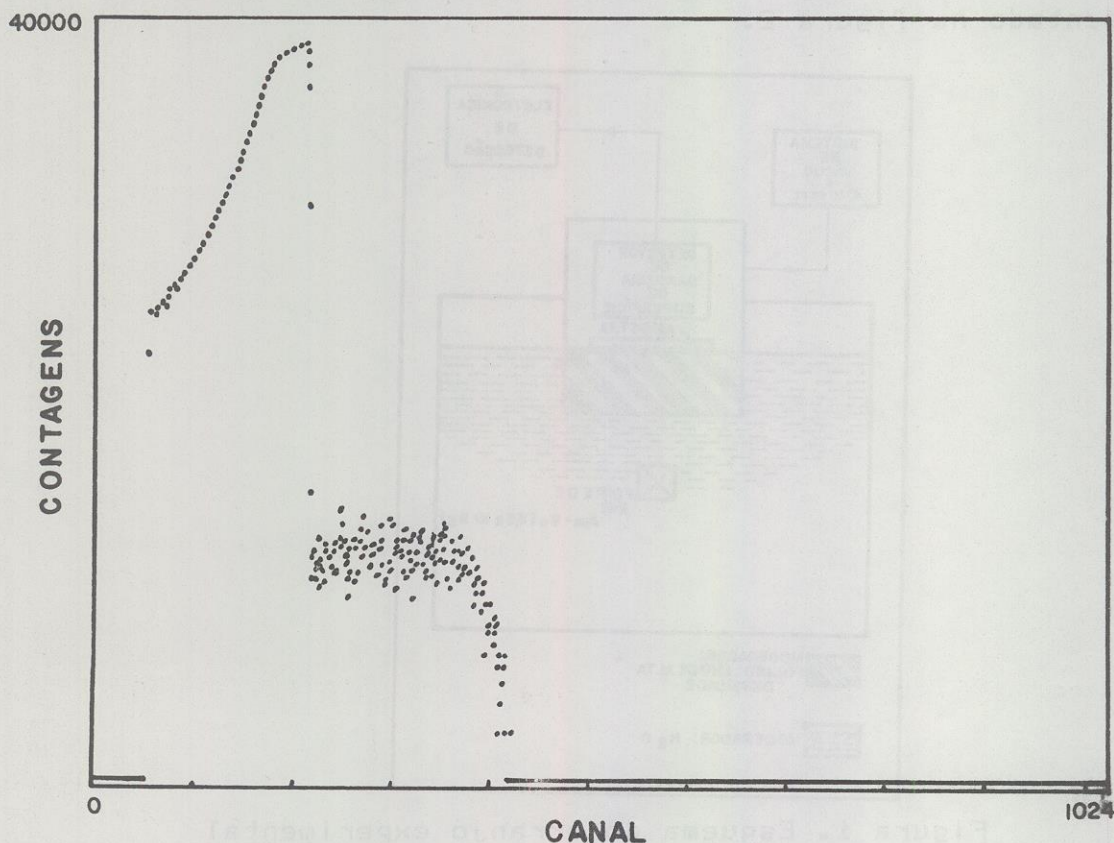


Figura 3. Espectro alfa do U308 sem fonte de nêutrons.

Uma curva de calibração em energia da resposta de detector de barreira de superfície, previamente obtida para o U233, Gd148 e Am241, permitiu identificar o primeiro pico no canal 203 como sendo devido às radiações alfa do U235 e uma pequena contribuição na região de maior amplitude do fenômeno de empilhamento dos impulsos alfa. Desta forma, selecionou-se o limiar de amplitude dos fragmentos de fissão necessário à uma perfeita discriminação entre tanto os impulsos devidos à radiação alfa quanto dos de empilhamento.

Em seguida submeteram-se os alvos de U308 ao fluxo constante de nêutrons térmicos obtendo-se os correspondentes espectros. A figura 4 representa um deles e torna evidente a existência dos fragmentos de fissão registrados na região de maior amplitude em relação às radiações alfa individuais e de empilhamento.

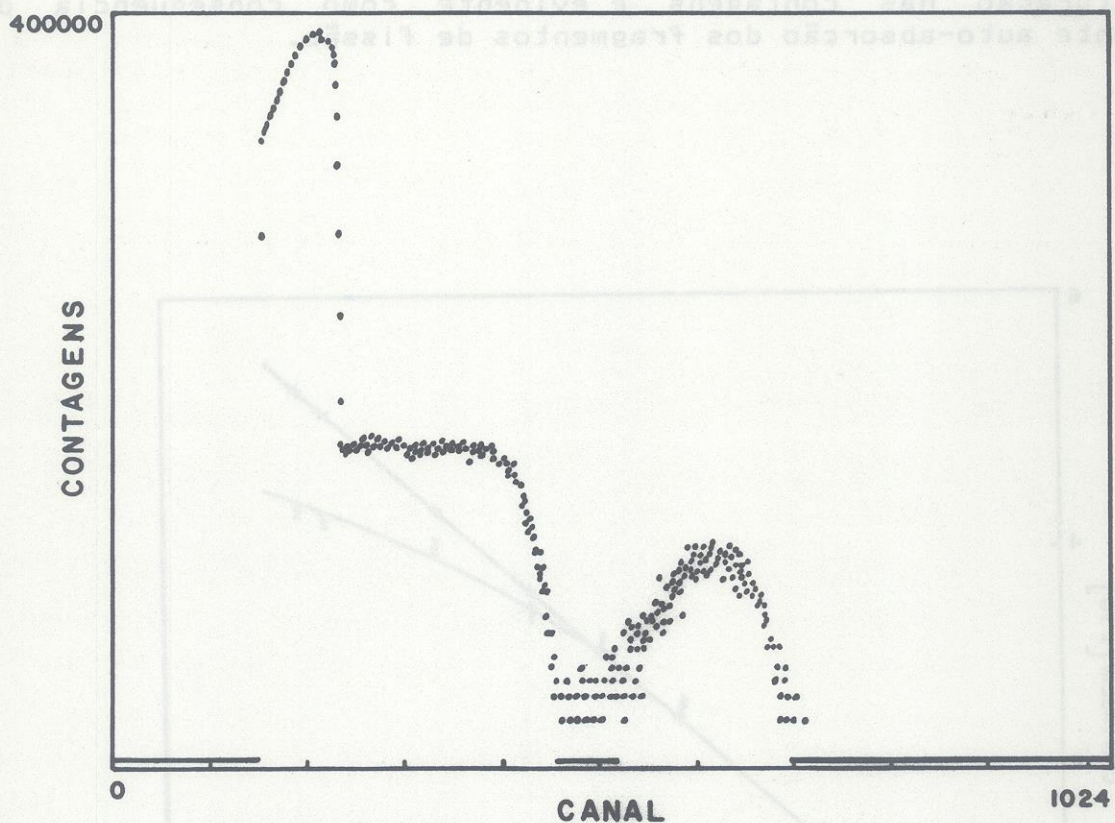


Figura 4. Espectro do U308 de massa superficial $1,53\text{mg}/\text{cm}^2$.

Os números totais de impulsos de fragmentos de fissão, situados além da região de empilhamento, foram determinados para os diversos alvos de U308 utilizados. Desta forma, uma curva experimental desses números acumulados durante o tempo de 20.000 segundos, em função das massas superficiais de U308, foi construída e está representada na figura 5. Nesta, a saturação da contagem é evidente e demonstra claramente o fenômeno de auto-absorção dos fragmentos de fissão.

ANÁLISE DOS DADOS OBTIDOS E CONCLUSÃO

Levando-se em consideração que para espessuras de depósito de U308 inferiores a $0,6\text{mg}/\text{cm}^2$, a distribuição em energia dos fragmentos de fissão emergentes não sofre alteração significativa, foi possível construir a curva teórica da contagem registrada em função da massa superficial. Para tanto desprezou-se a auto-absorção dos fragmentos de fissão no disco de menor espessura ($0,09\text{mg}/\text{cm}^2$) e a partir da contagem a ele associada, calculou-se aquela esperada para os discos de massas superficiais

maiores. A figura 5 demonstra que para massas superficiais até $0,92 \text{ mg/cm}^2$ a curva experimental coincide com a teórica dentro da precisão das medidas. Contudo, a partir de $1,06 \text{ mg/cm}^2$ o efeito de saturação nas contagens é evidente como consequência da crescente auto-absorção dos fragmentos de fissão.

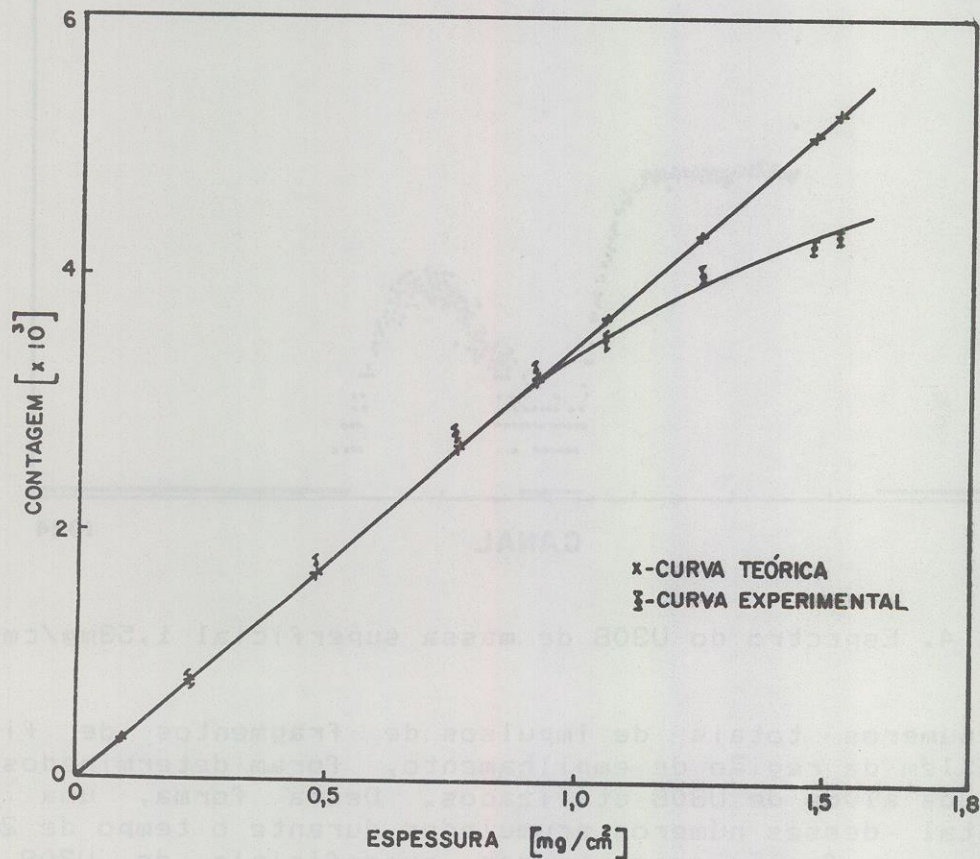


Figura 5. Curva teórica e experimental da contagem em função da massa superficial de U308.

Em consequência, como foi demonstrado anteriormente, um aumento na espessura do depósito a partir deste valor não conduz a um acréscimo significativo no rendimento de detecção superposto às dificuldades de deposição que crescem na medida em que se deseja obter espessuras maiores. Sendo assim, para garantir um bom rendimento de detecção dos fragmentos de fissão e minimizar as dificuldades de deposição do material físsil é conveniente utilizar-se massas superficiais em torno de $1,0 \text{ mg/cm}^2$.

AGRADECIMENTOS

Ao Prof. Dr. Marcello Damy de Souza Santos pelas valiosas sugestões e discussões elucidativas para a realização deste trabalho. A Célia Marina Napolitano pela deposição e medida das massas superficiais de U308 nos alvos utilizados.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. MUGHABGHAB, S.F. Neutron Cross Sections Volume 1, part B, Academic Press, 1984.
2. KAHN, S., HARMAN, R.; FORGUE, V.; Energy Distribution of Fission Fragments from Uranium Dioxide Films. In: Nucl. Sci. and Eng., 23 : 8420, 1965.
3. FRANK, P.W.; Recoil Range of Fission Fragments, Bettis Technical Review, 1964, (WAPD - BT -30).
4. CORYELL, C.D. The science and Engineering of Nuclear Power Vol.I, Addison, Wesley Press Inc, 1947.