

BR8816498

NUCLEBRÁS

Empresas Nucleares Brasileiras SA

**MEDIDA DE ENRIQUECIMENTO DE URÂNIO
POR IRRADIAÇÃO COM NÊUTRONS DE 14 MeV**

Helena Regina Rezende

NUCLEBRÁS/CDTN-583

CENTRO DE DESENVOLVIMENTO DA TECNOLOGIA NUCLEAR

CAIXA POSTAL, 1941 - 30.000 - BELO HORIZONTE - BRASIL

EMPRESAS NUCLEARES BRASILEIRAS S.A. - NUCLEBRÁS
CENTRO DE DESENVOLVIMENTO DA TECNOLOGIA NUCLEAR
DEPARTAMENTO DE TECNOLOGIA DE REATORES

MEDIDA DE ENRIQUECIMENTO DE URÂNIO
POR IRRADIAÇÃO COM NÉUTRONS DE 14 MeV

Helena Regina Rezende

NUCLEBRÁS/CDTN - 593

Belo Horizonte

1987

TÍTULO DA DISSERTAÇÃO : "Medida de Enriquecimento de Urânio
por Irradiação com Nêutrons de 14 MeV"

NOME DO AUTOR: Helena Regina Rezende

Dissertação defendida e aprovada pela banca exa-
minadora, constituída dos Senhores:



Fis. Carlos Augusto Feu Alvim da Silva, Doutor



Prof. Geraldo A.C. Tupynambá, Doutor

Orientador:



Fis. Rose Mary Gomes do Prado Souza, Mestre

Area de Concentração: Tecnologia das Centrais Nucleares

Belo Horizonte, 05 de outubro de 1987
(Data de defesa de Tese)

Este trabalho foi realizado no Laboratório de Física de Reatores do Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear da NUCLEBRÁS e constituiu tarefa de seu Programa de Trabalho.

Aos meus pais

SINCEROS AGRADECIMENTOS

- à Rose Mary Gomes do Prado Souza pela orientação eficaz e dedicada, pelo apoio e incentivo que possibilitaram a execução deste trabalho;

- às chefias do Departamento de Tecnologia de Reatores, em especial a Myrian de Carvalho Paiano e João Augusto Leal Horta, pelas sugestões apresentadas;

- às Empresas Nucleares Brasileiras S.A. - NUCLE BRÁS e ao Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear - CDTN, que permitiram a realização deste trabalho em suas instalações;

- à Oficina Mecânica, em particular a Paschoal do Carmo Souza, pelas valiosas sugestões nos projetos e confecção dos dispositivos experimentais;

- a Ricardo Ferracini Corrêa e Márcio Prado Fernandes pela colaboração inestimável no trabalho experimental, operação do acelerador e coleta de dados;

- a João Bernardino S. Matos Pombo pela colaboração e sugestões apresentadas na redação;

- à Seção de Documentação Técnica pelo auxílio prestado na pesquisa e referências bibliográficas;

- à secretária Marcia Maria Costa de Castro pelo trabalho eficiente de datilografia;

- à CNEN - Pronuclear pela concessão da bolsa de estudo;

- a todos que direta ou indiretamente contribuíram para a realização deste trabalho.

SUMÁRIO

	<u>Pág.</u>
RESUMO	1
ABSTRACT	2
1. INTRODUÇÃO - OBJETIVO E ESTRUTURA DO TRABALHO	3
2. INTERPRETAÇÃO DO FENÔMENO DE NÊUTRONS ATRASADOS	5
2.1 Produção de Nêutrons Atrasados	5
2.2 Energia Média dos Nêutrons Atrasados	8
3. MÉTODOS NÃO DESTRUTIVOS DE ANÁLISE	13
3.1 Análise Passiva	13
3.2 Interrogação Ativa	14
3.2.1 Interrogação ativa por nêutrons	15
3.2.1.1 Método da resposta cinética de nêutrons atrasados	15
3.2.1.2 Método dos rendimentos de nêutrons atrasados (método dos "yields")	16
3.3 Abaixamento da Energia dos Nêutrons de Interrogação	19
4. MONTAGEM EXPERIMENTAL E INSTRUMENTAÇÃO	35
4.1 Detector de Nêutrons Térmicos - "Long Counter"	35
4.2 Medidas com o "Long Counter"	38
4.2.1 Região de funcionamento	38
4.2.2 Discriminação de raios gama	38
4.2.3 Tempo de resolução	39
4.2.4 Detector pontual	42
4.3 Arranjo Moderador	43
4.4 Acessórios	44
4.5 Gerador de Nêutrons	45
4.6 Sistema de Contagem	46

	<u>Pág.</u>
5. MÉTODO EXPERIMENTAL	63
5.1 Determinação de Enriquecimento	63
5.2 Determinação de Massa	67
5.3 Medidas	69
6. TRATAMENTO DE DADOS E RESULTADOS	73
6.1 Reta de Calibração em Enriquecimento	74
6.2 Reta de Calibração em Massa	76
6.3 Estimação por Intervalo dos Parâmetros a e b das Retas de Calibração	77
6.4 Limite de Detecção	78
6.4.1 Limite de detecção para enriquecimento	81
6.4.2 Limite de detecção para massa	81
6.5 Aplicação da Reta da Calibração em Massa	82
7. DISCUSSÃO E CONCLUSÕES	93
REFERENCIAS	97

LISTA DE TABELAS

Pág.

TABELA 2.1:	NÊUTRONS ATRASADOS PRODUZIDOS NA FISSÃO TÉRMICA DO U-235, ^{239}Pu E ^{233}U	9
TABELA 2.2:	NÊUTRONS ATRASADOS PRODUZIDOS NA FISSÃO RÁPIDA DO Th-232, U-235, U-238 e Pu-239	10
TABELA 2.3:	RENDIMENTO TOTAL DE NÊUTRONS ATRASADOS OBTIDOS POR IRRADIAÇÃO COM NÊUTRONS DE 14,9 MeV e 3,1 MeV	11
TABELA 2.4:	ENERGIA MÉDIA DOS NÊUTRONS ATRASADOS	11
TABELA 3.1:	CONFIGURAÇÃO DE MODERADORES (FONTE PRIMÁRIA DE NÊUTRONS - 14 MeV)	22
TABELA 3.2:	CONFIGURAÇÃO DE MODERADORES (FONTE DE NÊUTRONS DE 14 MeV)	22
TABELA 4.1:	ESPECTRO DIFERENCIAL - FONTE Am-Be	48
TABELA 4.2:	ESPECTRO DIFERENCIAL - FONTE Am-Be + ^{60}Co	48
TABELA 4.3:	ESPECTRO DIFERENCIAL - FONTE ^{60}Co	49
TABELA 4.4:	ESPECTRO INTEGRAL	47
TABELA 5.1:	PASTILHAS DE UO_2 UTILIZADAS NAS MEDIDAS DE ENRIQUECIMENTO	71
TABELA 5.2:	PASTILHAS DE UO_2 UTILIZADAS NAS MEDIDAS DE MASSA	71
TABELA 6.1:	DADOS EXPERIMENTAIS OBTIDOS PARA MEDIDAS DE ENRIQUECIMENTO	83
TABELA 6.2:	DADOS EXPERIMENTAIS OBTIDOS PARA MEDIDAS DE MASSA	85
TABELA 6.3:	RESULTADO FINAL DA RESPOSTA DE NÊUTRONS ATRASADOS EM FUNÇÃO DO ENRIQUECIMENTO DAS PASTILHAS DE UO_2	86
TABELA 6.4:	RESULTADO FINAL DA RESPOSTA DE NÊUTRONS ATRASADOS EM FUNÇÃO DAS MASSAS DAS PASTILHAS DE UO_2 , COM ENRIQUECIMENTOS DE 3,38%	86
TABELA 6.5:	COMPARAÇÃO ENTRE OS VALORES DOS ENRIQUECIMENTOS DECLARADOS DAS PASTILHAS DE UO_2 E OS CALCULADOS	87
TABELA 6.6:	COMPARAÇÃO ENTRE OS VALORES REAIS E OS CALCULADOS DAS MASSAS DAS PASTILHAS DE UO_2	87

LISTA DE FIGURAS

	<u>Pág.</u>
FIGURA 2.1: DIAGRAMA ESQUEMÁTICO DA EMISSÃO DE NÊUTRONS ATRASADOS	12
FIGURA 3.1: ESQUEMA DE IRRADIAÇÃO E CONTAGEM NO MÉTODO DOS RENDIMENTOS	23
FIGURA 3.2: VARIACÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE FISSÃO DO U-233 COM A ENERGIA DO NÊUTRON INCIDENTE	24
FIGURA 3.3: VARIACÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE FISSÃO DO U-235 COM A ENERGIA DO NÊUTRON INCIDENTE	26
FIGURA 3.4: VARIACÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE FISSÃO DO U-238 COM A ENERGIA DO NÊUTRON INCIDENTE	28
FIGURA 3.5: VARIACÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE FISSÃO DO Pu-238 COM A ENERGIA DO NÊUTRON INCIDENTE	29
FIGURA 3.6: VARIACÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE FISSÃO DO Pu-239 COM A ENERGIA DO NÊUTRON INCIDENTE	30
FIGURA 3.7: VARIACÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE FISSÃO DO Th-232 COM A ENERGIA DO NÊUTRON INCIDENTE	33
FIGURA 3.8: ESPECTROS RESULTANTES DE MODERADORES "1/E"	34
FIGURA 4.1: DISPOSIÇÃO DOS CONTADORES BF ₃ NO "LONG COUNTER"	50
FIGURA 4.2: DETALHES DA FURAÇÃO INTERNA DO BLOCO MODERADOR DO "LONG COUNTER"	51
FIGURA 4.3: VISTA FRONTAL DA FURAÇÃO DO "LONG COUNTER"	52
FIGURA 4.4: VISTA FRONTAL DO "LONG COUNTER" COM O ANEL DE PARAFINA/POLIETILENO	52
FIGURA 4.5: "LONG COUNTER" MOSTRADO EM DETALHES	53
FIGURA 4.6: CURVA CARACTERÍSTICA DO DETECTOR BF ₃	54
FIGURA 4.7: ESPECTRO DIFERENCIAL - DISCRIMINAÇÃO GAMA	55
FIGURA 4.8: CENTRO EFETIVO DE CONTAGEM DO "LONG COUNTER"	56
FIGURA 4.9: VISTA FRONTAL DO MODERADOR DE NÊUTRONS CONSTITUÍDO DE CHUMBO E PARAFINA/POLIETILENO	57
FIGURA 4.10: ESPECIFICAÇÃO DAS MEDIDAS DO MODERADOR DE CHUMBO	58
FIGURA 4.11: DETALHE DA CASCA CILÍNDRICA DO MODERADOR DE PARAFINA/POLIETILENO, COM MACHO E FÊMEA PARA ENCAIXE	59
FIGURA 4.12: VISTA DO CONJUNTO MODERADOR E "LONG COUNTER"	59
FIGURA 4.13: VISTA DO ARRANJO EXPERIMENTAL	60

	<u>Pág</u>
FIGURA 4.14: GERADOR DE NÊUTRONS KAMAN TIPO A-1254	61
FIGURA 4.15: DIAGRAMA DE BLOCO DO SISTEMA DE CONTAGEM	62
FIGURA 5.1 : VARIAÇÃO DO ERRO NA ANÁLISE ISOTÓPICA EM FUNÇÃO DA RAZÃO DE DISCRIMINAÇÃO	72
FIGURA 6.1 . PULSO DE NÊUTRONS ACUMULADO NUM TEMPO DE 80 MIN PARA UM CONJUNTO DE PASTILHAS DE UO ₂ NATURAL	88
FIGURA 6.2 : RESPOSTA DOS NÊUTRONS ACUMULADA NUM TEMPO DE 80 MIN PARA UM CONJUNTO DE PASTILHAS DE UO ₂ NATURAL-DETERMINAÇÃO DO TEMPO DE ESPERA	89
FIGURA 6.3 : RETA DE CALIBRAÇÃO EM ENRIQUECIMENTO EM FUNÇÃO DA RESPOSTA DE NÊUTRONS ATRASADOS POR UNIDADE DE MASSA	90
FIGURA 6.4 : RETA DE CALIBRAÇÃO EM MASSA	91
FIGURA 6.5 : RETA DE CALIBRAÇÃO EM ENRIQUECIMENTO EM FUNÇÃO DA RESPOSTA DE NÊUTRONS ATRASADOS PARA PASTILHAS COM M = 53,3 g	92

RESUMO

Desenvolve-se uma técnica não destrutiva na determinação de enriquecimento de urânio em amostras de dióxido de urânio (UO_2), utilizando a propriedade da variação da seção de choque de fissão, para um dado nuclídeo, com a energia do nêutron incidente. O método é de interrogação ativa, com nêutrons de um acelerador (14 MeV) operando em regime pulsado. A energia de irradiação é reduzida, para discriminação entre U-235 e U-238, através de um arranjo moderador que consiste de dois cilindros concêntricos de chumbo e parafina/polietileno, com 11 e 4 cm de espessura, respectivamente. Os nêutrons atrasados das fissões são registrados por um detector de nêutrons térmicos do tipo "long counter", nos intervalos entre pulsos do acelerador. Constroem-se, com padrões, retas de calibração em enriquecimento e massa total, em função da resposta de nêutrons atrasados, que permitem determinar essas grandezas para uma amostra do mesmo tipo, irradiada nas mesmas condições. O limite de detecção para enriquecimento, obtido a partir da distribuição de Student e com um nível de confiança de 95%, é estimado em 0,33%, e a massa mínima detectável é estimada em 4,4 g.

ABSTRACT

A non-destructive technique for the determination of uranium in UO_2 samples was developed, making use of the change in the fission cross section of a nuclide with the neutron energy. The active interrogation method was used by irradiating the samples with pulsed 14 MeV neutrons and further detection of delayed fission neutrons. In order to discriminate $U-238$ from $U-235$ the neutron energy was tailored by means of two concentric cylinders of lead and paraffin/poliethylene, 11 and 4 cm thick. Between neutron pulses, delayed neutrons from fission were detected by a long counter built with five BF_3 proportional counters. Calibration curves for enrichment and total mass versus delayed neutron response were obtained using available UO_2 pellets of known enrichment. Enrichment detection limit, obtained with 95% confidence level by the Student distribution was estimated to be 0.33%. The minimal detectable mass was estimated to be 4.4 g.

1. INTRODUÇÃO - OBJETIVO E ESTRUTURA DO TRABALHO

O presente trabalho foi realizado no Laboratório de Física de Reatores (LABFRE.CN) do Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear (CDTN) da NUCLEBRÁS.

Nesse laboratório realizam-se medidas de teores isotópicos em U-235 pelo método passivo de espectrometria gamma, em amostras de combustível nuclear (pastilhas de UO_2).

Este trabalho visa a implementação, no laboratório, do método de análise por interrogação ativa com nêutrons, detectando-se os nêutrons atrasados resultantes das fissões induzidas nas amostras. A técnica empregada consiste na produção de nêutrons atrasados no material por ativação, utilizando uma fonte de nêutrons rápidos (14 MeV) e promovendo a redução de sua energia através do uso de moderadores adequados. Dessa forma, consegue-se produzir uma porcentagem maior de nêutrons com energia abaixo do limiar de fissão do nuclídeo fértil, aumentando a discriminação entre material físsil e fértil presentes numa mesma amostra.

O trabalho experimental se constituiu de:

- estudos preliminares para escolha e adaptação de materiais moderadores, dentre aqueles disponíveis no CDTN, para execução de detector de nêutrons e sistema moderador;

- projeto de um detector do tipo "long counter" e de um arranjo moderador, dispositivos esses confeccionados pela Oficina Mecânica do CDTN;

- medidas preliminares para testes das características básicas de funcionamento do "long counter", para

determinar as condições de operação do mesmo;

- análise, pela técnica descrita, de conjuntos de pastilhas de UO_2 , natural e ligeiramente enriquecidas no isotópo U-235.

Na presente dissertação, apresenta-se inicialmente uma explanação resumida sobre a teoria envolvida na emissão de nêutrons atrasados e sobre os principais métodos de análise não destrutiva de material nuclear. A seguir, descreve-se o processo de interrogação e contagem dos nêutrons atrasados, bem como os dispositivos construídos para moderação (moderador $Pb/(CH_2)_n + CH_2$), detecção ("long counter") e acessórios necessários ao estabelecimento da geometria de irradiação e contagem adequadas.

Da análise das respostas de nêutrons atrasados originários das fissões induzidas nas pastilhas de UO_2 , usadas como padrões e com diversos enriquecimentos, constrói-se a reta calibração em enriquecimento; e utilizando padrões com massas diferentes, mas mesmo enriquecimento (3,38%), constrói-se a reta de calibração em massa.

As retas de calibração obtidas permitem determinar o enriquecimento e massa de uma amostra do mesmo tipo, irradiada nas mesmas condições dos padrões.

A partir da distribuição de Student e com um nível de confiança de 95%, calculam-se os intervalos de confiança dos parâmetros das retas de calibração ajustadas e os limites de detecção para determinação de enriquecimento e massa de pastilhas de UO_2 .

Da vasta bibliografia consultada, citam-se as principais no desenvolver deste trabalho.

2. INTERPRETAÇÃO DO FENÔMENO DE NÊUTRONS ATRASADOS

2.1 Produção de Nêutrons Atrasados

Em 1939 Bohr e Wheeler [1] propuseram uma explicação teórica para o fenômeno de nêutrons atrasados emitidos após a fissão nuclear. Segundo eles, uma proporção de núclídeos, ricos em nêutrons, têm energias de decaimento beta suficientemente altas para popularem estados excitados nos núcleos filhos - acima das energias de ligação dos núclídeos. Nesse caso, ocorreria a emissão de nêutrons atrasados, cuja atividade tem a meia-vida de decaimento beta do núclídeo precursor.

Sabe-se que no mínimo 38 dos 500 núclídeos formados na fissão têm essa propriedade de emissão de nêutrons atrasados [2].

Através de separação química é possível a identificação de vários precursores de nêutrons atrasados, ou seja, fragmentos de fissão que através de decaimento beta originam núcleos que emitem nêutrons. Para descrição mais precisa do processo, seria necessário levar em conta muitos grupos de nêutrons atrasados, divididos de acordo com suas meias-vidas. Porém, para estudos cinéticos, a divisão em seis grupos tem demonstrado ser uma boa aproximação para cálculos [3].

A distribuição dos produtos de fissão depende do núcleo fissionado e da energia do nêutron induzindo a fissão. Então, a distribuição dos precursores de nêutrons atrasados,

tanto quanto o rendimento ("yield") de nêutrons atrasados e meias-vidas médias dos grupos, são funções do núcleo fissionado e da energia dos nêutrons de interrogação. As Tabelas 2.1 e 2.2 mostram os rendimentos de nêutrons atrasados, para nêutrons de irradiação com energia térmica e com o espectro de fissão, contendo as respectivas meias-vidas, constantes de desintegração e frações de nêutrons atrasados (β_i) de cada grupo. Na Tabela 2.3, tem-se o rendimento (total) de nêutrons atrasados para duas energias de irradiação e para cinco nuclídeos de fissão. Por definição, o rendimento ("yield") e a fração de nêutrons atrasados (β_i) são iguais, respectivamente, aos números de nêutrons atrasados por fissão e por nêutron de fissão.

De acordo com as tabelas citadas, nota-se que embora os períodos⁽¹⁾ dos seis grupos sejam similares nos principais nuclídeos de fissão, existem diferenças marcantes nas abundâncias relativas⁽²⁾ dos grupos. Ocorrem também diferenças nos espectros dos nêutrons atrasados. Essas diferenças são correlacionadas com a variação conhecida do comprimento médio da cadeia de fissão, de um nuclídeo fissionável para outro. Então, os comprimentos médios da cadeia de decaimento beta mais longos, em fissões de nuclídeos com uma razão alta de nêutrons para prótons (ex. U-238 e Th-232), contribuem para o aumento da produção de certos precursores de nêutrons atrasados (especialmente de período curto), que apresentam contribuição des-

(1) Período é o termo usado para designar meia-vida do grupo de nêutrons atrasados.

(2) Abundância relativa = $\beta_i / \sum \beta_i$

prezível em nuclídeos de fissão com menores comprimentos de cadeias de fissão, tais como U-233 e Pu-239. Esse efeito do comprimento da cadeia é mais aparente entre os grupos com pe ríodo curto. O aumento dos comprimentos da cadeia de fissão na sequência: U-233, Pu-239, Pu-240, U-235, Th-232 e U-238, se relaciona diretamente com o aumento da produção do quinto e sexto grupos de períodos mais curtos, que crescem nessa mes ma sequência [6]. Esses aspectos ficam evidenciados nas tabe las apresentadas.

De acordo com dados experimentais de vários au-
tores, é aparente que a produção total de nêutrons atrasados é aproximadamente independente da energia dos nêutrons induzindo a fissão, para energias abaixo de 1,8 MeV, apresentando um decréscimo para energias de 2 a 14 MeV [7]. Desses experimentos foram estabelecidas as seguintes conclusões [8]:

1. os períodos individuais dos grupos, para os vários nuclídeos (fissão rápida e térmica) são concordantes, com pequenas perturbações;

2. a variação entre os rendimentos de nêutrons atrasados de grupos individuais é muito maior do que a varia ção entre os períodos;

3. a produção total de nêutrons atrasados aumen ta com o número de massa para um dado elemento e geralmente decresce com o número atômico; o aumento da produção total com o número de massa é devido principalmente a uma contri buição maior dos grupos de período curto;

4. a produção total de nêutrons atrasados não se altera essencialmente da fissão térmica para fissão rápida.

2.2 Energia Média dos Nêutrons Atrasados

A energia média dos nêutrons atrasados dos vários nuclídeos de fissão pode ser estimada quando se considera um conjunto mais provável de precursores.

A diferença entre Q_{β} , a energia de decaimento beta de um precursor de nêutrons atrasados, e B_n , a energia de ligação do nêutron de seu emissor associado, representa a energia máxima ou energia de "end-point" do espectro resultante dos nêutrons atrasados. Ver esquema da Figura 2.1.

A energia média do espectro é uma fração fixa de sua energia máxima $Q_{\beta} - B_n$, conforme mostrado na Tabela 2.4.

As energias médias de nêutrons atrasados apresentam uma correspondência aos comprimentos de cadeia de fissão $Z_A - Z_P$, para cada nuclídeo de fissão. Cadeias de fissão maiores correspondem a um aumento na abundância relativa dos precursores de período curto, que são emissores beta altamente instáveis, apresentando as maiores energias de decaimento β e geralmente os maiores excessos de energia $Q_{\beta} - B_n$.

Essas características individuais na produção de nêutrons atrasados, bem como os espectros diferentes no decaimento de nêutrons atrasados dos diversos nuclídeos de fissão, evidenciam a possibilidade de análise não destrutiva em misturas de material fissionável e não fissionável. Tais métodos de análise são baseados no aproveitamento dessas diferenças como forma de detecção, identificação e análise desses nuclídeos.

TABELA 2.1

NEUTRONS ATRASADOS PRODUZIDOS NA FISSÃO TÉRMICA DO ^{235}U ,
 ^{239}Pu E ^{233}U [4]

^{235}U

Grupo	Meia-vida (s)	Constante de decaimento $\lambda_i (\text{s})^{-1}$	Rendimento (nêutrons por fissão)	Fração β_i
1	55,72	0,0124	0,00052	0,000215
2	22,72	0,0305	0,00346	0,001424
3	6,22	0,111	0,00310	0,001274
4	2,30	0,301	0,00624	0,002568
5	0,610	1,14	0,00182	0,000748
6	0,230	3,01	0,00066	0,000273

Produção total = 0,0158

^{239}Pu

1	54,28	0,0128	0,00021	0,000073
2	23,04	0,0301	0,00182	0,000626
3	5,60	0,124	0,00129	0,000443
4	2,13	0,325	0,00199	0,000685
5	0,618	1,12	0,00052	0,000181
6	0,258	2,69	0,00027	0,000092

Produção total = 0,0061

^{233}U

1	55,00	0,0126	0,00057	0,000224
2	20,57	0,0337	0,00197	0,000777
3	5,00	0,139	0,00166	0,000655
4	2,13	0,325	0,00184	0,000723
5	0,615	1,13	0,00034	0,000133
6	0,277	2,50	0,00022	0,000088

Produção total = 0,0066

TABELA 2.2

NEUTRONS ATRASADOS PRODUZIDOS NA FISSÃO RÁPIDA DO ^{232}Th ,
 ^{235}U , ^{238}U E ^{239}Pu [4]

^{232}Th				
Grupo	Meia-vida (s)	Constante de decaimento $\lambda_i(\text{s})^{-1}$	Rendimento (nêutrons por fissão)	Fracão β_i
1	56,03	0,0124	0,00169	0,000690
2	20,75	0,0334	0,00744	0,003045
3	5,74	0,121	0,00769	0,003147
4	2,16	0,321	0,02212	0,009054
5	0,571	1,21	0,00853	0,003492
6	0,211	3,29	0,00213	0,000873
Produção total = 0,0496				
^{235}U				
1	54,51	0,0127	0,00063	0,000243
2	21,84	0,0317	0,00351	0,001363
3	6,00	0,115	0,00310	0,001203
4	2,23	0,311	0,00672	0,002605
5	0,496	1,40	0,00211	0,000819
6	0,179	3,87	0,00043	0,000166
Produção total = 0,0165				
^{238}U				
1	52,38	0,0132	0,00054	0,000192
2	21,58	0,0321	0,00564	0,002028
3	5,00	0,139	0,00667	0,002393
4	1,93	0,358	0,01599	0,005742
5	0,490	1,41	0,00927	0,003330
6	0,172	4,02	0,00309	0,001110
Produção total = 0,0412				
^{239}Pu				
1	53,75	0,0129	0,00024	0,000076
2	22,29	0,0311	0,00176	0,000560
3	5,19	0,134	0,00136	0,000432
4	2,09	0,331	0,00207	0,000656
5	0,549	1,26	0,00065	0,000206
6	0,216	3,21	0,00022	0,000070
Produção total = 0,0063				

TABELA 2.3

RENDIMENTO TOTAL DE NÊUTRONS ATRASADOS OBTIDOS POR IRRADIAÇÃO COM NÊUTRONS DE 14,9 MeV E 3,1 MeV [5]

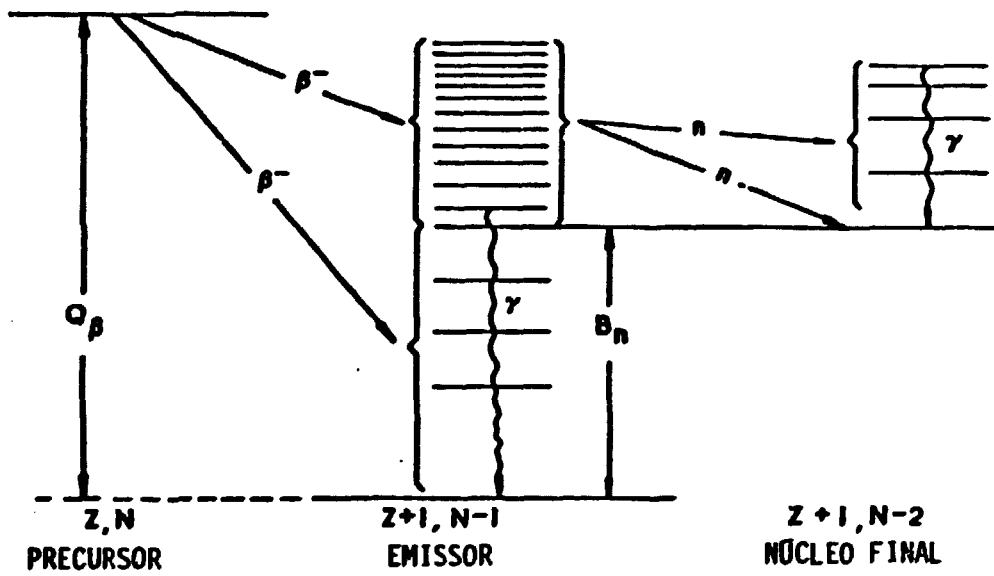
Isótopos	RENDIMENTO TOTAL	
	14,9 MeV	3,1 MeV
²³⁹ Pu	0,0043	0,0069
²³³ U	0,0043	0,0077
²³⁵ U	0,0095	0,018
²³⁸ U	0,0286	0,049
²³² Th	0,031	0,060

TABELA 2.4

ENERGIA MÉDIA DOS NÊUTRONS ATRASADOS [4]

Grupo Precursor Considerado	1	2	3	4	5	6
	⁸⁷ Br	¹³⁷ I; ⁸⁹ Br	⁸⁹ Br; ¹³⁸ I	⁹⁰ Br; ¹³⁹ I ¹⁴⁴ Cs	¹⁴⁰ I	⁹³ Br
$Q_{\beta} - B_n$ (MeV)	2,04	2,50;3,05	4,5;3,9	6,2;4,5 3,0	5,2	9,1
Nuclídeos de fissão	²³³ U	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²³⁵ U	²³² Th	²³⁸ U
$Z_A - \bar{z}_p$ médio	3,6	3,7	3,8	4,0	4,4	4,5
Energia média (MeV)	0,39	0,40	0,42	0,43	0,49	0,49

FIGURA 2.1
DIAGRAMA ESQUEMÁTICO DA EMISSÃO DE NEUTRONS
ATRASADOS [2]



3. MÉTODOS NÃO DESTRUTIVOS DE ANÁLISE

Os métodos não destrutivos de análise qualitativa e quantitativa de materiais, contendo elementos fissionáveis e não fissionáveis, podem ser divididos em dois tipos principais:

- análise passiva
- interrogação ativa.

3.1 Análise Passiva

Métodos de análise passiva incluem observações de nêutrons provenientes de fissões espontâneas, que ocorrem em alguns nuclídeos físséis (Pu-239, Pu-240, U-235), ou de reações (α, n) que ocorrem por exemplo no Pu-240 ou em elementos leves mais Pu-239; e raios gama emitidos seguindo o decaimento α como no Pu-239 e U-235 [9].

Na análise passiva de amostras de Pu-240 com elementos leves é necessário fazer-se a separação dos nêutrons provenientes de reações (α, n), nos elementos leves, que atuam como interferência nas medidas, dos nêutrons resultantes da fissão. Isso é feito através da detecção de dois nêutrons dentro de um dado intervalo de tempo de coincidência (sistema de detecção de nêutrons em coincidência), medindo então a taxa de fissão espontânea da amostra. Uma vez que a taxa de fissão é essencialmente proporcional ao conteúdo de Pu-240, pode-se determinar a quantidade total de plutônio, desde que sejam

conhecidas a sua composição isotópica e a composição química da amostra [10].

Já o método passivo realizado através de observações de raios gama tem, muitas vezes, sua aplicação limitada devido à seguinte causa: as linhas gama com intensidade suficiente para aplicação de análise passiva têm, tipicamente, energias de poucas centenas de keV ou menos, limitando sua penetrabilidade através de materiais densos. Com isso, os isótopos fissionáveis não têm sinais passivos adequados. Consequentemente, a espectrometria gama de amostras contendo plutônio ou U-235 tem aplicação satisfatória, desde que sejam analisados materiais de baixa densidade ou de geometria pouco espessa.

Outra limitação dos métodos passivos aqui citados é a análise de materiais altamente radioativos (por exemplo elemento combustível queimado), devido ao alto "background" de raios gama.

3.2 Interrogação Ativa

A interrogação ativa utiliza uma fonte externa de nêutrons ou fótons altamente penetrantes, para induzir fissões no material sob investigação.

A análise quantitativa é baseada em observações de um ou mais tipos de emissões subsequentes às fissões, sejam nêutrons atrasados, nêutrons prontos ou raios gama. O regime de nêutrons atrasados tem a vantagem da completa separa-

ção, no tempo, da resposta em relação ao pulso de interrogação, permitindo o uso de equipamento mais simples na contagem [10].

3.2.1 Interrogação ativa por nêutrons

As fontes de nêutrons são mais adequadas à interrogação ativa devido às suas altas penetrabilidades, seus limiares de fissão bem definidos para discriminação isotópica e ao fato de serem compactas. As fontes de nêutrons de interrogação geralmente usadas são os aceleradores de íons positivos e tubos selados (geradores de nêutrons de 14 MeV) e as fontes radioativas (Sb-Be, Cf-252, Ra-Be e Am-Li).

Dois métodos de análise não destrutiva de nuclídeos físséis, baseados nas diferenças dos rendimentos de nêutrons atrasados ("yields") e na resposta cinética (dependente do tempo) dos nêutrons atrasados, oferecem meios de análise em amostras de vários tamanhos e configurações [11].

3.2.1.1 Método da resposta cinética de nêutrons atrasados

O método da resposta cinética, para determinar a bundância isotópica relativa, consiste em irradiar uma amostra de composição desconhecida com nêutrons rápidos, observan

do a resposta de nêutrons atrasados em função do tempo.

A análise do decaimento de nêutrons atrasados é realizada com base nos seis grupos de precursores de nêutrons atrasados. Conforme descrito no Capítulo 2 existem diferenças notáveis nas abundâncias relativas, rendimentos de nêutrons a trasados dos grupos e nos espectros de nêutrons atrasados de cada nuclídeo que sofre fissão. Essas diferenças permitem a identificação e análise de nuclídeos individuais de fissão em amostras de composição desconhecida.

3.2.1.2 Método dos rendimentos de nêutrons atrasados (método dos "yields")

Nesse método de análise, as amostras são irradiadas com nêutrons provenientes de um gerador de nêutrons operando em regime pulsado, com pulsos de curta duração (< 100 ms). Para maior eficiência de contagem, o feixe do acelerador deve ser modulado com um ciclo útil ("duty cycle": relação entre a largura e o período do pulso) menor que 50% e com um período menor do que a meia-vida mais curta dos precursores de nêutrons atrasados.

A irradiação deve se prolongar por um tempo muito maior do que a meia-vida de qualquer um desses precursores, para que a produção de nêutrons atrasados, entre os pulsos do acelerador, alcance um valor de equilíbrio. São após ter sido

alcançado esse equilíbrio é que deve ser iniciada a contagem de nêutrons atrasados, por meio de um detector do tipo "long counter", operando em anti-sincronismo com o acelerador. O número de nêutrons atrasados detectados num ciclo é aproximadamente a metade do número total de nêutrons atrasados emitidos naquele ciclo [5]. A Figura 3.1 mostra graficamente as seqüências de tempo necessárias para essa técnica [12].

Considerando que os nêutrons atrasados são emitidos por um grupo de precursores decaindo exponencialmente, a contagem registrada pelo "long counter" durante um ciclo é dada por [5]:

$$\int_{t_c}^{t_p} \dot{N} dt = \epsilon \left(\frac{n_d}{F} \right) (\dot{F} t_w)^m \sum_{i=1}^m a_i \left[\frac{\exp(\lambda_i t_w) - 1}{\lambda_i t_w} \right] \times \left[\frac{\exp(-\lambda_i t_c) - \exp(-\lambda_i t_p)}{[1 - \exp(-\lambda_i t_p)]} \right] \quad (3-1)$$

onde:

\dot{N} = taxa de contagem de nêutrons atrasados no detector

t_w = largura do pulso do acelerador

t_p = período do pulso do acelerador

t_c = tempo inicial de contagem

ϵ = eficiência do detector de nêutrons

$\frac{n_d}{F}$ = produção de nêutrons atrasados, em nêutrons/fissão

\dot{F} = taxa de fissão na amostra quando o acelerador está pulsando

m = número de grupos precursores de nêutrons atrasados

a_i e λ_i = abundância relativa e constante de decaimento do i -ésimo precursor de nêutrons atrasados.

No limite $\lambda_i t_p \ll 1$, a equação (3-1) se reduz a:

$$\int_{t_c}^{t_p} \dot{N} dt = \epsilon \left(\frac{n_d}{F} \right) (\dot{F} t_w) \left(\frac{t_p - t_c}{t_p} \right) \quad (3-2)$$

Portanto, a taxa de contagem de nêutrons atrasados por ciclo é igual ao produto da eficiência do detector, do rendimento total de nêutrons atrasados, do número de fissões por ciclo e do ciclo útil de contagem.

A taxa mais alta de dados acumulados ocorre se:

$$t_c = t_w = t_p/2$$

sendo t_c medido a partir do início de um pulso do acelerador.

O tempo de espera, que é o intervalo de tempo entre o fim do pulso do acelerador e o início do tempo de contagem, permite ao detector de nêutrons recuperar-se dos efeitos dos nêutrons da fonte e o decaimento dos nêutrons de retorno.

Dessa forma, a taxa de contagem de nêutrons atrasados medida é proporcional à produção de nêutrons atrasados integrada no tempo e, por sua vez, à quantidade de material fissionável presente na amostra. Comparando esse valor medido com a produção de um padrão de massa ou enriquecimento conhecidos e usando um monitor de fluxo, pode-se determinar a quantidade absoluta de material fissionável.

A técnica da produção de nêutrons atrasados tem sido utilizada na análise de tipos diferentes de materiais fissionáveis, variando em tipo, composição e geometria. As misturas de combustíveis mais estudadas são: urânio enriquecido, típico de reatores de pesquisa; óxidos de plutônio-urânio, do tipo usado em reatores "breeders" rápidos; U-233-Th-232, dos reatores "breeders" térmicos; elementos queimados de reatores; e conteúdos de resíduos de diversos tamanhos, desde pequenos frascos até um galão.

3.3 Abaixamento da Energia dos Nêutrons de Interrogação

Medidas isotópicas podem ser feitas combinando o método da resposta cinética ou dos rendimentos de nêutrons a atrasados (item 3.2.1) com irradiações usando espectros diferentes de energia escolhidos, levando-se em conta as diferenças nas seções de choque de fissão dos isótopos físséis presentes na amostra, permitindo assim a discriminação entre núclídeos físséis (U-233, U-235, Pu-239) dos núclídeos férteis (U-238, Th-232).

As Figuras 3.2 a 3.7 mostram os comportamentos das seções de choque de fissão de diversos núclídeos numa extensa faixa de energia dos nêutrons incidentes [13].

Na prática, diferentes espectros de energia de nêutrons de interrogação podem ser obtidos circundando o alvo de um gerador de nêutrons de 14 MeV com várias combinações

de materiais moderadores. Essa é a base do método chamado "Spectrum Tailoring" [5,10,11], que consiste em reduzir a energia da fonte primária para valores abaixo do limiar de fissão do nuclídeo fértil presente na amostra. Dessa forma consegue-se aumentar a resposta do nuclídeo físsil (menos abundante) em relação ao fértil (mais abundante).

O programa de pesquisa em materiais nucleares sob salvaguarda, do Laboratório Nacional de Los Alamos(USA), inclui detalhados cálculos computacionais de arranjos moderadores, projetados para acentuar várias partes dos espectros de moderação dos nêutrons [14,15,16]. Foram feitos cálculos, em uma dimensão, com uma fonte de nêutrons de 14 MeV no centro de arranjos moderadores, consistindo de camadas esféricas concêntricas de vários materiais, com raios variados. O objetivo era moderar os nêutrons da fonte para produzir um espectro seguindo aproximadamente a lei $1/E$ e um espectro rápido.

O critério para um bom moderador " $1/E$ " é a maximização da fração de fuga de nêutrons com energia menor que o limiar de fissão do U-238 ($\sim 1,4$ MeV) e simultânea maximização da fração de nêutrons com energia menor que 0,1 MeV. Por outro lado, um moderador "rápido" deve ter um número máximo de nêutrons com $(0,1 < E_n < 1,4)$ MeV [17].

Os materiais dos sistemas analisados, pelos estudos citados acima, são principalmente tungstênio, chumbo, grafite, berílio e polietileno. A Tabela 3.1 mostra os resultados dos cálculos de dois tipos de moderadores " $1/E$ ", sendo o primeiro construído de chumbo, grafite e polietile-

no e o outro de tungstênio, berílio e polietileno [14]. Um moderador de polietileno, com 10 cm de raio, é incluído para comparação. A fina camada de polietileno, circundando todos os moderadores "1/E", é necessária para aumentar a intensidade do espectro nas energias mais baixas.

Na Tabela 3-2 encontram-se as energias médias dos nêutrons que saem dos diversos arranjos moderadores listados, as respectivas razões de fissões (U-235/U-238), importantes em análises isotópicas contendo U-238 e pequenas quantidades de U-235, bem como a fuga total e a fração de nêutrons com energia menor que o limiar de fissão do U-238.

A notação, por exemplo, Pb/C/CH₂-7,5/7,5/2,5 indica um núcleo de chumbo com 7,5 cm de raio, circundado por uma camada esférica de 7,5 cm de espessura de grafite e circundado por uma camada de 2,5 cm de espessura de polietileno.

Pode ser notado, nessas tabelas, que para todos os moderadores, com exceção do CH₂-10, a fuga total é maior que 100%. Essa aparente multiplicação de nêutrons é devido aos valores elevados da seção de choque (n,2n), para energias próximas de 14 MeV, nos materiais chumbo e tungstênio.

Outra característica notada é que os moderadores "1/E" apresentam uma boa discriminação entre U-235 e U-238 ; isso se deve principalmente à elevada seção de choque de fissão do U-235 para nêutrons térmicos, que são produzidos na camada de polietileno.

Na Figura 3.8 são vistos espectros de saída dos conjuntos moderadores "1/E", mostrando a distribuição da energia normalizada para nêutrons de uma única fonte [17].

TABELA 3.1
 CONFIGURAÇÃO DE MODERADORES (FONTE PRIMÁRIA DE NEUTRONS -
 14 MeV) [14]

Configuração do moderador e espessura (cm)	Fuga total (fração)	Fração de nêutrons com energia < 0,1 MeV	Fração de nêutrons com energia < $E_{th}^{238}\text{U}$
CH ₂ -10	89,9%	9,9%	16,8%
Pb-12	162,9%	0,6%	51,7%
W-6,5	143,6%	7,8%	76,1%
Pb/C/CH ₂ -12/10/ 2,5	141,5%	61,7%	82,5%
W/Be/CH ₂ -8/2,5/ 2,5	114,6%	61,8%	80,1%

* $E_{th}^{238}\text{U}$ - Energia de limiar de fissão do ^{238}U (= 1,4 MeV)

TABELA 3.2
 CONFIGURAÇÃO DE MODERADORES (FONTE DE NEUTRONS DE 14 MeV) [15]

Configuração do moderador e espessura (cm)	Fuga total (fração)	Energia média (MeV)	Fração de nêutrons com $E_n < E_{th}^{238}\text{U}$	Razão de fissão $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$
Pb-7,5	146,8%	1,8	39,4%	3,04
Pb-10	157,0%	1,8	47,5%	3,58
W-7,5	133,6%	0,5	76,1%	6,14
W/C-7,5/7,5	124,1%	0,2	79,1%	12,6
Pb/C/CH ₂ -7,5/ 7,5/2,5	140,2%	0,5	65,9%	312
Pb/C/CH ₂ +Cd*- 7,5/7,5/2,5	116,6%	1,1	59,0%	171

* A camada de cádmio tem 0,76mm de espessura

FIGURA 3.1
ESQUEMA DE IRRADIAÇÃO E CONTAGEM NO MÉTODO
DOS RENDIMENTOS

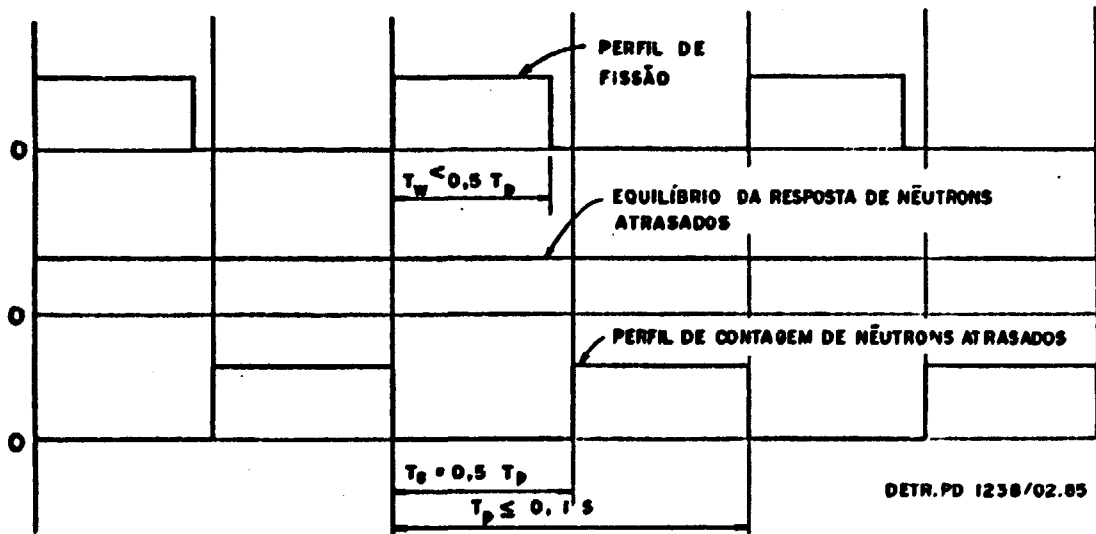


FIGURA 3.2

VARIAÇÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE FISSÃO DO U-233 COM A ENERGIA DO NEUTRON INCIDENTE [13]

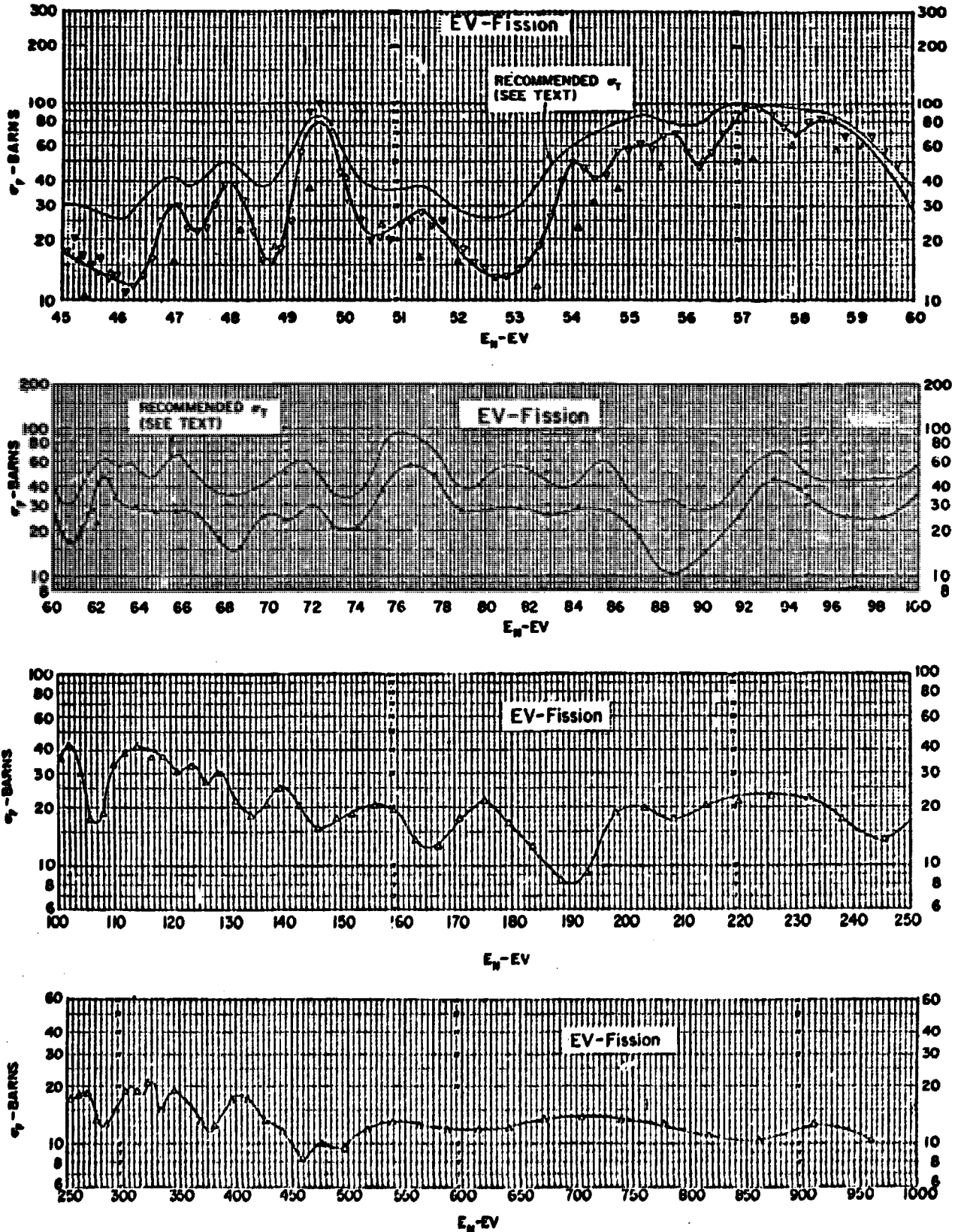


FIGURA 3.2
(CONTINUAÇÃO) [13]

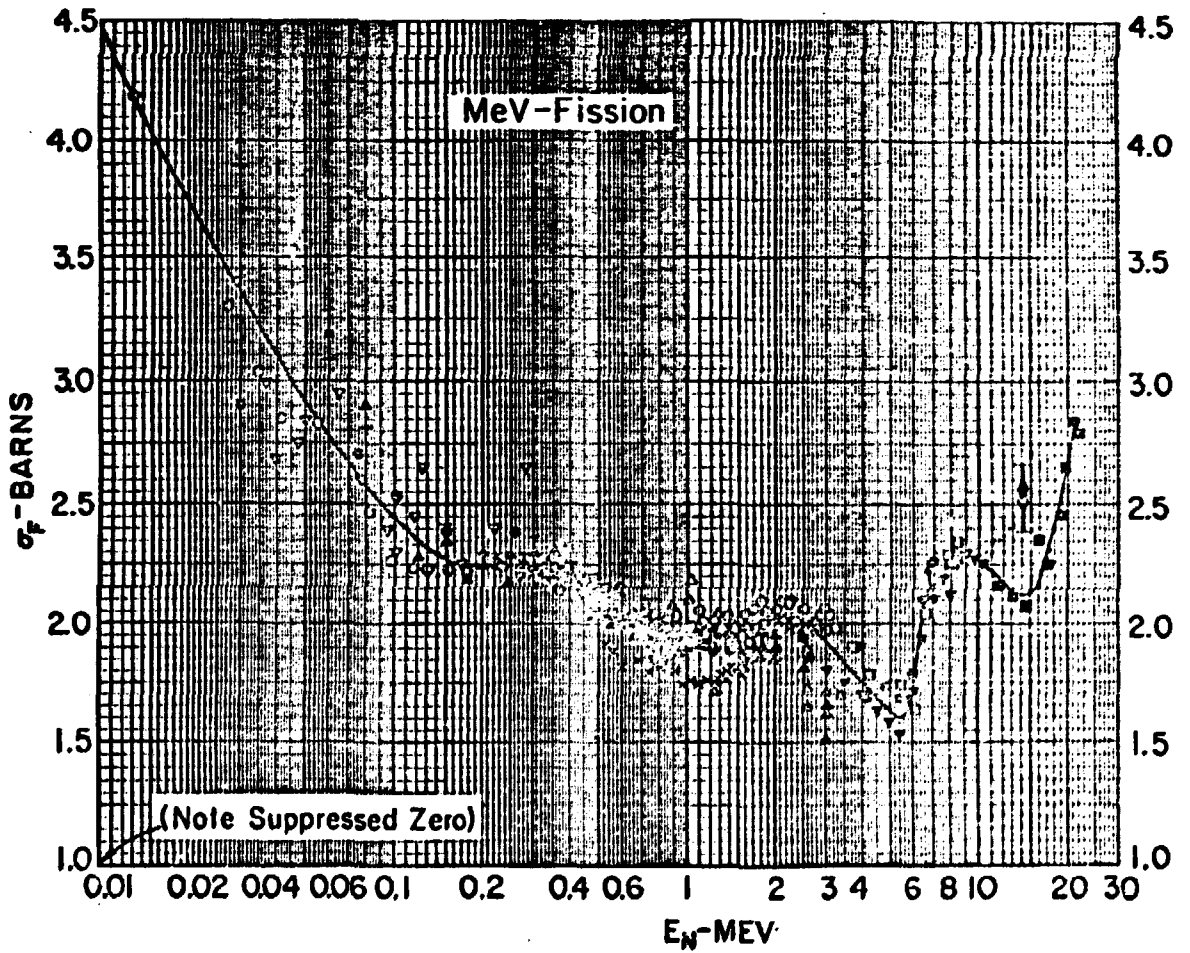


FIGURA 3.3

VARIAÇÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE FISSÃO DO U-235 COM
A ENERGIA DO NÉUTRON INCIDENTE [13]

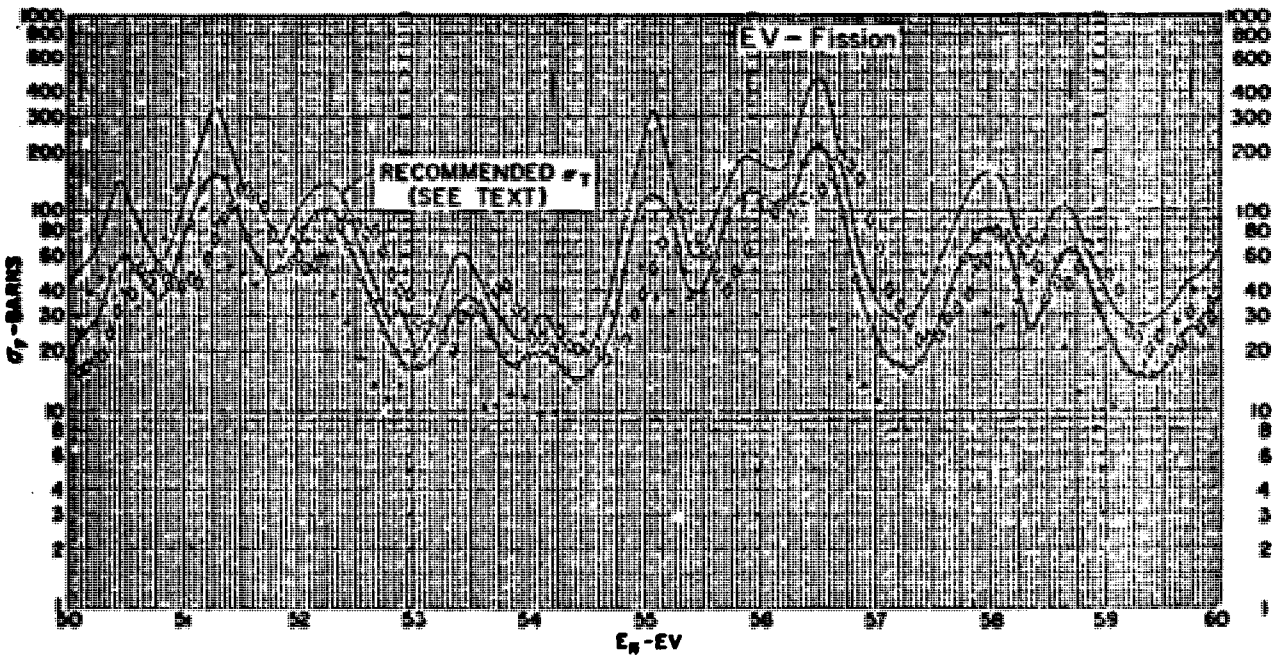
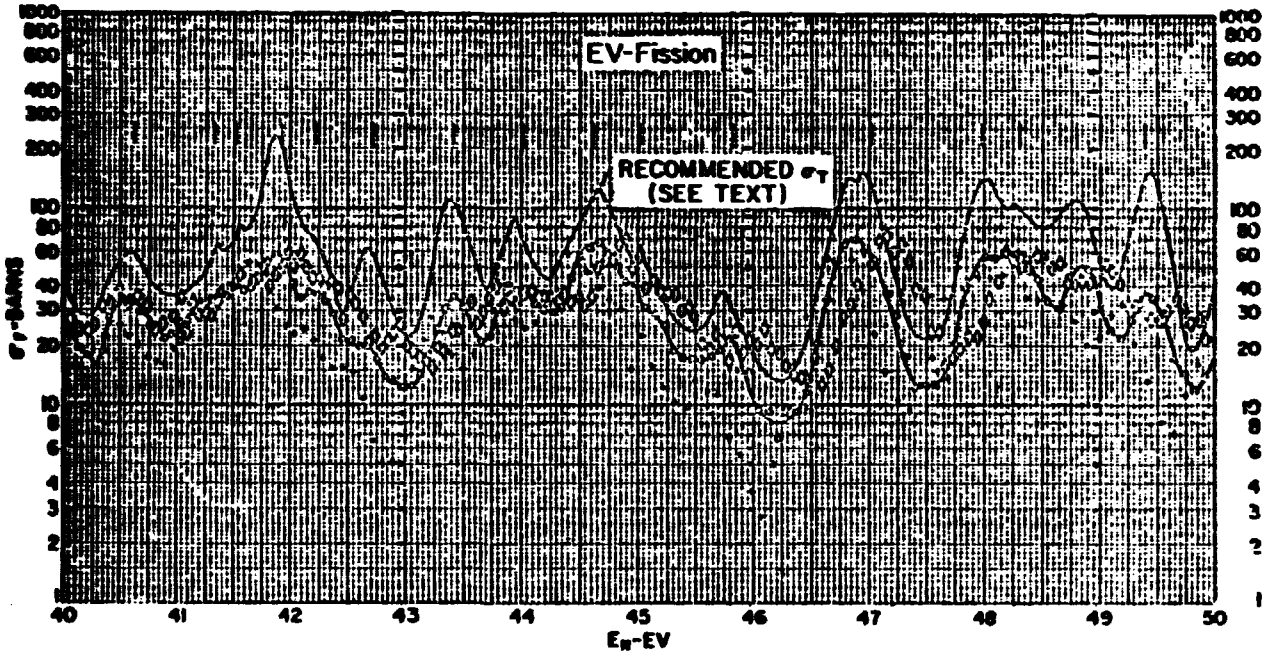


FIGURA 3.3
(CONTINUAÇÃO) [13]

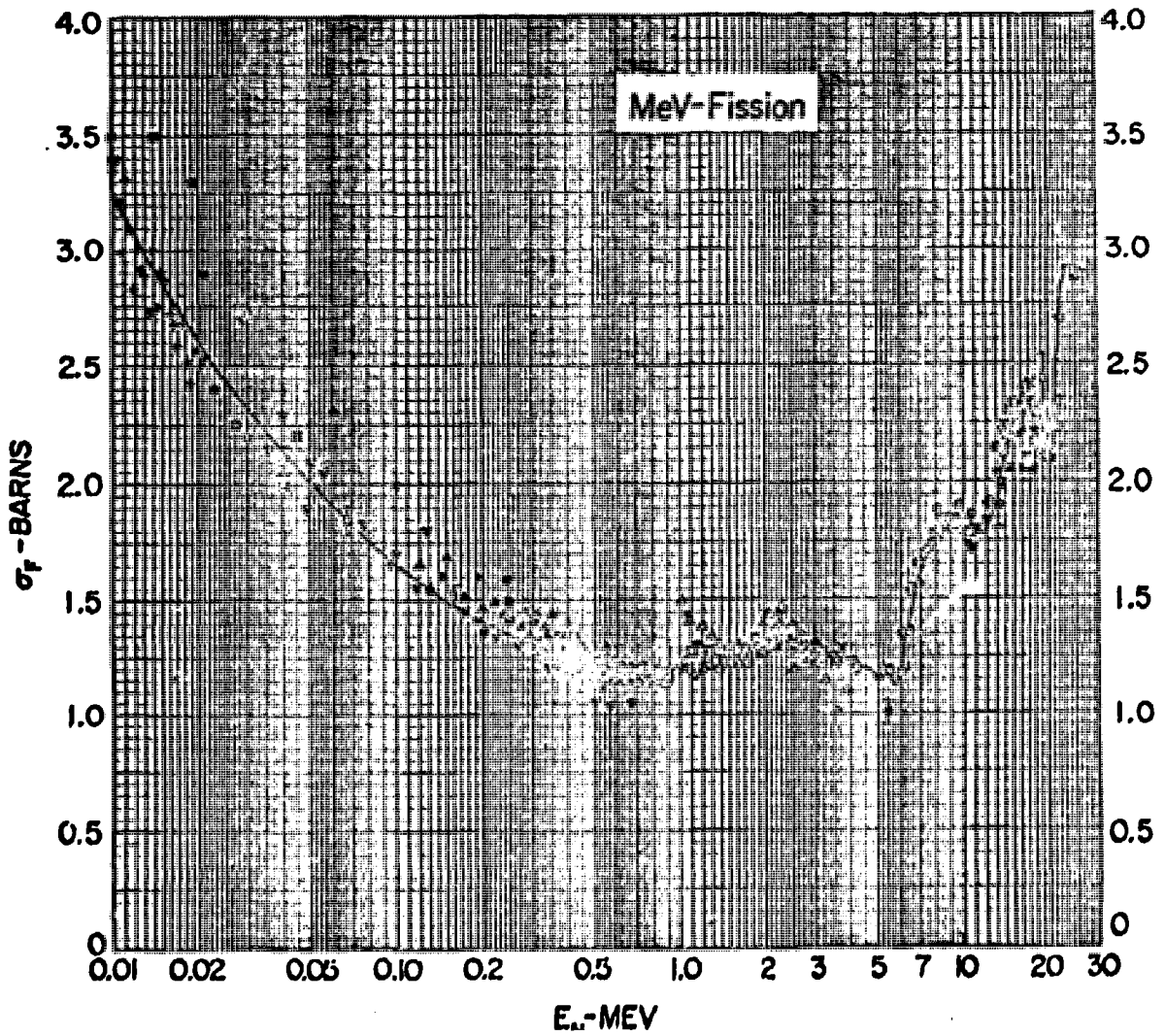
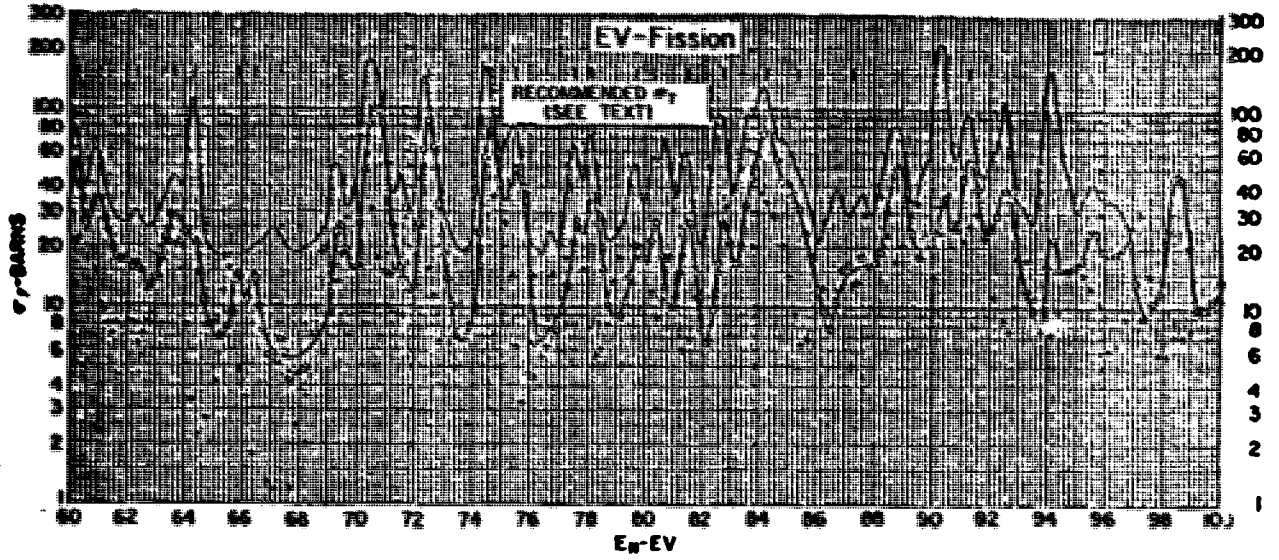


FIGURA 3.4

VARIAÇÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE FISSÃO DO U-238 COM
A ENERGIA DO NÉUTRON INCIDENTE [13]

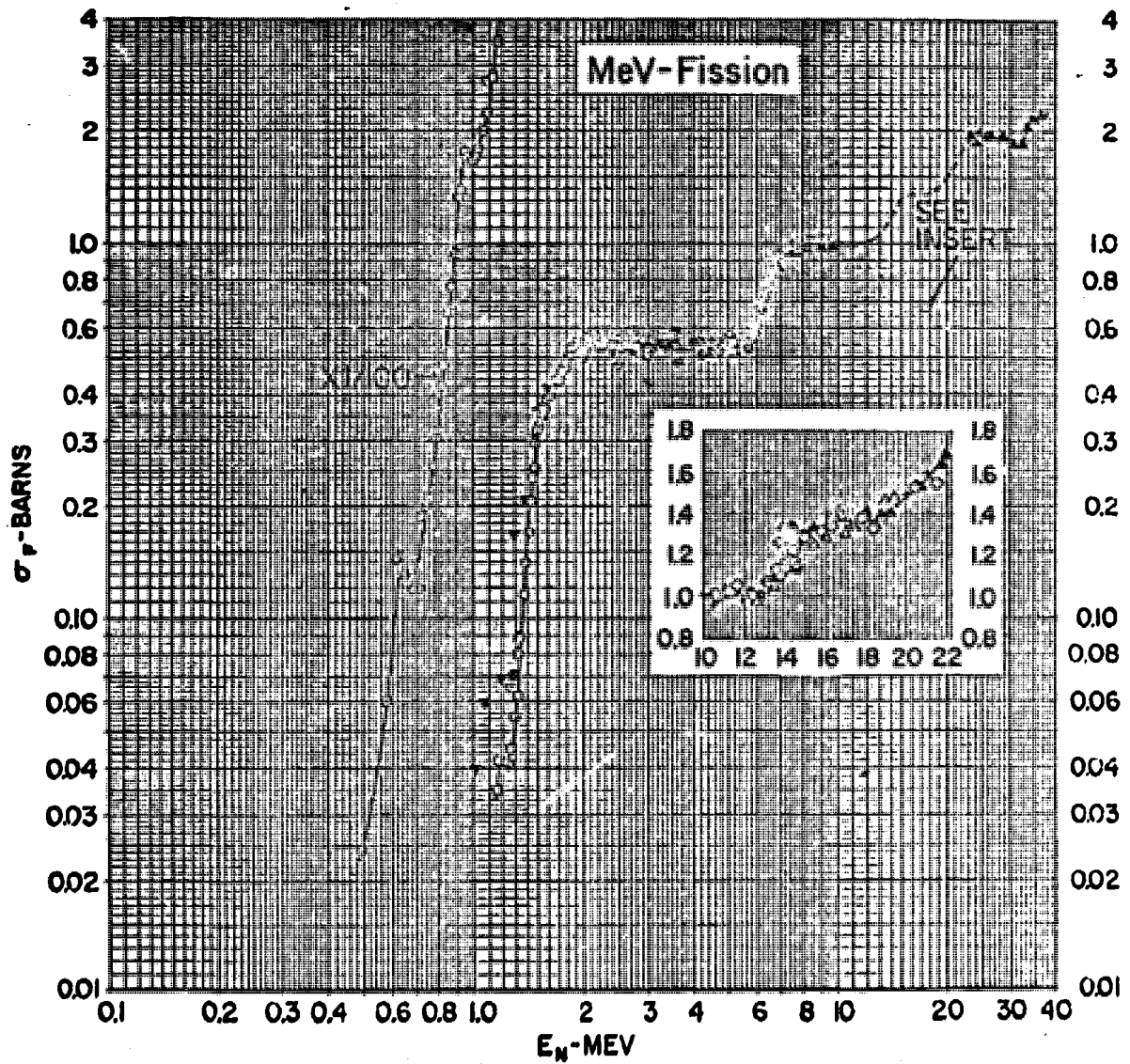


FIGURA 3.5

VARIAÇÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE FISSÃO DO Pu-238
COM A ENERGIA DO NEÚTRON INCIDENTE [13]

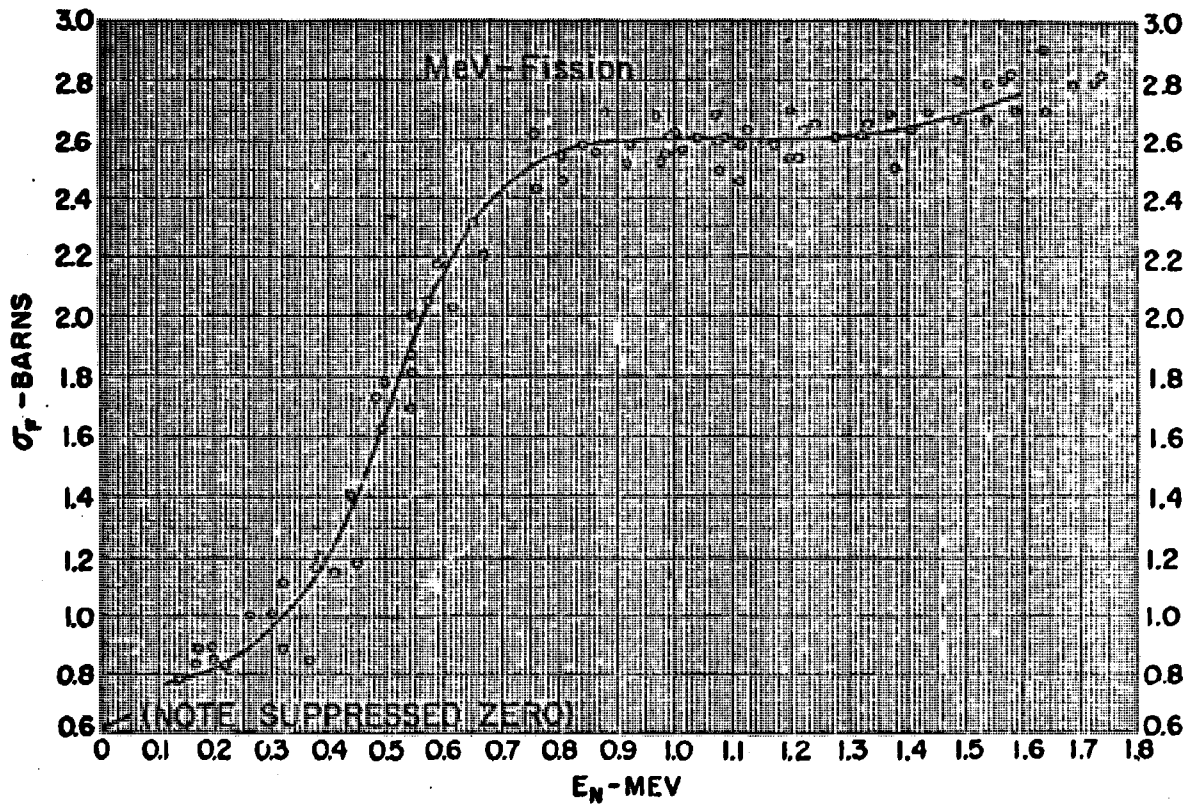


FIGURA 3.6

VARIAÇÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE FISSÃO DO Pu-239
COM A ENERGIA DO NEÚTRON INCIDENTE [13]

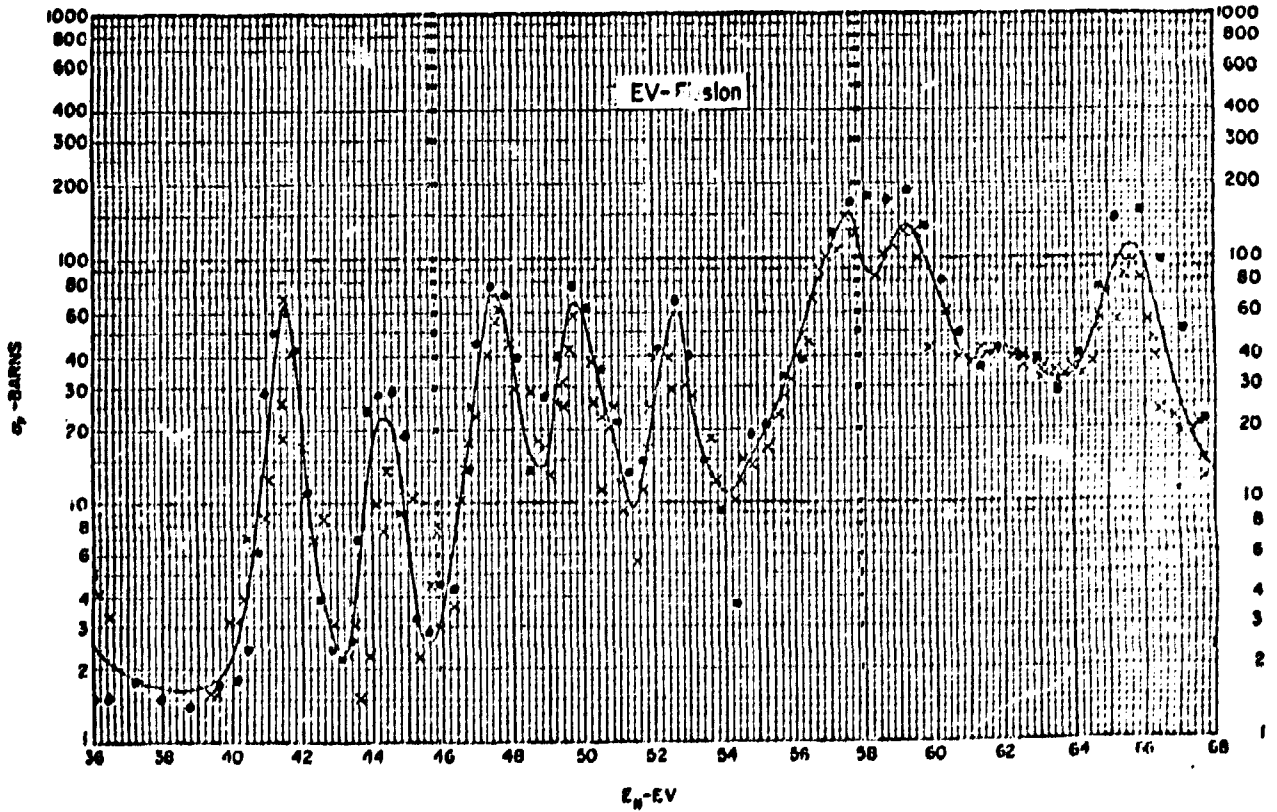
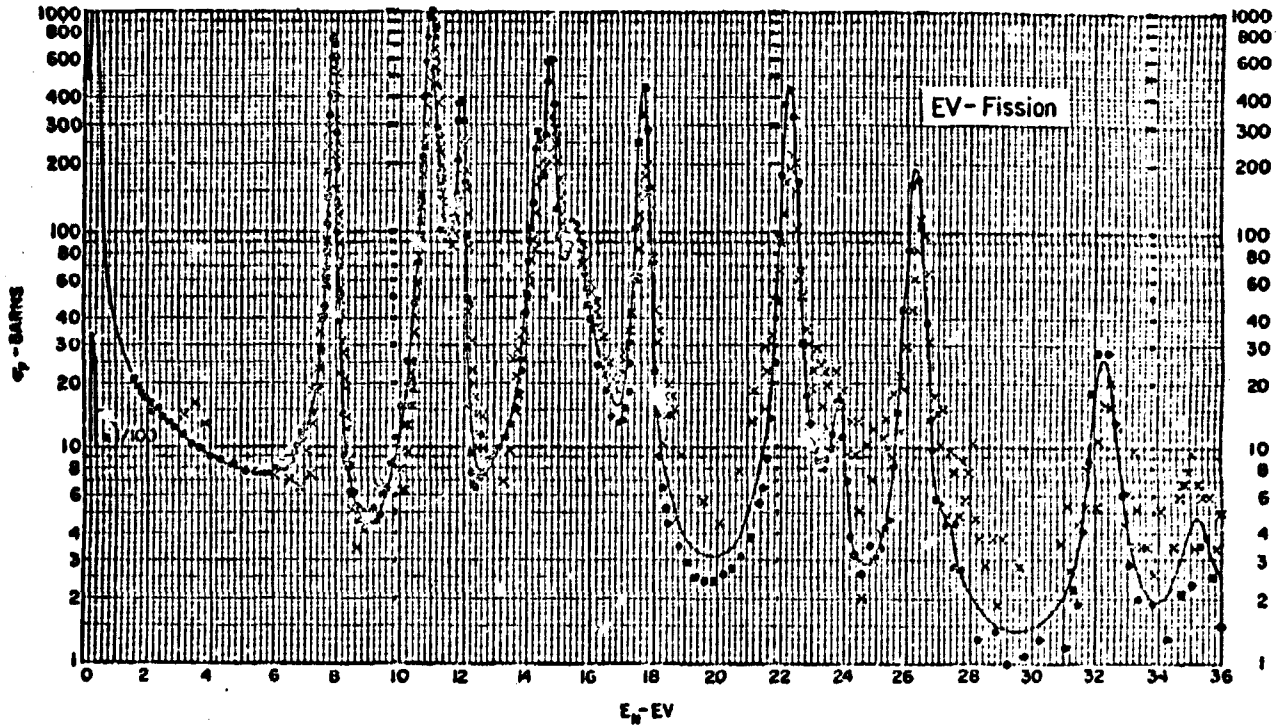


FIGURA 3.6
(CONTINUAÇÃO) [13]

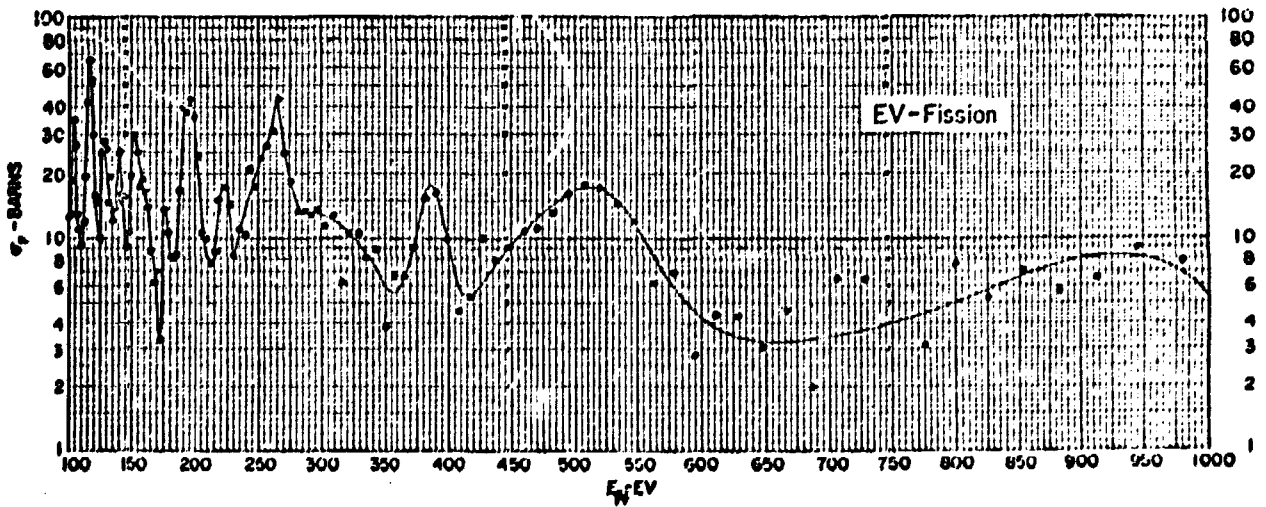
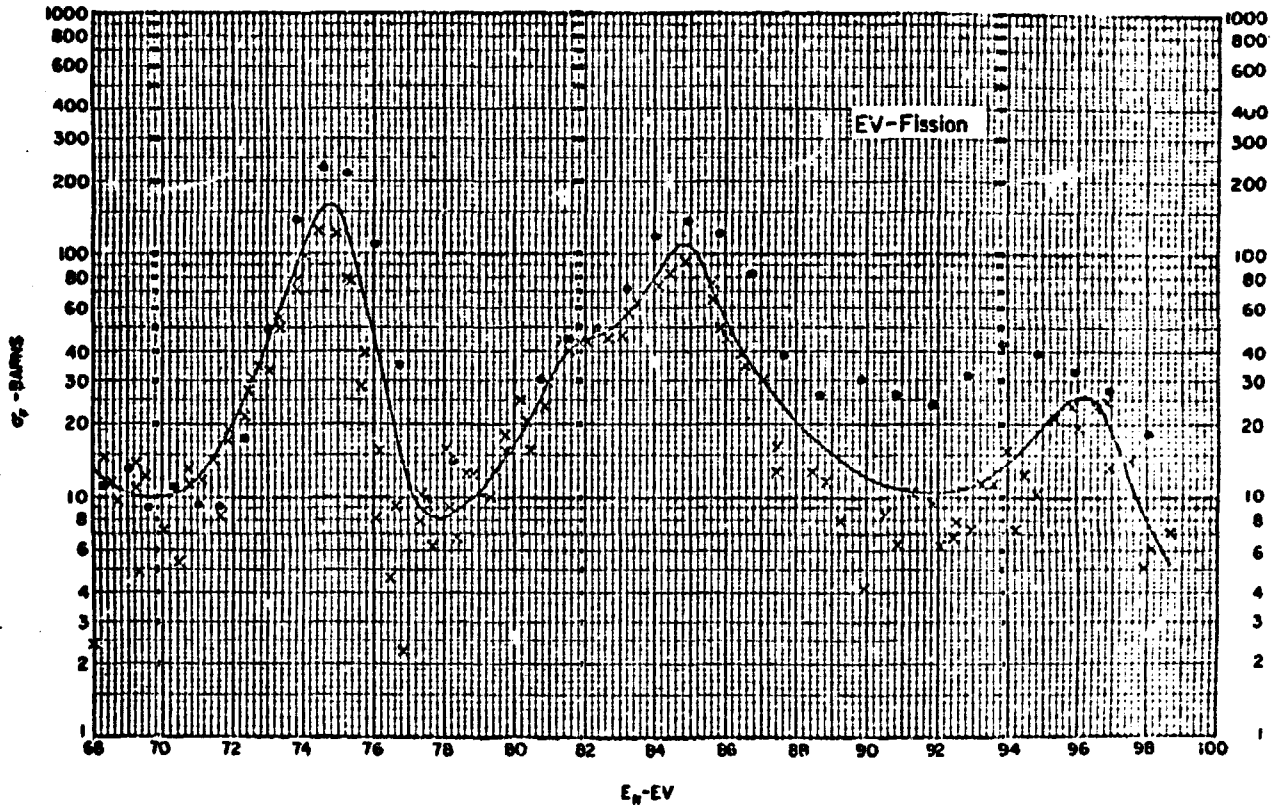


FIGURA 3.6
(CONTINUAÇÃO) [13]

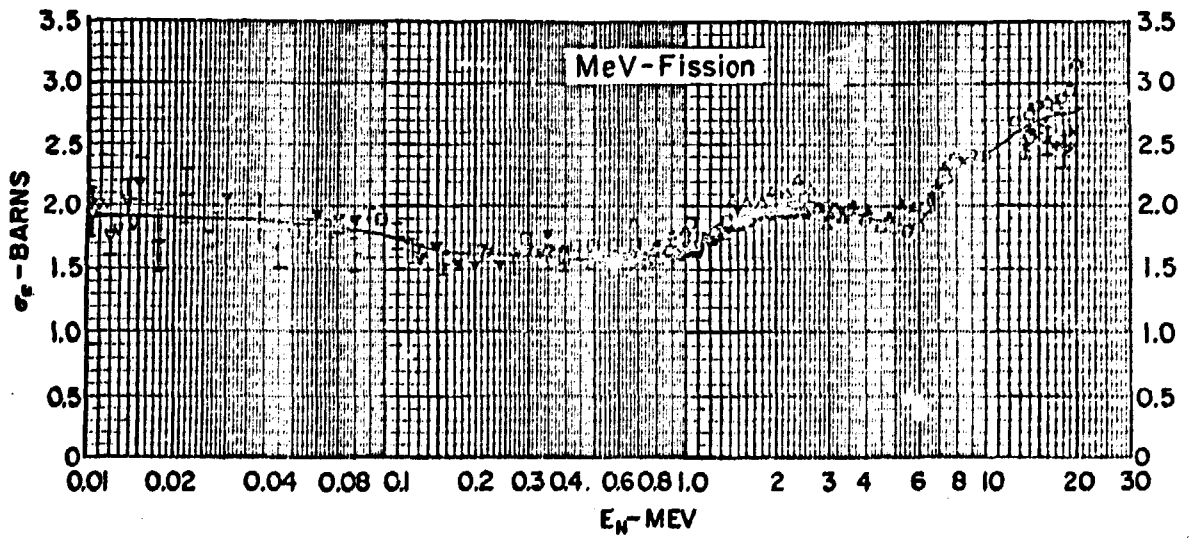
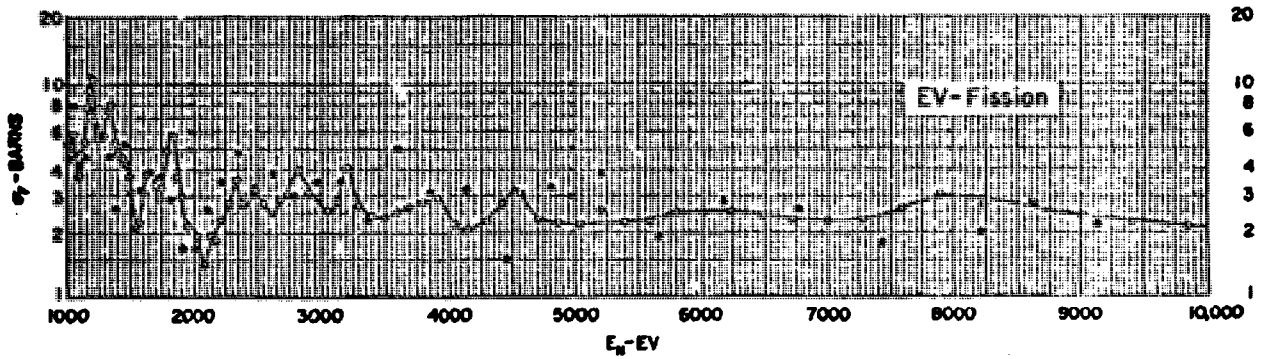


FIGURA 3.7

VARIAÇÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE FISSÃO DO Th-232 COM
A ENERGIA DO NÊUTRON INCIDENTE [13]

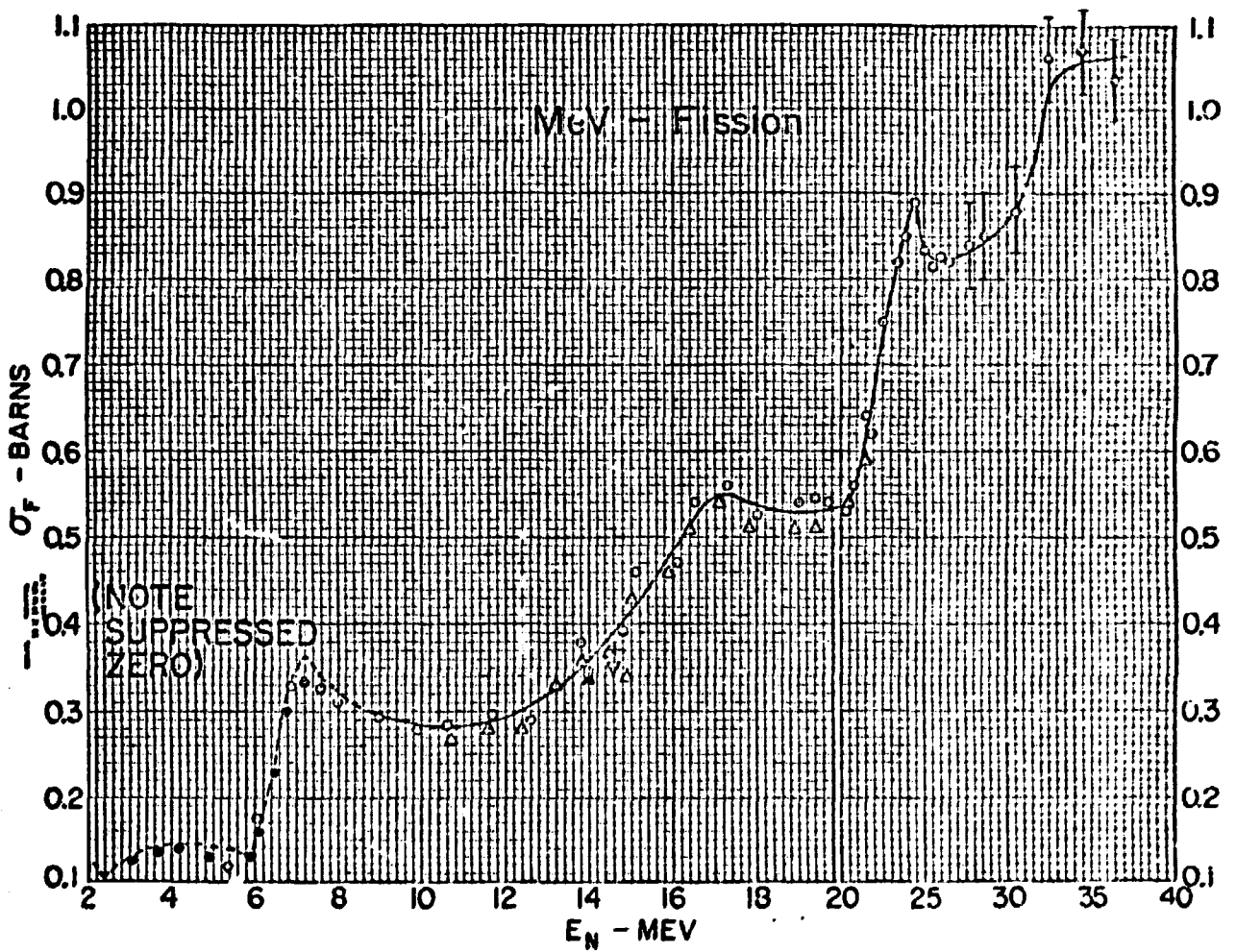
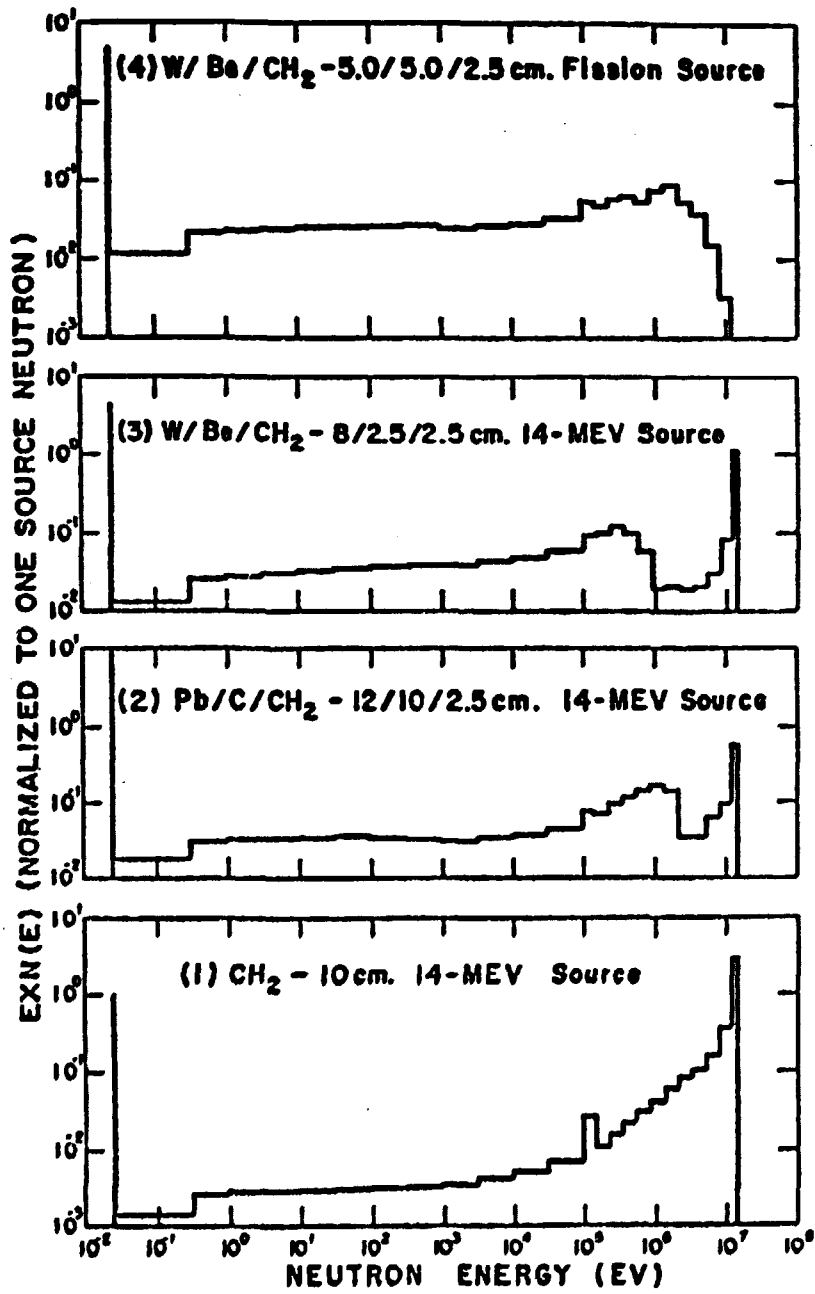


FIGURA 3.8

ESPECTROS RESULTANTES DE MODERADORES "1/E" [17]



4. MONTAGEM EXPERIMENTAL E INSTRUMENTAÇÃO

4.1 Detector de Nêutrons Têrmicos - "Long Counter"

Um detector de nêutrons cuja eficiência não depende da energia desses nêutrons, ou seja, sua curva de eficiência de detecção em função da energia é aproximadamente uma reta horizontal, é chamado detector de resposta plana. O mais conhecido desses detectores é chamado "long counter", que é basicamente um detector de nêutrons lentos colocado dentro de um meio moderador.

Hanson e Mckibben [18] foram os primeiros a introduzir a combinação de um detector BF_3 e um moderador cilíndrico como detector de resposta plana.

Embora a eficiência do detector original fosse um pouco baixa, os modelos posteriores se tornaram mais eficientes graças à utilização de detectores com maiores diâmetros e maiores pressões de gás.

O objetivo principal das modificações efetuadas nos novos modelos tem sido o aumento da sensibilidade, sem prejuízo à uniformidade da resposta em energia, usando detectores múltiplos de BF_3 ou ^3He ao invés de um único detector.

As principais características do detector "long counter" são [19]:

- alta eficiência para detecção de nêutrons rápidos;
- resposta relativamente uniforme para nêutrons

de energias diferentes;

- boa discriminação para raios gama;
- boa aproximação como detector pontual.

O modelo do "long counter" construído por East e Walton [20] foi tomado como base para o projeto e confecção do detector utilizado neste trabalho. Foram necessárias adaptações, tanto nas dimensões do detector, para uso dos contadores BF₃, disponíveis no LABFRE.CN, quanto em relação aos materiais utilizados na construção do cilindro moderador.

O "long counter" construído para o presente trabalho é constituído por um cilindro moderador de parafina (70% em peso) e polietileno (30% em peso), com dimensões de 330 mm de diâmetro e 660 mm de comprimento, onde estão distribuídos geometricamente 5 detectores BF₃, com 51 mm de diâmetro, 660 mm de comprimento e pressão de gás de 70 cm de Hg, cuja disposição é mostrada na Figura 4.1. Esse cilindro possui em sua parte frontal 12 furos, com 25,4 mm de diâmetro e 290 mm de profundidade, conforme as Figuras 4.2 e 4.3. O número e a localização desses furos são importantes, pois evitam a queda da eficiência de detecção de nêutrons com energia abaixo de 1 MeV [21], permitindo aos nêutrons de energias menores penetrarem mais no moderador, obtendo assim uma resposta plana em energia.

Outro aspecto essencial para a eficiência do detector é o anel da mistura parafina e polietileno, com 19mm de espessura, colocado na parte frontal do cilindro, como pode ser visto na Figura 4.4.

Externamente ao cilindro de parafina e polietileno, tem-se uma blindagem de 75 mm de espessura, constituída de uma mistura de parafina (72%), polietileno (14%) e ácido bórico (14%), que tem por finalidade moderar e absorver nêutrons que incidam nas paredes laterais do detector. Com isso, somente os nêutrons incidentes na parte frontal dele serão registrados.

Os cinco detectores BF_3 são conectados em paralelo e alimentados através de um único pré-amplificador.

A Figura 4.5 mostra o "long counter" em detalhes.

As proporções de parafina e polietileno, utilizadas nas construções do cilindro moderador do detector e de sua blindagem externa, foram obtidas após vários ensaios de laboratório, pois havia um compromisso entre a qualidade, em termos de resistência mecânica das misturas (a rigidez da parafina aumenta consideravelmente com a adição de polietileno) e a quantidade de polietileno disponível no LABFRE.CN.

Por outro lado, a proporção de 14% de ácido bórico usada na blindagem externa e a espessura necessária à moderação dos nêutrons estão de acordo com os estudos feitos em [22] e [23], respectivamente.

Na referência [21] encontram-se estudos relativos à construção do "long counter", com variações de parâmetros tais como: posição do contador BF_3 em relação à parte frontal; variação do diâmetro de localização dos furos e sua profundidade; blindagem de nêutrons térmicos; etc.

4.2 Medidas com o "Long Counter"

As contagens das medidas para determinar o ponto de operação, tempo de resolução e testes das características do detector foram processadas por um sistema de contagem mono-canal convencional, formado por pré-amplificador, fonte de alta tensão, amplificador, discriminador, contador ("scaler") e osciloscópio.

4.2.1 Região de funcionamento

O ponto de operação do "long counter" foi determinado a partir da construção das curvas características dos detectores BF₃, usados na sua construção, ou seja, a variação das contagens por unidade de tempo com a tensão aplicada. Para isso, utilizou-se uma fonte de Am-Be, com atividade de 1mCi, mantida numa posição fixa. A Figura 4.6 mostra, como exemplo, uma das curvas características obtidas. Todos os parâmetros estão na mesma região de tensão.

A tensão de operação do detector é da ordem de 2400 V.

4.2.2 Discriminação de raios gama

Para a discriminação de pulsos provenientes de radiação gama, usou-se uma fonte de Co-60 e uma fonte de nêutrons (Am-Be) de 1mCi.

As fontes foram colocadas a aproximadamente 20 cm do detector. Usou-se o sistema de contagem nas seguintes condições:

Alta tensão - 2400 V

Ganho no pré-amplificador - x 10

Ganho do amplificador - grosso 4

fino 3

Os espectros diferenciais obtidos com as fontes Am-Be e Am-Be mais Co-60 foram levantados utilizando-se uma janela de 200 mV e variação da linha de base de 200 mV (Tabelas 4.1 e 4.2). No espectro da fonte de Co-60 foi usada uma janela de 50 mV com variação da linha de base de 50 mV, para maior detalhamento (Tabela 4.3). As contagens foram acumuladas em 60 s.

As contagens integrais das fontes de nêutron, nêutron mais gama e gama foram obtidas com variação da discriminação e podem ser vistas na Tabela 4.4.

Do gráfico construído a partir dos dados das Tabelas 4.1, 4.2 e 4.3 e mostrado na Figura 4.7, conclui-se que a discriminação gama é aproximadamente 1 V, quase ao nível do ruído, conforme já esperado como uma das características do detector.

4.2.3 Tempo de resolução

O tempo de resolução do sistema de contagem foi determinado através do método das duas fontes [24], que con-

siste em observar as taxas de contagens de duas fontes (aproximadamente iguais) tomadas individual e simultaneamente. Devido ao fato das perdas de contagens serem não lineares, a taxa de contagem observada, das duas fontes combinadas, será menor do que a soma das taxas devido às duas fontes contadas individualmente. O tempo de resolução pode ser calculado dessa diferença.

Usando-se então a fórmula aproximada para $R_{12} \tau \ll 1$ [24]:

$$\tau = \frac{R_1 + R_2 - R_{12} - R_{bg}}{(R_{12})^2 - (R_1)^2 - (R_2)^2} \quad (4.1)$$

sendo o desvio em τ dado por:

$$\sigma_\tau = \frac{1}{(R_{12}^2 - R_1^2 - R_2^2)} \left[(1 + 2R_1\tau)^2 \sigma_{R_1}^2 + (1 + 2R_2\tau)^2 \sigma_{R_2}^2 + (1 + 2R_{12}\tau)^2 \sigma_{R_{12}}^2 + \sigma_{bg}^2 \right]^{1/2} \quad (4.2)$$

onde:

R_1 = taxa de contagem da fonte 1, incluindo "background"

R_2 = taxa de contagem da fonte 2, incluindo "background"

R_{12} = taxa de contagem das fontes 1 e 2, tomadas simultaneamente, incluindo "background"

R_{bg} = taxa de contagem de "background"

$\sigma_{R_1}, \sigma_{R_2}, \sigma_{R_{12}}$ e σ_{bg} desvios em R_1, R_2, R_{12} e R_{bg} respectivamente.

Como fontes de nêutrons foram utilizadas duas fontes de Am-Be, com 2Ci de atividade cada, colocadas a 30cm do "long counter" aproximadamente em seu centro geométrico.

A resposta do "long counter" foi processada pelo sistema de contagem ORTEC, descrito em 4.2, nas seguintes condições:

Alta tensão - 2400 V

Ganho no prē-amplificador - x1

Discriminação - 1 V

Ganho no amplificador - grosso 32

fino 3

O tempo de contagem de cada medida foi de 100s e o valor médio do "background" de 1 cps. As taxas de contagens médias obtidas são:

- fonte 1: 4075 cps

- fontes 1+2: 7863 cps

- fonte 2: 4032 cps

As observações foram feitas primeiro com a fonte 1, depois com as fontes 1+2 e finalmente com a fonte 2. Essa ordem deve ser mantida, de modo que as leituras individuais e combinadas sejam obtidas sem movimentar as fontes entre leituras sucessivas, com isso evitando-se falhas na reprodutibilidade de seus posicionamentos.

Usando-se então as equações (4.1) e (4.2), foi obtido o seguinte valor para o tempo de resolução do "long counter":

$$\tau = (8,4 \pm 0,5)\mu s$$

4.2.4 Detector pontual

Em medidas de fluxo é necessário conhecer, exatamente, a distância efetiva entre fonte e detector.

Devido às características físicas do "long counter", composto de detectores de nêutrons térmicos imersos numa grande massa de parafina/polietileno (semi-infinita), faz-se necessário verificar seu comportamento como um detector pontual, determinando então seu centro efetivo de contagem. Nesse caso, a taxa de contagem variará com r do seguinte modo [21]:

$$I - I_0 = \frac{A}{(r + r_0)^2} \quad (4.3)$$

onde I é a taxa de contagem observada numa distância r (entre fonte e a face frontal do detector), A é uma constante, I_0 é a taxa de "background" da sala e r_0 é a distância entre o centro efetivo do detector e sua parte frontal.

Experimentalmente, o centro efetivo do detector foi determinado utilizando-se uma fonte Am-Be, de nêutrons com energia média de 4,4 MeV, contada a diversas distâncias do detector. Traçando-se o gráfico dos valores obtidos de $(I - I_0)^{-1/2}$ em função de r e extrapolando-se para zero o valor de $(I - I_0)^{-1/2}$, conforme pode ser visto na Figura 4.8, o valor encontrado, após o ajuste por mínimos quadrados dos pontos experimentais, foi $r_0 = 90$ mm.

O valor de r_0 varia com a energia dos nêutrons da fonte.

Com a mesma fonte foi feita uma avaliação quantitativa nas contagens registradas pelo "long counter", sem o anel de parafina/polietileno colocado na sua parte frontal, encontrando-se um decréscimo da ordem de 10%.

4.3 Arranjo Moderador

Da análise dos vários tipos de moderadores utilizados para abaixar a energia dos nêutrons da fonte primária (14 MeV) - Tabelas 3.1 e 3.2 - das características gerais desses moderadores e o material disponível no LABFRE.CN, chegou-se à configuração que se adaptava à realização deste trabalho.

O arranjo moderador, mostrado na Figura 4.9, é formado por dois cilindros concêntricos, sendo o interno de chumbo com 325 mm de diâmetro e 280 mm de comprimento (Figura 4.10), tendo no centro um furo de 170 mm de profundidade e 110,5 mm de diâmetro (para introduzir o tubo alvo do acelerador); e o externo de uma mistura de parafina e polietileno, 70% e 30% respectivamente, formando uma casca cilíndrica de 40 mm de espessura. Designa-se esse arranjo pela notação $Pb/(CH_2)_n + CH_2 - 11/4$ cm, conforme sistemática mostrada no item 3.3.

O cilindro externo é formado por duas meias partes, com macho e fêmea para encaixe, possibilitando então

sua remoção (Figuras 4.11 e 4.12). Portanto, é possível obter-se dois espectros de energia diferentes. Um com o cilindro de chumbo circundando o tubo alvo do acelerador, dando origem a nêutrons com energia média de aproximadamente 1,8 MeV; outro com o conjunto completo, onde o cilindro externo aumenta a fração de nêutrons com energia menor que 0,1 MeV, característica de moderadores "1/E".

O moderador aqui descrito foi construído com o objetivo de aproximar suas características às do moderador Pb/C/CH₂ (energia média do espectro resultante de 0,5 MeV, Tabelas 3.1 e 3.2), com exceção da camada de grafite, cuja ausência tentou-se de certa forma compensar aumentando a espessura da camada de parafina/poliétileno.

4.4 Acessórios

Para posicionamento do equipamento foram confeccionados bancos de sustentação do "long counter" e do arranjo moderador, trilhos para posicionamento e variação da distância entre eles, sem alterar a geometria nas outras direções, e um dispositivo porta-amostra acoplado ao banco de sustentação do detector.

Nas Figuras 4.12 e 4.13 tem-se uma visão de conjunto do arranjo experimental.

4.5 Gerador de Nêutrons

Como fonte de nêutrons de interrogação utilizou se um gerador de nêutrons Kaman do tipo A-1254, Figura 4.14, operando em regime pulsado, capaz de produzir uma surgência máxima de 10^{10} n/s com energia de 14,3 MeV.

As principais unidades componentes desse gerador são: um acelerador, um gerador de alta tensão e um painel de controle [25].

Um tubo de paládio controla o fluxo de deutério. Quando em operação, as paredes desse tubo são aquecidas, possibilitando dessa forma a entrada controlável de deutério na fonte de íons, do tipo "Penning Ion Gauge" (P.I.G.), onde esse gás é ionizado pela ação combinada de um campo magnético de 600 gauss e um potencial de 5 kV. Um circuito eletrônico especial produz pulsos de dêuterons que são focalizados e acelerados, por um potencial de até 190 kV, contra um alvo de trítio. Nêutrons então são gerados a partir da reação ${}^3\text{H}(d,n){}^4\text{He}$.

A fonte de íons e o alvo são refrigerados com gás freon.

O alvo é polarizado a 600 V para impedir que a corrente de retorno de elétrons atue como uma fonte de raios X.

Os pulsos de íons são retangulares e possuem largura (d) e frequência (R) variáveis dentro dos seguintes limites:

$$(5 \leq d \leq 2 \times 10^5) \mu s$$

$$R \leq 2,5 \times 10^5 \text{ Hz}$$

Nos experimentos deste trabalho foram utilizados os seguintes valores:

$$d = 40 \text{ ms}$$

$$R = 9,3 \text{ s}^{-1}$$

O painel de controle do acelerador está localizado a uma distância considerável da montagem experimental, assegurando a proteção radiológica dos operadores.

4.6 Sistema de Contagem

A montagem da instrumentação é explicada com base no diagrama de bloco mostrado na Figura 4.15.

Os nêutrons atrasados, provenientes das fissões induzidas nas amostras pelos nêutrons de interrogação, são detectados pelo "long counter" e os pulsos são processados por um sistema de contagem marca ORTEC, formado por pré-amplificador, amplificador, discriminador, medidor de taxa e "scaler". Os sinais de saída do discriminador são armazenados num multicanal (em função do tempo), em 2048 canais de memória, com largura de 50 μs /canal.

A largura do canal Δt e o número de canais N do analisador são escolhidos de modo que $\Delta t.N \leq T$, onde T é o período de pulsação do acelerador.

O multicanal é disparado pelo pulso da corrente de alvo do acelerador, pulso esse que passa por um circuito formador de pulsos antes de chegar à entrada do multicanal.

Visando minimizar o tempo gasto na coleta dos dados, foi utilizado o sistema de gravação das contagens armazenadas no multicanal, em fita cassete, desenvolvido no LABFRE.CN [26]. Esse sistema consiste de um micro-processador, um gravador cassete e um terminal de vídeo (Sisco TV 2000). Os dados são editados em um sistema registrador gráfico Tektronix 4054, que fornece as listagens para análise dos dados.

TABELA 4.1

ESPECTRO DIFERENCIAL - FONTE Am-Be

E (V)	R (cpm)	E (V)	R (cpm)
0,2	215.412	1,8	451
0,4	382	2,0	518
0,6	78	2,2	305
0,8	75	2,4	72
1,0	78	2,6	27
1,2	122	2,8	8
1,4	225	3,0	2
1,6	301		

TABELA 4.2

ESPECTRO DIFERENCIAL - FONTE Am-Be+⁶⁰Co

E (V)	R (cpm)	E (V)	R (cpm)
0,2	207.120	1,8	446
0,4	575	2,0	521
0,6	85	2,2	297
0,8	73	2,4	69
1,0	82	2,6	23
1,2	123	2,8	9
1,4	220	3,0	1
1,6	303		

TABELA 4.3
ESPECTRO DIFERENCIAL - FONTE ⁶⁰Co

E (V)	R (cpm)	E (V)	R (cpm)
0,05	6.932.968	0,40	52
0,10	4.827.636	0,45	5
0,15	1.462.259	0,50	1
0,20	252.962	0,55	2
0,25	24.634	0,60	0
0,30	2.258		
0,35	277		

TABELA 4.4
ESPECTRO INTEGRAL

Discriminação (V)	R (cpm)		
	Am-Be	Am-Be+ ⁶⁰ Co	⁶⁰ Co
0,60	2820	3044	1004
0,80	2922	2925	683
1,00	2863	2838	656
1,20	2761	2733	593
1,40	2657	2518	550

FIGURA 4.1

DISPOSIÇÃO DOS CONTADORES BF, NO "LONG COUNTER"

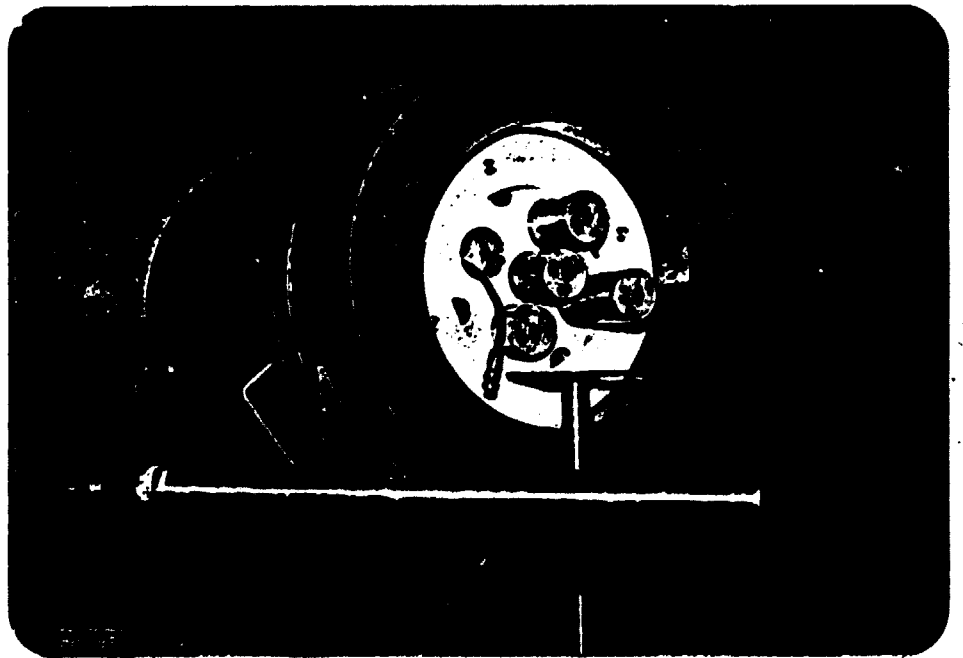


FIGURA 4.3

VISTA FRONTAL DA FURAÇÃO DO "LONG COUNTER"

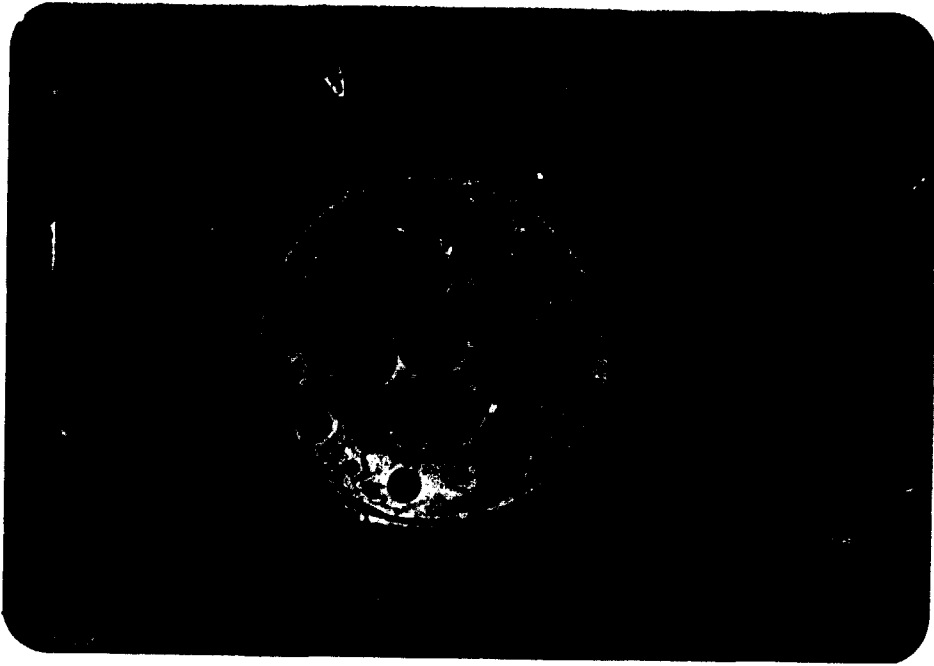


FIGURA 4.4

VISTA FRONTAL DO "LONG COUNTER" COM O ANEL DE
PARAFINA/POLIETILENO

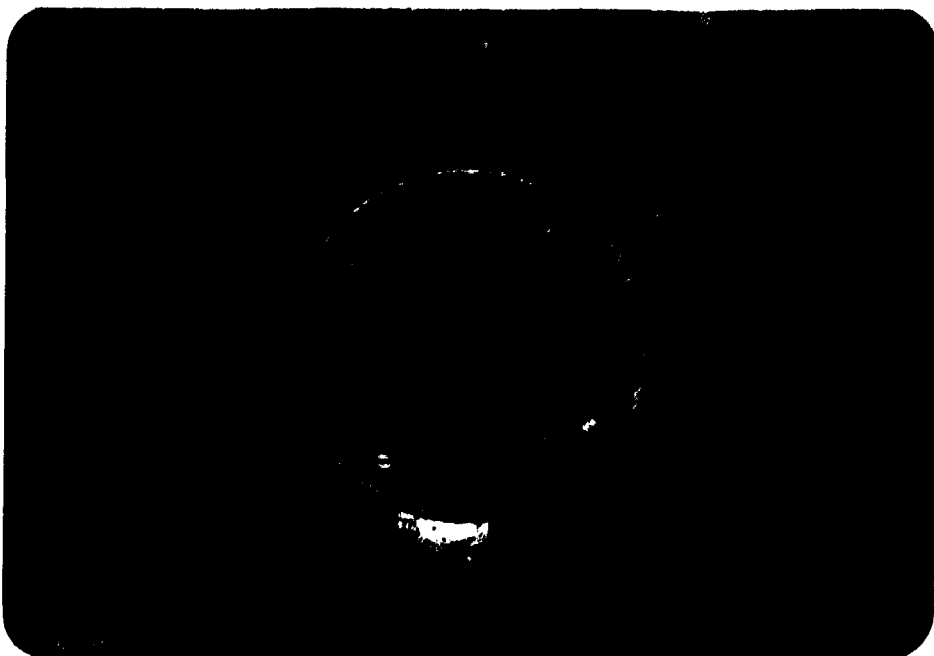
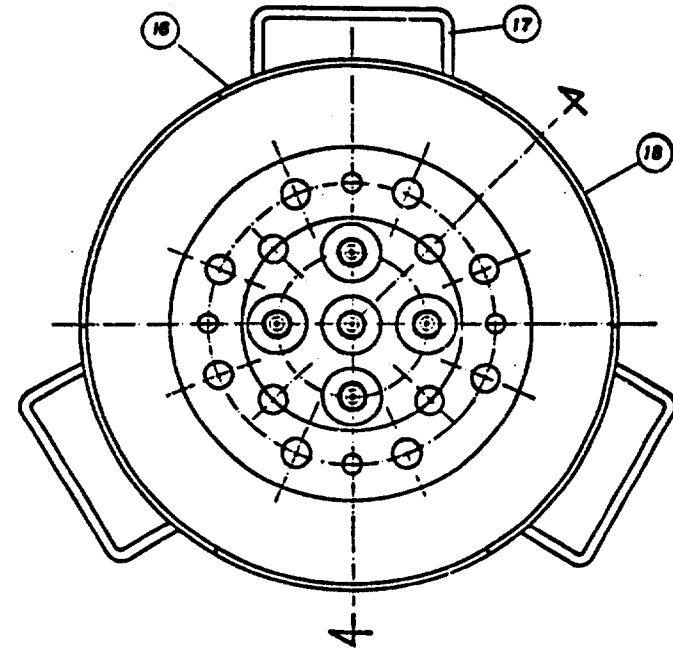
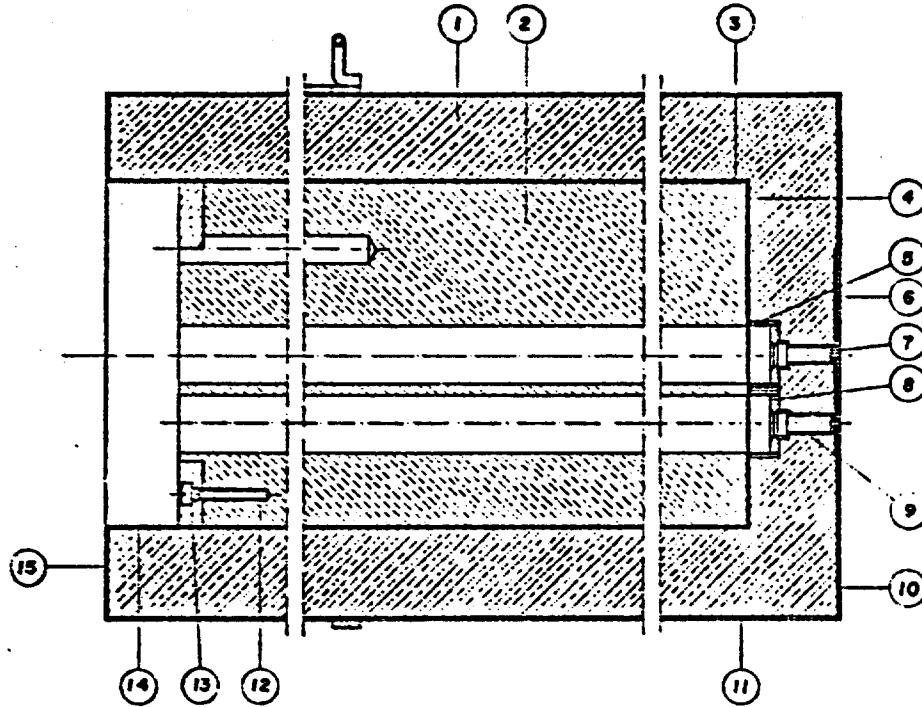







FIGURA 4.5
"LONG COUNTER" MOSTRADO EM DETALHES



LEGENDA

	14% - Ácido Bórico
	14% - Polietileno
	72% - Parafina
	30% - Polietileno
	70% - Parafina

18	CINTA	1	SAE 1020
17	ALÇA	2	SAE 1020
16	BATENTE	5	SAE 1020
15	TAMPA	1	SAE 1020
14	CILINDRO COMPLEMENTAR	1	SAE 1020
13	ANEL	1	50 H201000 100 H201000
12	PARAFUSO	4	ALUMÍNIO
11	CILINDRO EXTERNO	1	SAE 1020
10	FUNDO	1	SAE 1020
9	CAPA DE SUSTENTACÃO	3	SAE 1020
8	BOCAL SUPERIOR	3	SAE 1020
7	BOCAL INFERIOR	3	SAE 1020
6	PLACA DE PROTEÇÃO	1	CÁSMIO
5	LUVA	3	SAE 1020
4	FUNDO DO CILINDRO INTERNO	1	SAE 1020
3	CILINDRO INTERNO	1	SAE 1020
2	MODERADOR	1	SAE 1020
1	BLINDAGEM	1	SAE 1020
TOTAL		DISPONIBILIZADO	SUMM MATERIAL

FIGURA 4.6
CURVA CARACTERÍSTICA DO DETECTOR BF₃

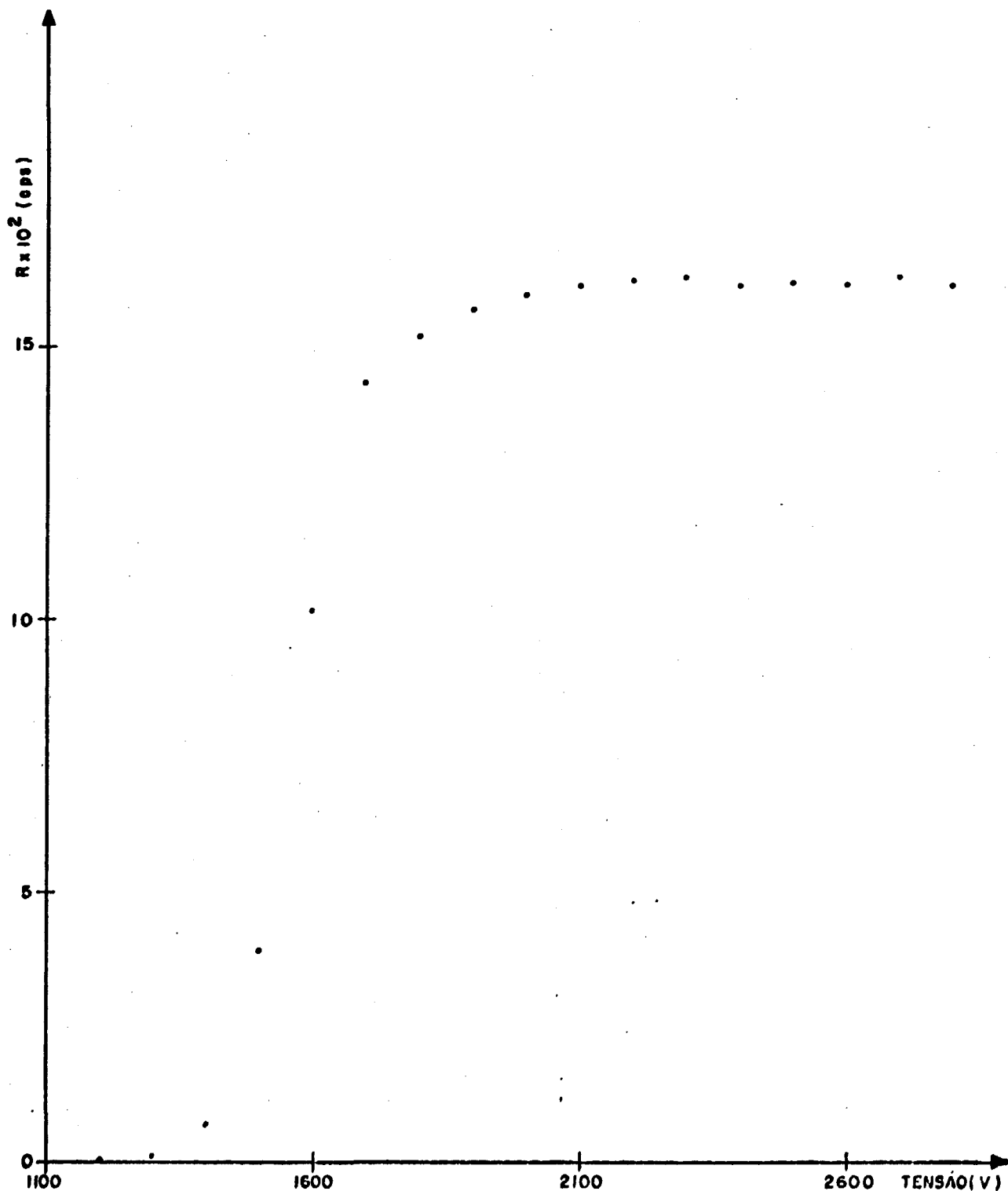


FIGURA 4.7
ESPECTRO DIFERENCIAL-DISCRIMINAÇÃO GAMA

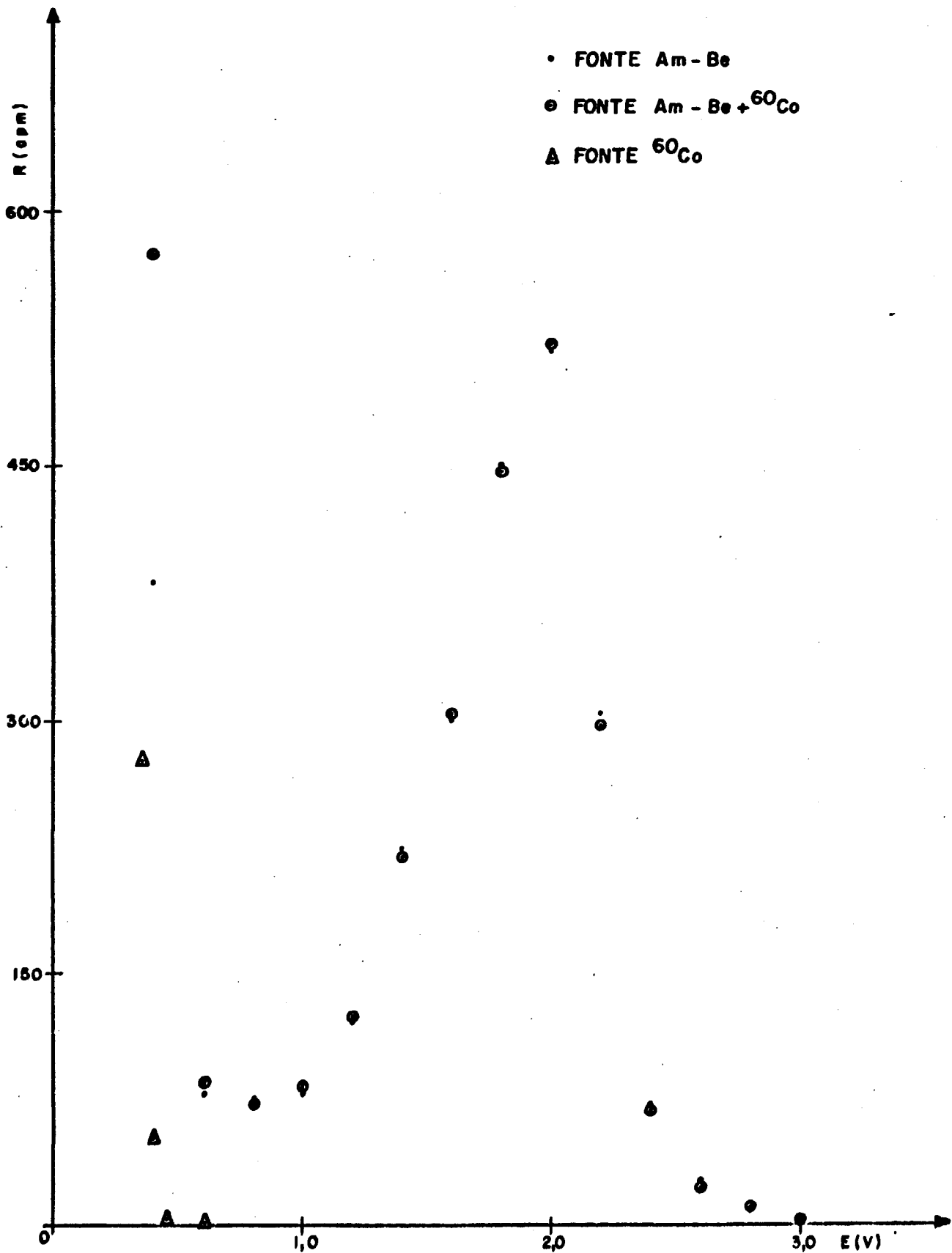


FIGURA 4.8
CENTRO EFETIVO DE CONTAGEM DO "LONG COUNTER"

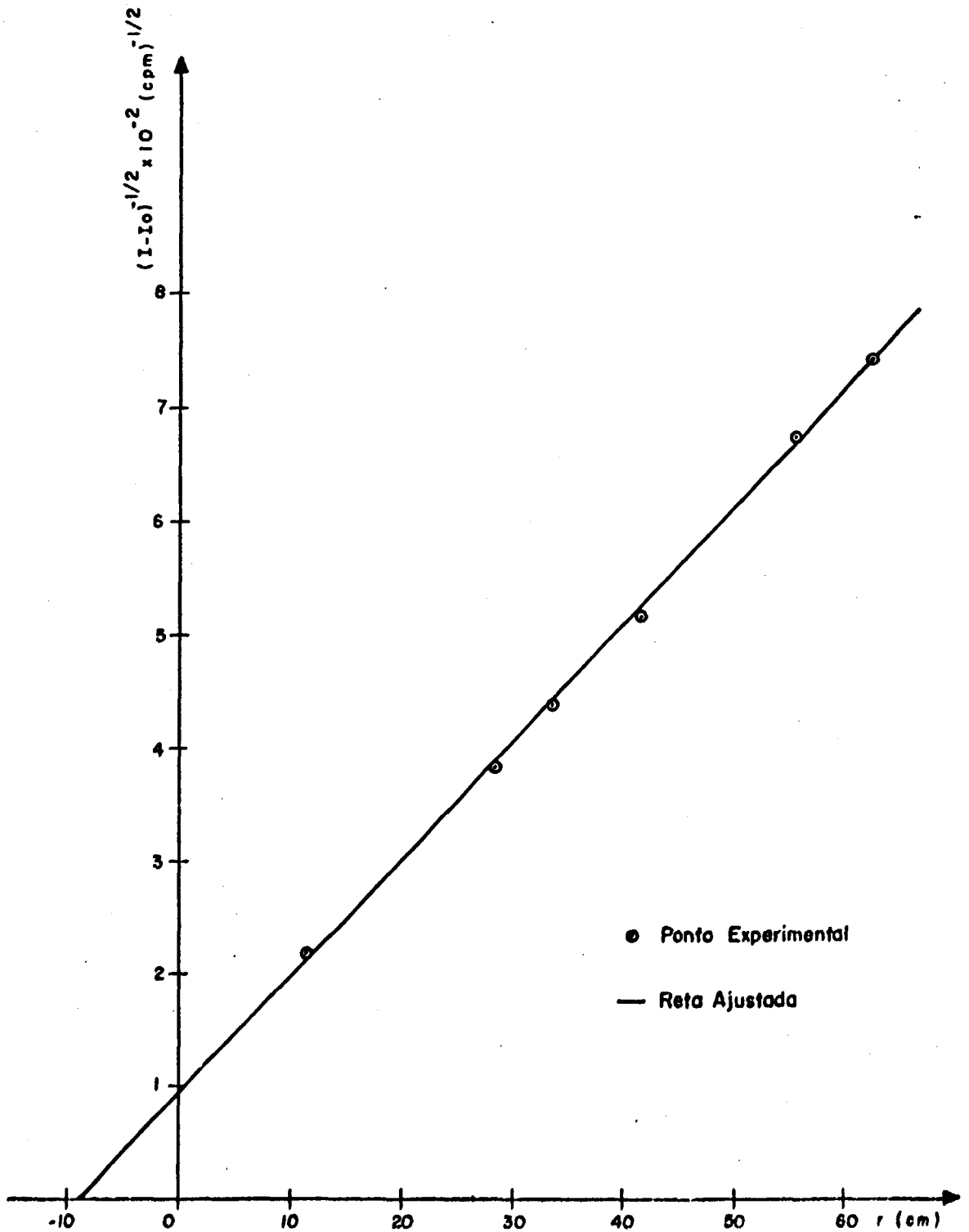


FIGURA 4.9
VISTA FRONTAL DO MODERADOR DE NEUTRONS CONSTITUÍDO
DE CHUMBO E PARAFINA/POLIETILENO

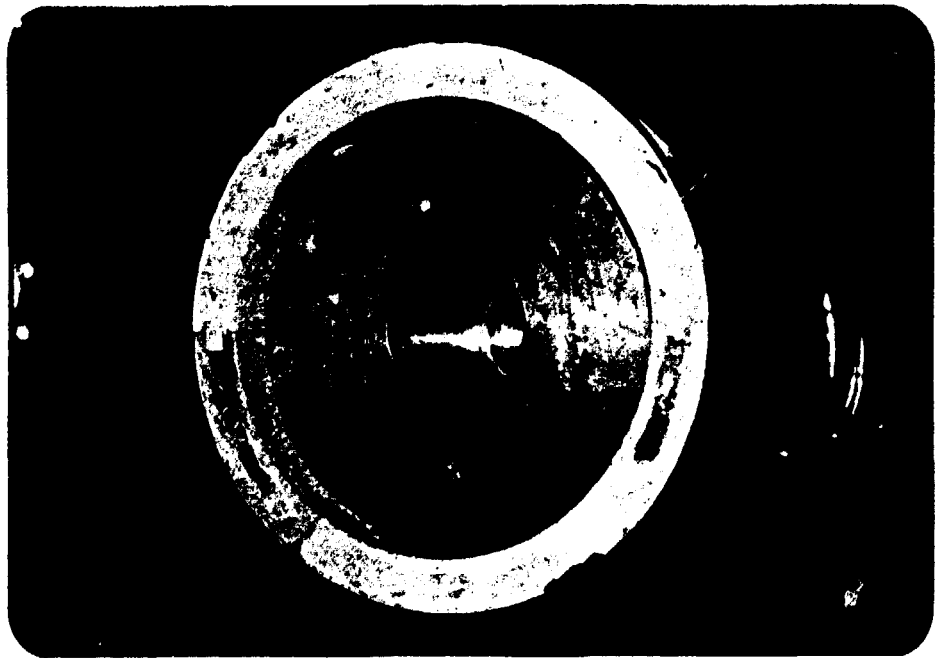


FIGURA 4.10

ESPECIFICAÇÃO DAS MEDIDAS DO MODERADOR DE CHUMBO

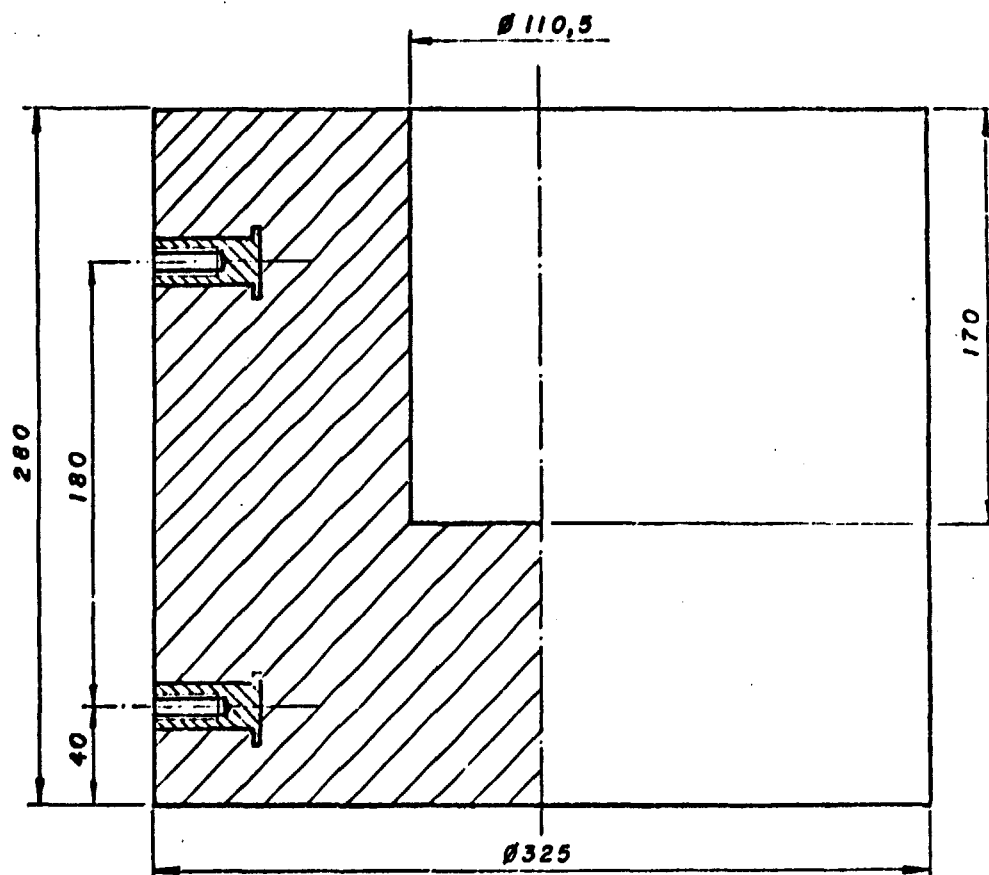


FIGURA 4.11

DETALHE DA CASCA CILÍNDRICA DO MODERADOR DE PARAFINA/POLIETILENO,
COM MACHO E FÊMEA PARA ENCAIXE

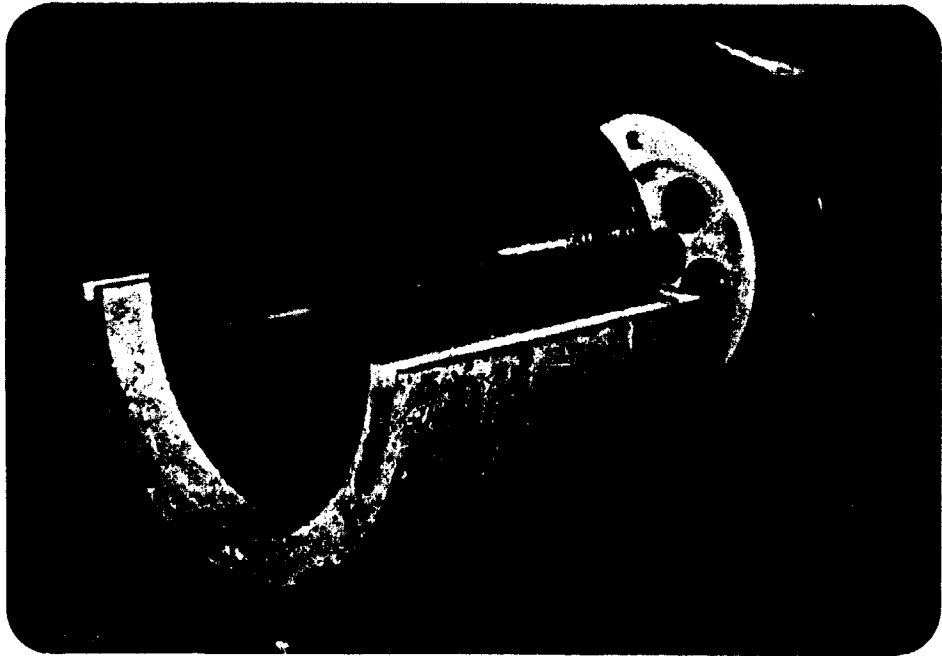


FIGURA 4.12

VISTA DO CONJUNTO MODERADOR E "LONG COUNTER"

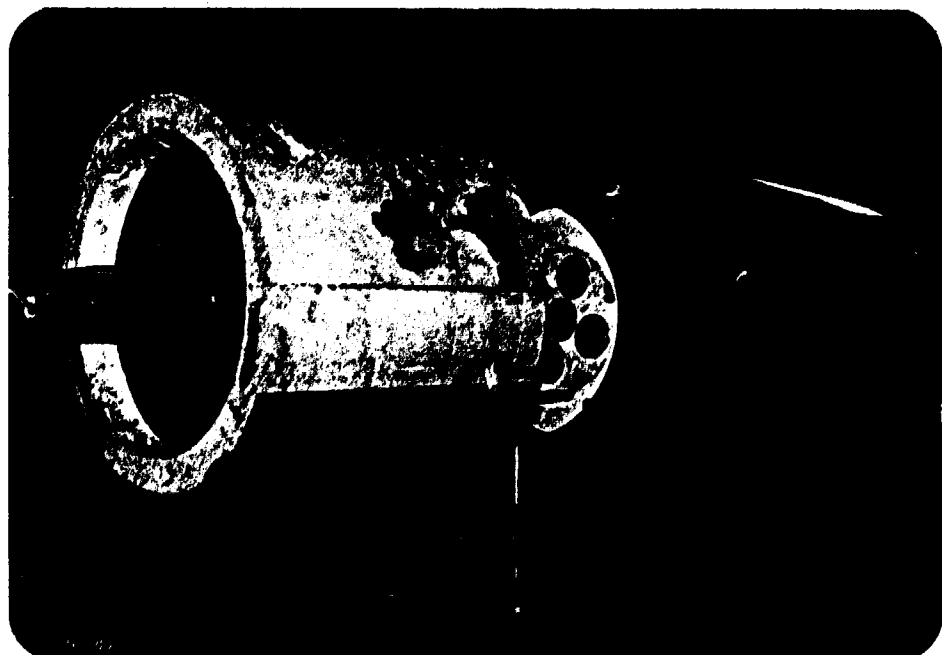


FIGURA 4.13

VISTA DO ARRANJO EXPERIMENTAL

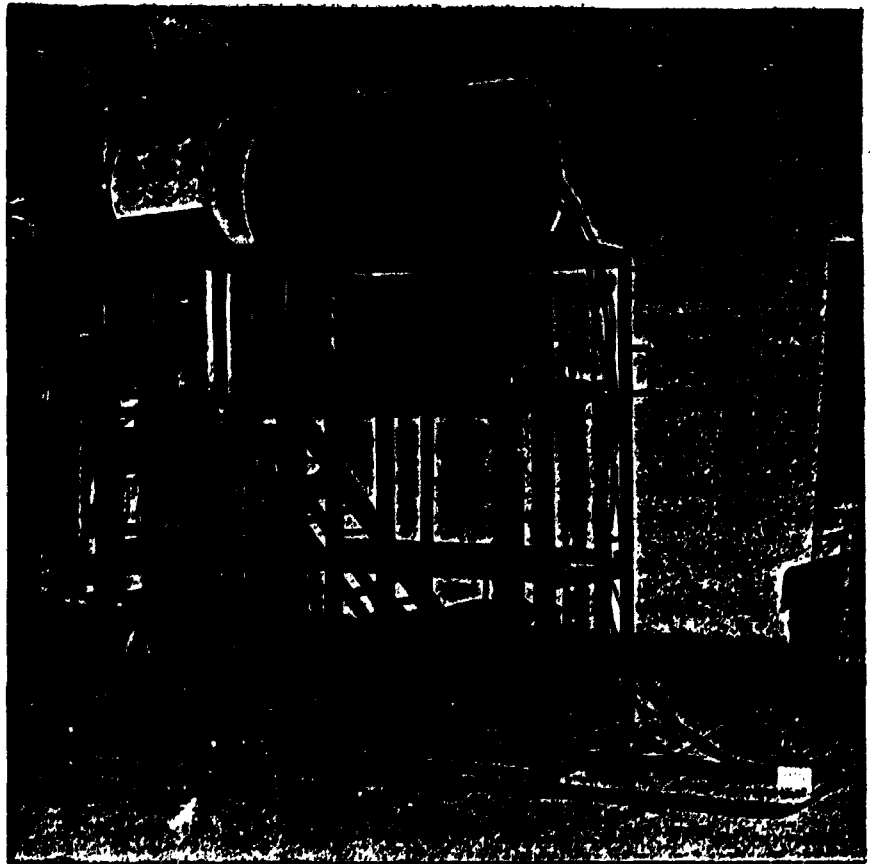


FIGURA 4.14

GERADOR DE NEUTRONS KAMAN TIPO A-1254

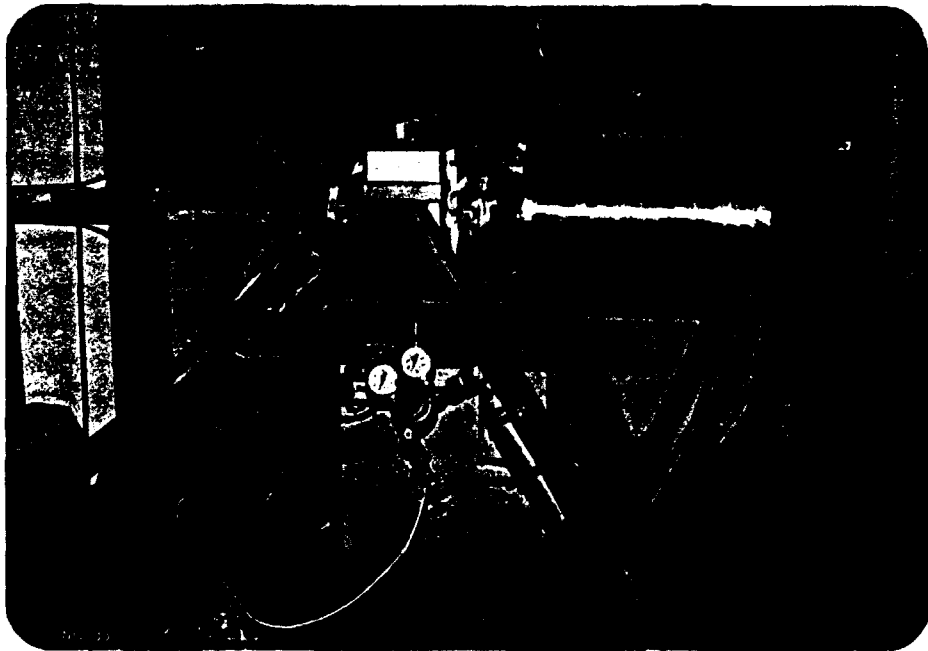
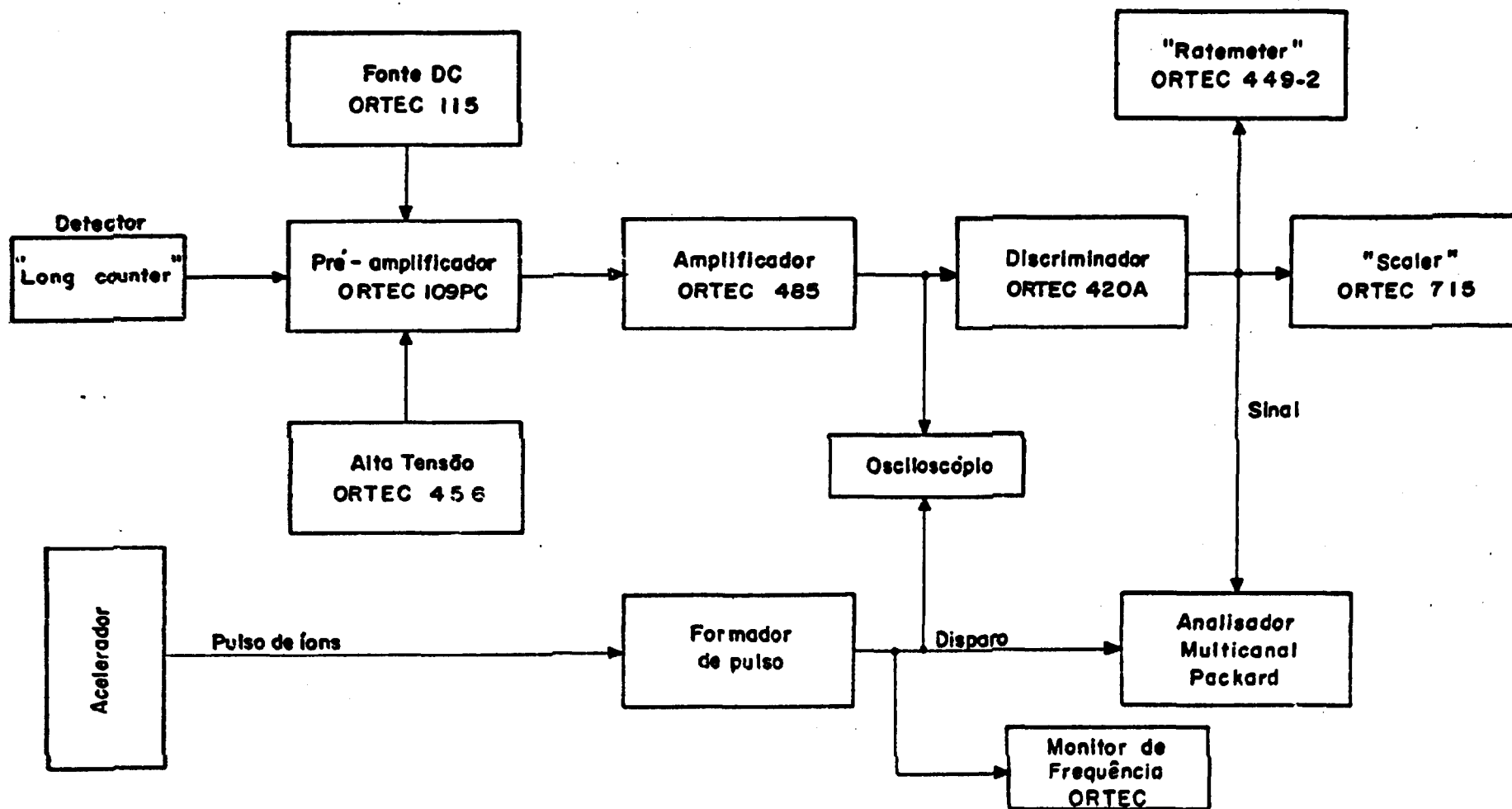


FIGURA 4.15

DIAGRAMA DE BLOCO DO SISTEMA DE CONTAGEM



5. MÉTODO EXPERIMENTAL

5.1 Determinação de Enriquecimento

Quando estão presentes numa amostra dois ou mais nuclídeos fissionáveis, a produção total de nêutrons atrasados é uma combinação das produções individuais dos diferentes nuclídeos. Nesse caso, é necessário interrogar a amostra com nêutrons de energias diferentes (ou diferentes espectros de energia) tantas quantos são os nuclídeos desconhecidos na amostra, a fim de analisá-los quantitativamente, aproveitando-se das variações com a energia das seções de choque de fissão desses nuclídeos.

Por exemplo, para uma amostra que contém dois nuclídeos fissionáveis, um tendo uma energia de limiar para fissões induzidas por nêutrons, a irradiação com nêutrons sublimiar e superlimiar [27,28] possibilita uma separação direta da resposta do nuclídeo físsil do fértil.

Para amostras que contém vários nuclídeos fissionáveis, a produção de nêutrons atrasados (DN) pode ser escrita [12]:

$$DN_p(E_i) = \sum_{j=1}^n A_{ij} m_{jp} \quad (5.1)$$

onde:

n = número de nuclídeos fissionáveis

E_i = energia do nêutron de interrogação

m_{jp} = massa do j -ésimo nuclídeo na amostra p

DN_p = taxa de contagem de nêutrons atrasados produzidos na amostra p.

Os coeficientes A_{ij} dependem da energia de inter-rogação, fluxo, das seções de choque de fissão, dos rendimentos de nêutrons atrasados e da eficiência de detecção e são obtidos pela irradiação de padrões com massas (m_j) ou enriquecimentos conhecidos, em cada energia E_j . Essa equação linear é aplicável somente para casos onde a multiplicação e absorção de nêutrons são desprezíveis.

Examina-se a seguir o caso de dois isótopos (p.ex. U-235 e U-238, como nas amostras analisadas neste trabalho), como exemplo de aplicação da equação (5.1). Considerando que o enriquecimento ou fração de massa é dado por:

$$F_{jp} = \frac{m_{jp}}{M_p} \quad (M_p = \text{massa total dos nuclídeos,} \\ \text{proporcional à massa total} \\ \text{da amostra})$$

e também que $F_{(j+1)p} = 1 - F_{jp}$, tem-se:

$$DN(E_1) = A_{11} F_{1p} M_p + A_{12} (1 - F_{1p}) M_p \quad (5.2)$$

Para determinar os coeficientes A_{ij} , irradiam-se no mínimo dois padrões, com enriquecimentos diferentes. No caso de se utilizarem dois padrões são obtidos:

- para o 1º padrão:

$$DN_1(E_1) = A_{11} F_{11} M_1 + A_{12} (1 - F_{11}) M_1 \quad (5.3)$$

- para o 2º padrão:

$$DN_2(E_1) = A_{11} F_{12} M_2 + A_{12} (1 - F_{12}) M_2 \quad (5.4)$$

Resolvendo essas equações para os valores das constantes A_{ij} , obtêm-se:

$$A_{12} = \frac{M_2 F_{12} DN_1(E_1) - M_1 F_{11} DN_2(E_1)}{M_1 M_2 (F_{12} - F_{11})}$$

$$A_{11} = \frac{M_1 (1 - F_{11}) DN_2(E_1) - M_2 (1 - F_{12}) DN_1(E_1)}{M_1 M_2 (F_{12} - F_{11})}$$

Dessa forma, amostras do mesmo tipo, irradiadas nas mesmas condições dos padrões, ou seja, mesma energia de in_{terrogação}, fluxo, eficiência de detecção, geometria de irradi_{ação}, etc, podem ter seus enriquecimentos determinados utilizando os valores das constantes acima na expressão obtida da equação (5.2):

$$F_{1p} = \frac{DN(E_1) - A_{12} M_p}{M_p (A_{11} - A_{12})} \quad (5.5)$$

ou, colocando-a na forma:

$$\frac{DN(E_1)}{M_p} = A_{12} + (A_{11} - A_{12}) F_{1p} \quad (5.6)$$

Vê-se que a resposta de nêutrons atrasados por unidade de mas sa varia linearmente com o enriquecimento, sendo A_{12} o inter- cepto e $(A_{11} - A_{12})$ o coeficiente angular da reta. Pode-se , dessa forma, construir uma reta de calibração $DN(E)/M_p$ em fun- ção do enriquecimento F_{1p} , a partir dos dados de irradiação de mais de duas amostras padrões, com um sô espectro de ener- gia de nêutron. Dessa reta, determina-se o enriquecimento de pastilhas (de mesma composição) sem ser necessário determinar os valores numéricos das constantes A_{ij} .

Por outro lado, se forem feitas duas irradiações (com espectros E_1 e E_2) num padrão, que contém dois nuclídeos quaisquer, serão obtidas as seguintes relações:

$$DN_1(E_1) = A_{11} F_{11} M_1 + A_{12} F_{21} M_1 \quad (5.7)$$

$$DN_1(E_2) = A_{21} F_{11} M_1 + A_{22} F_{21} M_1$$

O primeiro termo de cada uma dessas equações re - presenta a contribuição do nuclídeo 1 e o segundo do nuclídeo 2. Para cada um dos espectros, as contribuições do nuclídeo 1 em relação ao nuclídeo 2 serão respectivamente iguais a $(A_{11} F_{11}) / (A_{12} F_{21})$ e $(A_{21} F_{11}) / (A_{22} F_{21})$.

Portanto, a razão entre essas contribuições rela- tivas para os espectros E_1 e E_2 será:

$$DR = \frac{A_{12} A_{21}}{A_{11} A_{22}} \quad (5.8)$$

Essa grandeza é chamada razão de discriminação. Em geral a razão de discriminação entre os núclídeos j e $(j + 1)$, para espectros de energias E_j e E_{j+1} pode ser escrita [12]:

$$DR = \frac{A_{i,j+1} A_{i+1,j}}{A_{i,j} A_{i+1,j+1}} \quad (5.9)$$

A razão de discriminação é usada como um critério de comparação na escolha de um arranjo moderador adequado.

Para amostras de baixo enriquecimento, é necessário interrogar com espectro de energia tendo uma razão de discriminação alta, para fazer sobressair a resposta do elemento físsil em relação ao elemento fértil, mais abundante na amostra. Utiliza-se nesse caso, o método de abaixamento da energia, descrito no item 3.3. Por exemplo, nas medidas de enriquecimento de combustível de urânio, seria necessário escolher um moderador que apresentasse uma razão de discriminação (DR) de 20 ou mais, a fim de se obter um erro menor na medida isotópica, uma vez que existe uma correspondência direta entre essas duas quantidades [12].

A Figura 5.1 mostra a variação do erro na análise isotópica, como uma função da razão de discriminação, para diversos enriquecimentos [12].

5.2 Determinação de Massa

A irradiação com nêutrons de determinada energia de amostras contendo material físsil e fértil, com massas dife

rentes e mesmo enriquecimento, produz nêutrons atrasados, originários das fissões induzidas nas amostras, seguindo a seguinte relação:

$$DN_p(E_i) = B M_p \quad (5.10)$$

onde o coeficiente B da equação também é função da energia de interrogação, fluxo, seções de choque de fissão, produções de nêutrons atrasados e eficiência de detecção.

Essa equação é utilizada na construção da reta de calibração em massa, que é dada pela resposta de nêutrons atrasados de amostras utilizadas como padrões, $DN_p(E_i)$, em função de suas massas totais, M_p .

Portanto, é possível determinar a massa total de material fissionável em uma amostra, do mesmo tipo e irradiada nas mesmas condições dos padrões, através da reta de calibração, ou por:

$$M_p = \frac{DN_p(E_i)}{B}$$

com B determinado através da irradiação de padrões.

Interrogando-se amostras com um espectro de energia seguramente abaixo do limiar de fissão do nuclídeo fértil (p.ex. U-238) é possível determinar diretamente a quantidade de U-235 presente, usando a equação (5.1), na forma:

$$DN_p(E_i) = A_{11} m_{11} \quad (5.11)$$

onde o termo referente às fissões do U-238 se anula.

Dessa forma, ao invés de se ter a resposta de nêutrons atrasados em função da massa total, tem-se em função da massa de U-235.

5.3 Medidas

Para construção da curva de calibração em enriquecimento foram irradiadas, com o mesmo espectro de energia, quatro padrões de enriquecimentos conhecidos. Como padrões utilizaram-se pastilhas de dióxido de urânio (UO_2) naturais e ligeiramente enriquecidas no isótopo U-235, (1,98%, 2,80% e 3,38%) provenientes da CNEN, RBU⁽¹⁾ e KFA⁽²⁾ procurando-se formar conjuntos, para cada enriquecimento, com aproximadamente a mesma massa, conforme mostrado na Tabela 5.1.

Para construção da curva de calibração em massa foram selecionados quatro conjuntos de pastilhas enriquecidas a 3,38%, mas com massas diferentes (Tabela 5.2).

Para aumentar a discriminação entre U-235, em menor quantidade na amostra, do U-238, as pastilhas de UO_2 foram analisadas irradiando-as com um espectro de energia de nêutrons resultante da moderação dos nêutrons de 14 MeV pelo arranjo moderador $Pb/(CH_2)_n + CH_2 - 11/4$ cm (item 4.3).

Após o estabelecimento das condições de operação do multicanal, do pulso do acelerador e do sistema de contagem (ver Capítulo 4), os experimentos seguiram a seguinte ro

(1) Reaktor - Brennelement Union

(2) Kernforschungsanlage Jülich

tina de procedimento:

- colocação do conjunto de pastilhas no porta-amostra a uma distância aproximada de 10 cm do moderador e 3 cm do "long counter";

- irradiação prévia das amostras por dez minutos , a fim de se atingir o equilíbrio de nêutrons atrasados;

- irradiação das amostras por determinado período de tempo e armazenamento simultâneo da resposta do "long counter" no multicanal (em função do tempo);

- durante a irradiação, controle da taxa de contagem do detector, através do "ratemeter", da frequência de pulsação e da forma do pulso de nêutrons rápidos;

- registro em cada medida dos seguintes dados adicionais: identificação do conjunto de pastilhas, contagem integral do detector durante as irradiações, número total de pulsos durante o experimento (número de varreduras), tempo da irradiação e frequência de pulsação;

- determinação do "background" removendo as pastilhas de UO_2 da frente do feixe de nêutrons e mantendo o acelerador operando nas mesmas condições de irradiação das amostras.

TABELA 5.1

PASTILHAS DE UO_2 UTILIZADAS NAS MEDIDAS DE ENRIQUECIMENTO

Enriquecimento (%)	Massa (g)
0,720	53,3064
1,98	53,2958
2,80	53,2966
3,38	53,1328

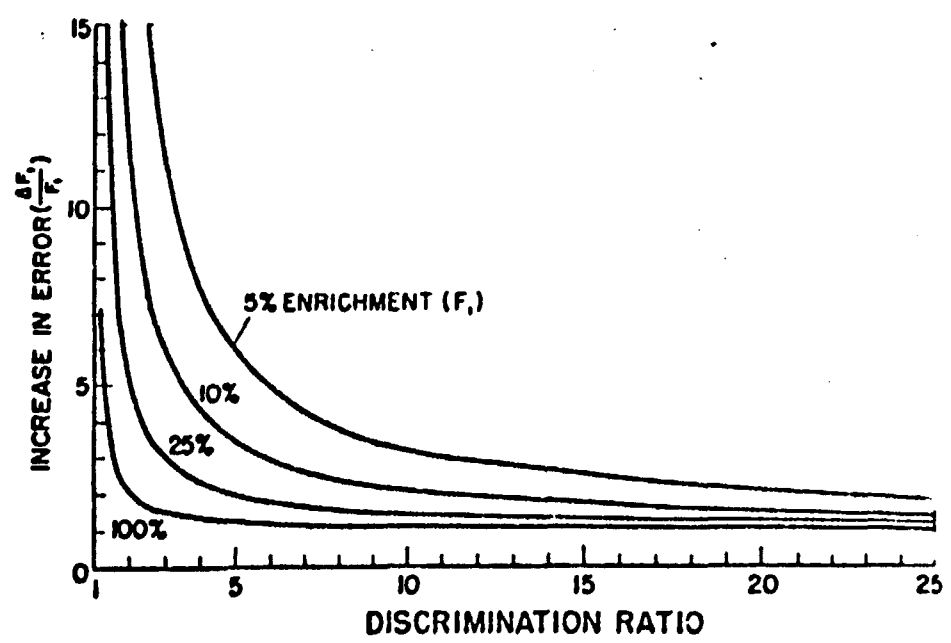
TABELA 5.2

PASTILHAS DE UO_2 UTILIZADAS NAS MEDIDAS DE MASSA

Enriquecimento (%)	Massa (g)
3,38	21,1910
3,38	42,6636
3,38	61,9272
3,38	84,9218

FIGURA 5.1

VARIAÇÃO DO ERRO NA ANÁLISE ISOTÓPICA EM FUNÇÃO DA RAZÃO DE DISCRIMINAÇÃO [12]



6. TRATAMENTO DE DADOS RESULTADOS

Através das listagens dos dados armazenados no multicanal, mostradas num caso exemplo nas Figuras 6.1 e 6.2, determinou-se ser suficiente considerar um tempo de espera de 30 ms entre o fim do pulso do acelerador e o início da contagem de nêutrons atrasados.

Depois, integraram-se as contagens nos canais finais, obtendo-se a resposta de nêutrons atrasados para cada conjunto de pastilhas de UO_2 pesquisado e também para o "background".

Os dados obtidos nas duas séries de medidas, ou seja, no conjunto de pastilhas com enriquecimentos diferentes e no outro com massas diferentes, mas com o mesmo enriquecimento, estão relacionados, respectivamente nas Tabelas 6.1 e 6.2, onde os termos têm os seguintes significados:

RLC - taxa de contagem integral do "long counter" corrigida pelo tempo de resolução;

t - tempo de duração de cada experimento;

NB - número de varreduras no multicanal;

CNA - contagem de nêutrons atrasados;

DN' - taxa de contagem de nêutrons atrasados normalizada.

O tempo de contagem necessário ao cálculo da taxa de contagem (DN') é dado por:

$$t_c = LC \times NC \times NB$$

sendo LC a largura do canal do multicanal e NC o número de canais considerados.

Os valores de DN' foram normalizados pela intensidade da fonte, utilizando-se para isso, como monitor, o próprio "long counter".

As Tabelas 6.3 e 6.4 mostram os resultados finais obtidos para enriquecimentos e massas diferentes, respectivamente, onde $\overline{DN'}$ é a taxa de contagem média de nêutrons atrasados, DN a taxa de contagem líquida de nêutrons atrasados e DN/M (na Tabela 6.3) é a taxa de nêutrons atrasados por unidade de massa.

DN' é uma variável aleatória extraída de uma população normal $N(\mu, \sigma)$, onde μ (média) e σ (desvio padrão) são ambos desconhecidos. A partir dos diversos valores observados de DN' obtêm-se a média $\overline{DN'} = \frac{\sum_{i=1}^n DN'}{n}$ e o desvio padrão s/\sqrt{n} amostral.

6.1 Reta de Calibração em Enriquecimento

A Figura 6.3, construída a partir dos dados da Tabela 6.3, mostra a resposta de nêutrons atrasados específica (DN/M), das pastilhas, em função de seus enriquecimentos (F).

A curva contínua, nessa figura, foi obtida ajustando por mínimos quadrados os pontos experimentais, por uma reta do tipo $y = a + bx$, conforme a equação (5.6) e obtendo-se os valores dos parâmetros a e b através da minimização do somatório dos quadrados dos resíduos ponderados [29]:

$$S = \frac{1}{n-p} \sum_{i=1}^n W_{y_i} (y_{i\text{cal}} - y_{i\text{obs}})^2$$

onde W_{y_i} é o inverso da variância amostral de y , n o número de pontos experimentais e p o número de parâmetros a calcular, que no caso é igual a 2.

Na solução desse problema admitiu-se que os dados experimentais satisfazem às seguintes condições:

- os valores x_i da variável x são bem determinados, então $\sigma_{x_i} = 0$;
- para cada valor x_i , y é uma variável aleatória normal de média desconhecida e desvio padrão σ desconhecido.

Os valores numéricos determinados dos parâmetros a e b são:

$$a = (0,124 \pm 0,014) \text{ cpm/g}$$

$$b = (0,169 \pm 0,006) \text{ cpm/\%g}$$

Portanto, a reta de regressão de y em x , que é a reta de calibração para medidas de enriquecimento (ver equação 5.6), é dada por:

$$\frac{DN}{M} = 0,124 + 0,169 F_C;$$

explicitando F_C (enriquecimento calculado):

$$F_C = \frac{DN/M - 0,124}{0,169} \quad (6.1)$$

Na Tabela 6.5 são comparados os enriquecimentos declarados das pastilhas de UO_2 e os calculados pela equação (6.1), mostrando ser boa a concordância entre eles e sendo o desvio relativo máximo estimado em 3,5% (em valor absoluto).

6.2 Reta de Calibração em Massa

Com dados da Tabela 6.4 constroi-se a Figura 6.4 onde tem-se a resposta de nêutrons atrasados (DN) das pastilhas em função da massa (M). A reta em traço contínuo é ajustada.

Como já visto na equação (5.10), a relação funcional entre a resposta de nêutrons atrasados e a massa é do tipo:

$$y = bx$$

Através do ajuste por mínimos quadrados dos pontos experimentais (Figura 6.4) pela função mostrada acima e ponderada pelo inverso da variância em y , obtém-se o valor do parâmetro b . Isso é feito minimizando o somatório:

$$S = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n W_{y_i} (y_i - bx_i)^2 ;$$

nesse caso também foi tomado $\sigma_{x_i} = 0$.

Então, o parâmetro b e o seu desvio padrão valem:

$$(b \pm \sigma_b) = (0,6760 \pm 0,0093) \text{ cpm/g}$$

e a reta de calibração para medidas de massa é dada por:

$$DN = 0,6760 \times M_c$$

ou

$$M_c = \frac{DN}{0,6760} \quad (6.2)$$

M_c é a massa calculada.

A Tabela 6.6 mostra os valores reais das massas dos conjuntos de pastilhas e os calculados pela equação (6.2). Também nesse caso a concordância é relativamente boa com desvio relativo, em valor absoluto, máximo de 4,2%.

6.3 Estimação por Intervalo dos Parâmetros a e b das Retas de Calibração

Na estimação por intervalo, conhece-se a distribuição amostral dos estimados (que é uma função dos valores observados) e para ela, calculam-se, com os valores observados na amostra, os extremos de um intervalo que conterá o valor do parâmetro, com uma probabilidade prefixada [30].

No presente caso, tem-se uma variável aleatória normal com μ e σ desconhecidos e deseja-se estabelecer, a partir dos dados observados, um intervalo de confiança para os parâmetros a e b. Nesse caso a variável tem uma distribuição de Student com ν graus de liberdade.

Então:

$$P\left(a - t \frac{s_a}{\sqrt{n}} \leq \mu_a \leq a + t \frac{s_a}{\sqrt{n}}\right) = 1 - \alpha$$

$$P\left(b - t \frac{s_b}{\sqrt{n}} \leq \mu_b \leq b + t \frac{s_b}{\sqrt{n}}\right) = 1 - \alpha$$

Essas expressões afirmam que \bar{e} de $(1 - \alpha)$ a probabilidade de que um intervalo, construído a partir dos dados amostrais, inclua entre seus limites a média μ .

Com um nível de confiança $(1 - \alpha)$ de 95% e $v = n - 2 = 25$ graus de liberdade encontrou-se numa tábua da distribuição de Student, $t = 2,060$. Nessas condições foram calculados os intervalos de confiança de a e b .

Para os parâmetros da reta ajustada referente \bar{a} .
Figura 6.3 (calibração em enriquecimento), tem-se:

$$(a \pm t\sigma_a) = (0,124 \pm 0,029) \text{ cpm/g}$$

$$(b \pm t\sigma_b) = (0,169 \pm 0,012) \text{ cpm/\%g}$$

E para a Figura 6.4 (calibração em massa), com $v = 26$ e $t = 2,056$:

$$(b \pm t\sigma_b) = (0,6760 \pm 0,0191) \text{ cpm/g}$$

6.4 Limite de Detecção

Limite de detecção de um procedimento é o valor mínimo de um sinal real acima do qual ele poderá ser detectado com uma probabilidade prefixada.

Sejam:

R - valor observado do sinal total

R_{bg} - valor observado do "background"

$R_s = R - R_{bg}$ - valor obtido para o sinal líquido.

A partir de uma resposta R_s , o critério estatístico para se decidir se existe ou não um sinal μ_s é feito através de testes de hipóteses ([31, 32]).

No presente caso, os dados experimentais, como já foi dito, têm uma distribuição normal com variância desconhecida, devendo σ ser substituído pela sua estimativa amostral

$$s = \sqrt{\frac{\sum (R_s - \bar{R}_s)^2}{n - 1}};$$

nessa situação utiliza-se a distribuição t de Student.

Formulam-se duas hipóteses mutuamente exclusivas, conforme mostrado em [31]:

$$H_0 : \mu_s = 0 \text{ - sinal não detectado}$$

$$H_1 : \mu_s > 0 \text{ - sinal detectado}$$

Erro do tipo I - rejeição de H_0 sendo ela verdadeira.

Sendo: $R_s \leq a$, então:

$$P(R_s > a/H_0) = \alpha, \quad \alpha \text{ - nível de significância do teste.}$$

Colocando em termos da variável t de Student, tem-se:

$$P\left(t > a \frac{\sqrt{n}}{s}\right) = \alpha$$

Então, a região de aceitação de H_0 é dada por:

$$R_s \leq t_\alpha \frac{s}{\sqrt{n}}$$

Erro do tipo II - aceitação de H_0 sendo ela falsa

$$P(R_s \leq t_\alpha \frac{s}{\sqrt{n}} / H_1) = \beta, \quad \beta - \text{é o risco de se cometer um erro do tipo II.}$$

Essa probabilidade em função de t é dada por:

$$P(t \leq (R_s - \mu_s) \frac{\sqrt{n}}{s}) = \beta$$

Com raciocínio análogo a [31], obteve-se a partir dessas considerações o limite de detecção:

$$LD = (t_\beta + t_\alpha) s / \sqrt{n} \quad (6.3)$$

A influência da variação de n sobre os riscos α e β é que para maiores valores de n correspondem distribuições mais concentradas, de menor variância. Assim, a acréscimos em n correspondem decréscimos dos riscos e vice-versa.

É comum calcular o limite de detecção tomando $\alpha = 5\%$ e a probabilidade de detecção $(1 - \beta) = 95\%$, sendo portanto o risco $\beta = 5\%$.

Em regiões de baixos sinais é válido considerar que $\sigma = \sigma_{bg}$, logo:

$$\sigma_s = (\sigma^2 + \sigma_{bg}^2)^{1/2} = \sigma_{bg} \sqrt{2}$$

Então, a equação (6.3) fica:

$$LD = \sqrt{2}(t_\beta + t_\alpha) \frac{s_{bg}}{\sqrt{n}} \quad (6.4)$$

6.4.1 Limite de detecção para enriquecimento

Na Figura 6.5 representa-se a resposta de nêutrons atrasados (DN) das pastilhas de UO_2 em função de seus enriquecimentos. O traço contínuo representa a curva ajustada pela função $y = a + bx$, conforme item 4.1.

Sendo $\sigma_{bg} = s_{bg}/\sqrt{n} = 0,57$ e os valores de $t_\alpha = t_\beta = 1,833$, tirados de uma tábua da distribuição de Student e considerando $\alpha = \beta = 5\%$ e $v = n-1 = 9$ graus de liberdade, calcula-se o limite de detecção no enriquecimento por:

$$LD = \frac{\sqrt{2}(t_\beta + t_\alpha)(s_{bg}/\sqrt{n})}{b} \quad (6.5)$$

onde $b = (8,97 \pm 0,31)$ cpm/% é o coeficiente angular da reta ajustada (Figura 6.5).

Então:

$$LD = 0,33\%.$$

6.4.2 Limite de detecção para massa

Como o valor do "background" nesse caso é o mesmo utilizado nos cálculos em função do enriquecimento e as probabilidades α e β são as mesmas então s_{bg}/\sqrt{n} , t_α e t_β têm os mesmos valores mostrados no item anterior.

Então, calculando-se o limite de detecção da massa pela equação (6.5), com $b = 0,6760$ (Figura 6.4), obtém-se :

$$LD = 4,4 \text{ g}$$

6.5 Aplicação da Reta de Calibração em Massa

Como exemplo de aplicação da reta de calibração em massa, Figura 6.4, usou-se a resposta de nêutrons atrasados, obtida para o conjunto de pastilhas de UO_2 , utilizado como padrão nas medidas de enriquecimento (3,38%) e com massa de 53,1328 g.

O valor de DN, resposta de nêutrons atrasados para esse conjunto (Tabela 6.3) é $(37,79 \pm 1,30)$ cpm. Levando esse valor na equação da reta de calibração em massa, equação (6.2), sendo o seu desvio padrão dado por:

$$\sigma_{M_c} = M_c \left[\left(\frac{\sigma_{DN}}{DN} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_b}{b} \right)^2 \right]^{1/2}$$

tem-se para o valor calculado da massa:

$$M_c = (55,90 \pm 2,07) \text{ g}$$

O desvio relativo entre o valor real da massa e o obtido através da equação da reta de calibração é -5,2%.

TABELA 6.1

DADOS EXPERIMENTAIS OBTIDOS PARA MEDIDAS DE ENRIQUECIMENTO

Enriquecimento = 3,38%				
t (min)	RLC (cpm)	NB	CNA	DN' (cpm)
60	1.923.737	33.601	1.113	61,14
90	1.919.826	50.410	1.624	59,59
30	1.857.607	16.825	509	57,84
30	1.638.485	16.859	457	58,75
30	1.595.730	16.797	487	64,52
Enriquecimento = 2,80%				
t (min)	RLC (cpm)	NB	CNA	DN' (cpm)
30	1.907.144	16.816	486	53,81
30	1.853.250	16.819	454	51,72
30	1.840.885	16.829	470	53,87
30	1.848.174	16.838	453	51,69
60	1.863.973	33.696	965	54,55
30	1.606.526	16.835	433	56,85
30	1.606.704	16.827	418	54,90
Enriquecimento = 1,98%				
t (min)	RLC (cpm)	NB	CNA	DN' (cpm)
30	1.897.001	16,815	369	41,08
30	1.950.419	16.803	426	46,16
30	1.839.372	16.805	432	49,62
30	1.844.308	16.886	437	49,82
60	1.853.804	33.688	841	47,82
30	1.793.772	16.841	368	43,26

TABELA 6.1 (CONTINUAÇÃO)

Natural = 0,720%				
t (min)	RLC (cpm)	NB	CNA	DN' (cpm)
30	1.834.183	16.788	293	33,79
30	1.838.262	16.784	329	37,86
80	1.921.435	45.479	888	36,09
30	1.905.114	16.796	337	37,40
30	1.882.072	16.786	304	34,17
30	1.836.638	16.801	326	37,51
30	1.810.803	16.797	317	37,01
30	1.855.025	16.849	296	33,62
30	1.870.225	16.847	309	34,83
"Background" pulsado (bg)				
t (min)	RLC (cpm)	NB	CNA	DN' (cpm)
30	1.917.502	16.799	174	19,18
30	1.943.743	16.784	195	21,23
30	1.761.988	16.866	201	24,02
30	1.710.088	16.759	195	24,16
30	1.678.798	16.283	170	21,44
30	1.656.697	16.792	184	23,48
30	1.659.971	16.800	182	23,17
30	1.617.744	16.811	191	24,94
30	1.633.173	16.866	163	21,02
30	1.596.936	16.783	175	23,19

TABELA 6.2
DADOS EXPERIMENTAIS OBTIDOS PARA MEDIDAS DE MASSA

Enriquecimento= 3,38%				
t (min)	RLC (cpm)	NB	CNA	DN' (cpm)
M = 21,1910 g				
30	1.869.882	16.828	323	36,45
60	1.876.448	33.631	691	39,01
30	1.639.162	16.756	287	37,28
30	1.683.221	16.756	325	40,92
30	1.688.395	16.815	255	32,04
30	1.666.228	16.815	275	35,12
30	1.661.883	16.808	302	38,51
30	1.628.466	16.814	314	40,72
M = 42,6636 g				
30	1.738.544	16.816	370	45,08
60	1.863.069	33.601	922	53,54
30	1.831.897	16.863	405	46,56
60	1.873.211	33.652	970	54,64
30	1.877.458	16.808	490	55,30
30	1.654.156	17.814	447	54,11
30	1.648.293	16.801	425	54,49
M = 61,9272 g				
30	1.833.911	16.787	555	64,21
30	1.835.496	16.788	555	64,35
30	1.757.649	16.774	487	59,24
60	1.785.554	33.572	1022	61,49
30	1.662.441	16.821	533	67,68
M = 84,9218 g				
30	1.788.489	16.815	586	69,20
30	1.697.362	16.769	604	75,35
30	1.696.924	16.766	630	78,64
30	1.688.483	16.768	689	86,41
30	1.652.849	16.818	686	87,64
30	1.651.295	16.822	668	85,40
30	1.649.820	16.824	649	83,41

TABELA 6.3

RESULTADO FINAL DA RESPOSTA DE NÊUTRONS ATRASADOS EM FUNÇÃO DO ENRIQUECIMENTO DAS PASTILHAS DE UO₂

F (%)	M (g)	\overline{DN}' (cpm)	$DN = \overline{DN}' - bg$ (cpm)	$\frac{DN}{M} \times 10^{-1}$ (cpm/g)
Bg		22,58±0,57		
0,720	53,3064	35,81±0,57	13,23±0,81	2,482±0,152
1,98	53,2958	46,29±1,44	23,71±1,55	4,449±0,291
2,80	53,2966	53,91±0,69	31,33±0,89	5,878±0,167
3,38	53,1328	60,37±1,17	37,79±1,30	7,112±0,245

TABELA 6.4

RESULTADO FINAL DA RESPOSTA DE NÊUTRONS ATRASADOS EM FUNÇÃO DAS MASSAS DAS PASTILHAS DE UO₂, COM ENRIQUECIMENTOS DE 3,38%

M (g)	\overline{DN}' (cpm)	$DN = \overline{DN}' - bg$ (cpm)
21,1910	37,51±1,05	14,93±1,20
42,6636	51,96±1,61	29,38±1,71
61,9272	63,39±1,43	40,81±1,54
84,9218	80,86±2,56	58,28±2,62

Os desvios padrões são dados por:

$$\sigma_{\overline{DN}'} = \frac{s}{\sqrt{n}}, \quad \sigma_{DN} = (\sigma_{\overline{DN}'}^2 + \sigma_{bg}^2)^{1/2}$$

$$\sigma \frac{DN}{M} = \frac{\sigma_{DN}}{M}$$

TABELA 6.5

COMPARAÇÃO ENTRE OS VALORES DOS ENRIQUECIMENTOS DECLARADOS DAS PASTILHAS DE UO_2 E OS CALCULADOS

$y = a + bx, \quad a = 0,124 \quad e \quad b = 0,169$			
F_r (%)	$\frac{DN}{M} \times 10^{-1}$ (cpm/g)	F_c (%)	$\frac{F_r - F_c}{F_r}$ (%)
0,720	2,482	0,735	- 2,1
1,98	4,449	1,91	3,5
2,80	5,878	2,75	1,8
3,38	7,112	3,48	- 3,0

TABELA 6.6

COMPARAÇÃO ENTRE OS VALORES REAIS E OS CALCULADOS DAS MASSAS DAS PASTILHAS DE UO_2

$y = bx, \quad b = 0,6760$			
M_r (g)	DN (cpm)	M_c (g)	$\frac{M_r - M_c}{M_r}$ (%)
21,1910	14,93	22,09	- 4,2
42,6636	29,38	43,46	- 1,9
61,9272	40,81	60,37	2,5
84,9218	58,28	86,21	- 1,5

FIGURA 6.1

PULSO DE NÉUTRONS ACUMULADO NUM TEMPO DE 80 MIN PARA
UM CONJUNTO DE PASTILHAS DE UO_2 NATURAL

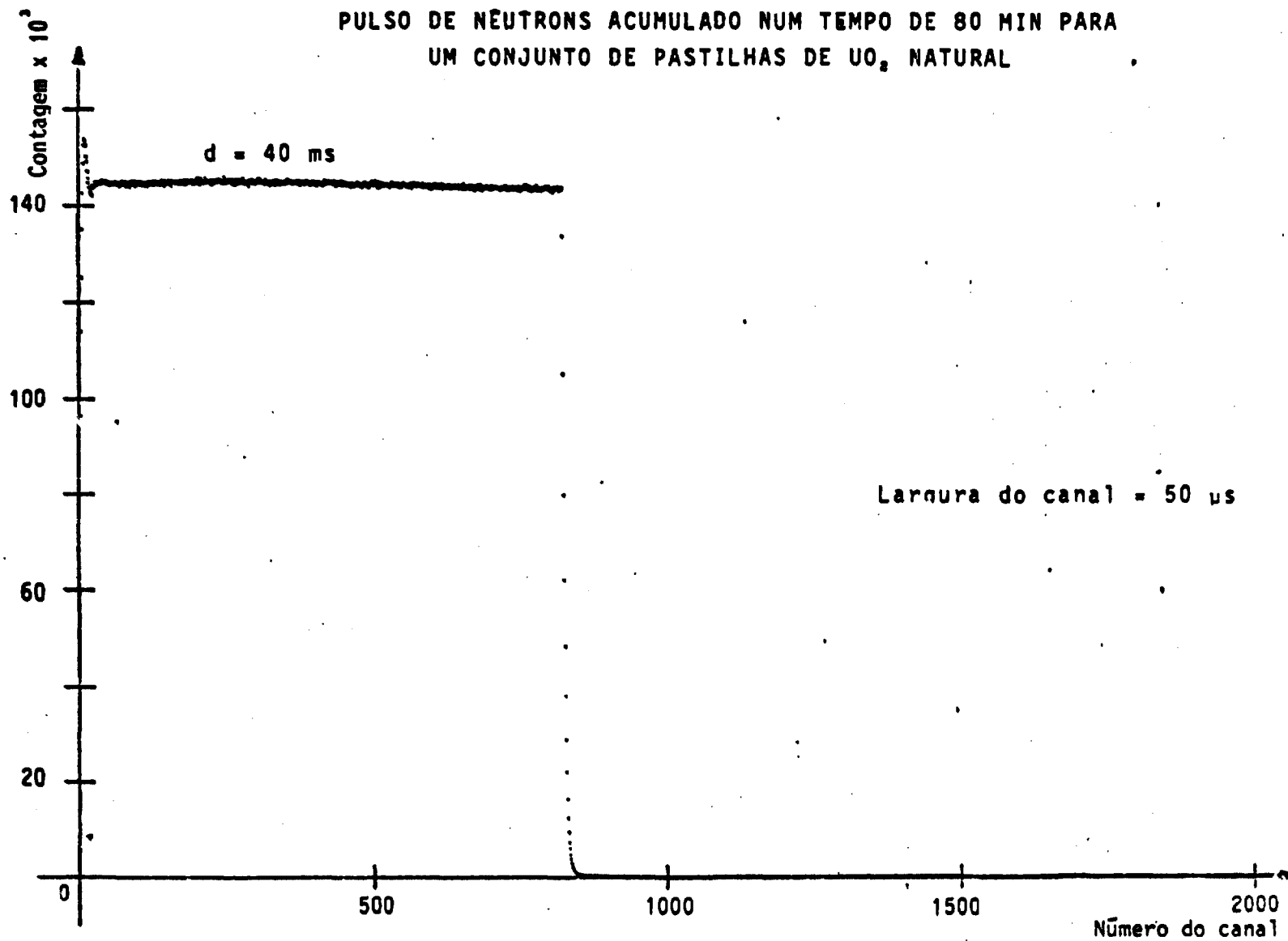


FIGURA 6.2

RESPOSTA DOS NEUTRONS ACUMULADA NUM TEMPO DE 80 MIN PARA UM
CONJUNTO DE PASTILHAS DE UO_2 NATURAL - DETERMINAÇÃO DO TEMPO DE ESPERA

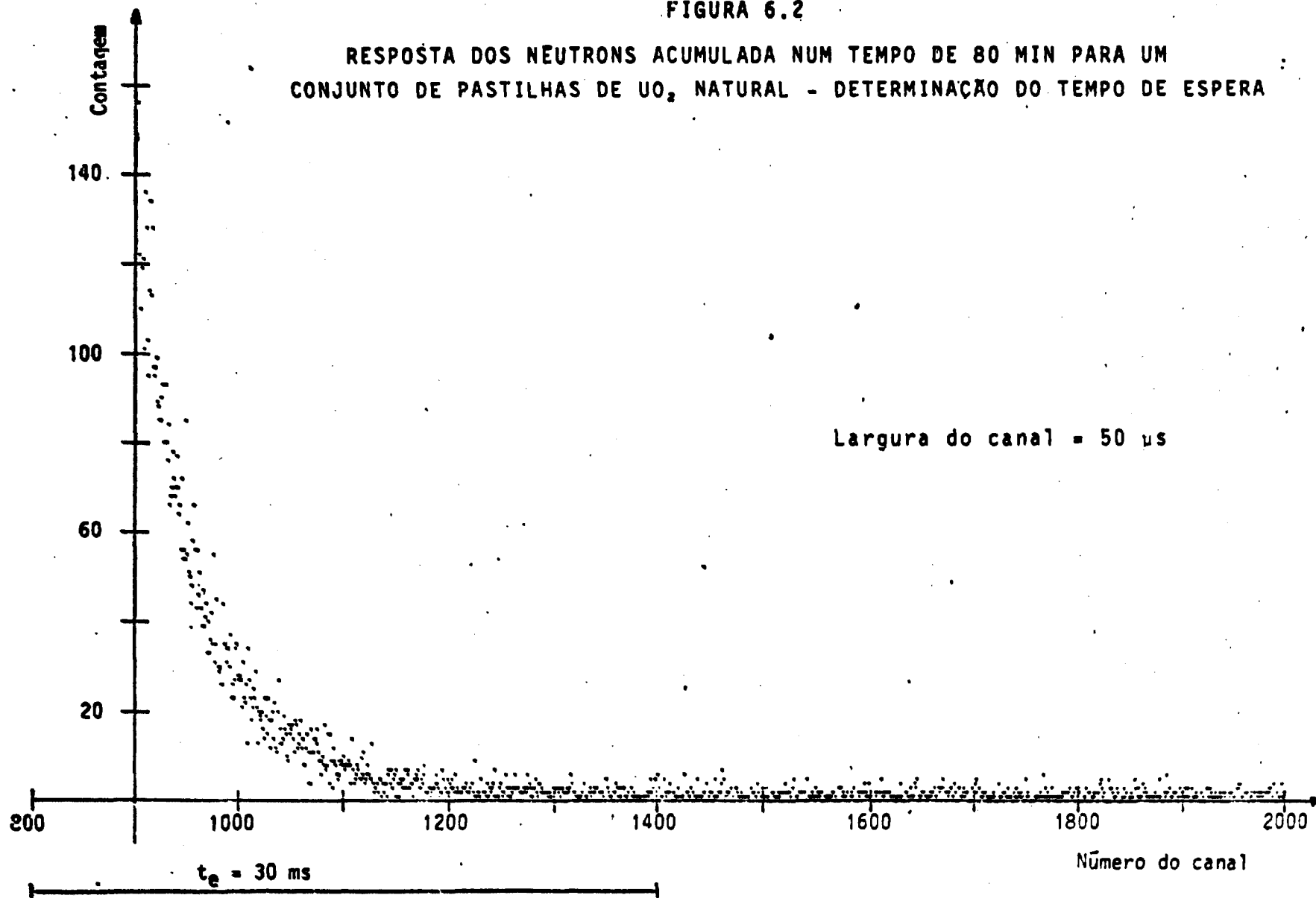


FIGURA 6.3

RETA DE CALIBRAÇÃO EM ENRIQUECIMENTO EM FUNÇÃO DA RESPOSTA DE NÊUTRONS ATRASADOS POR UNIDADE DE MASSA.

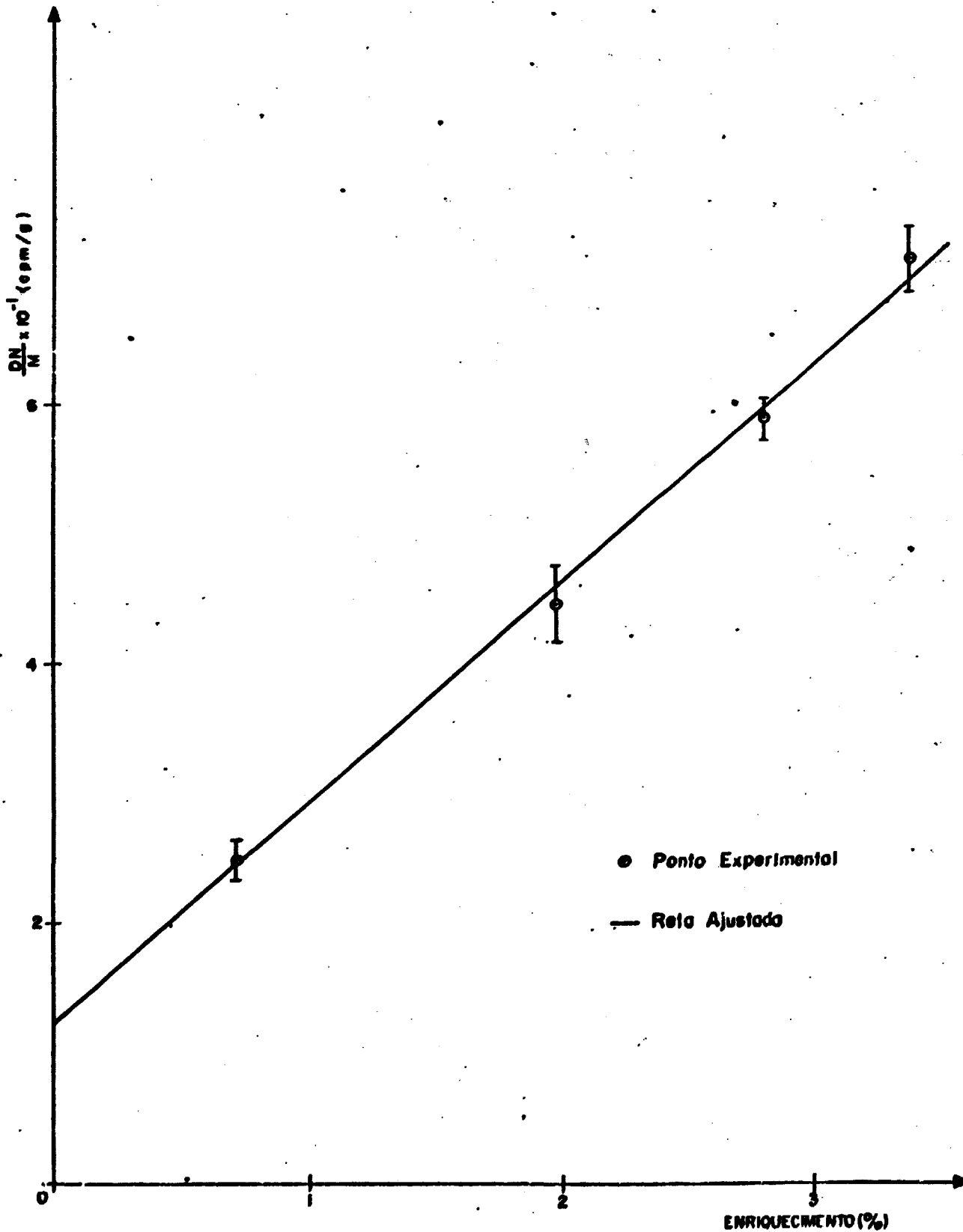


FIGURA 6.4
RETA DE CALIBRAÇÃO EM MASSA

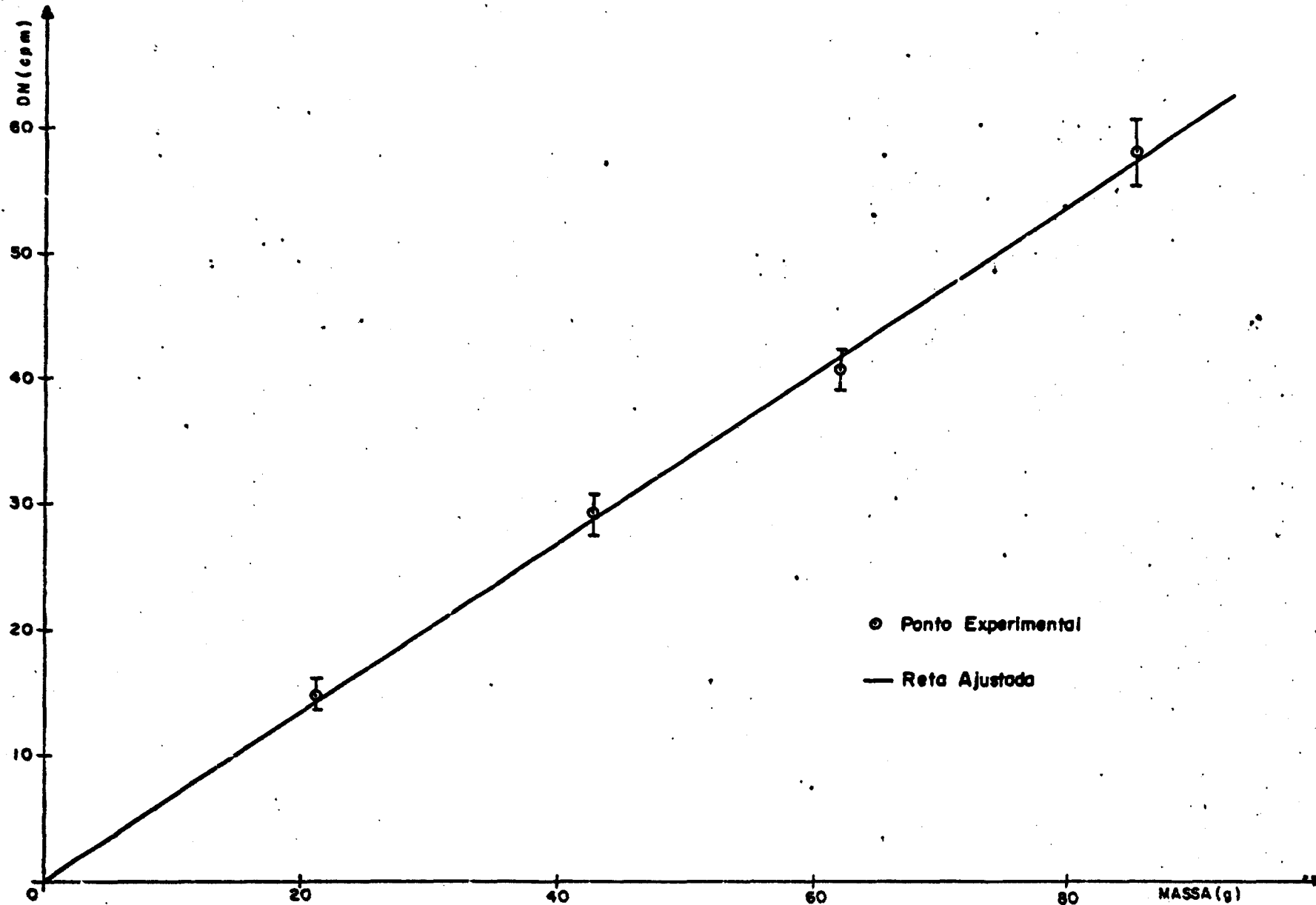
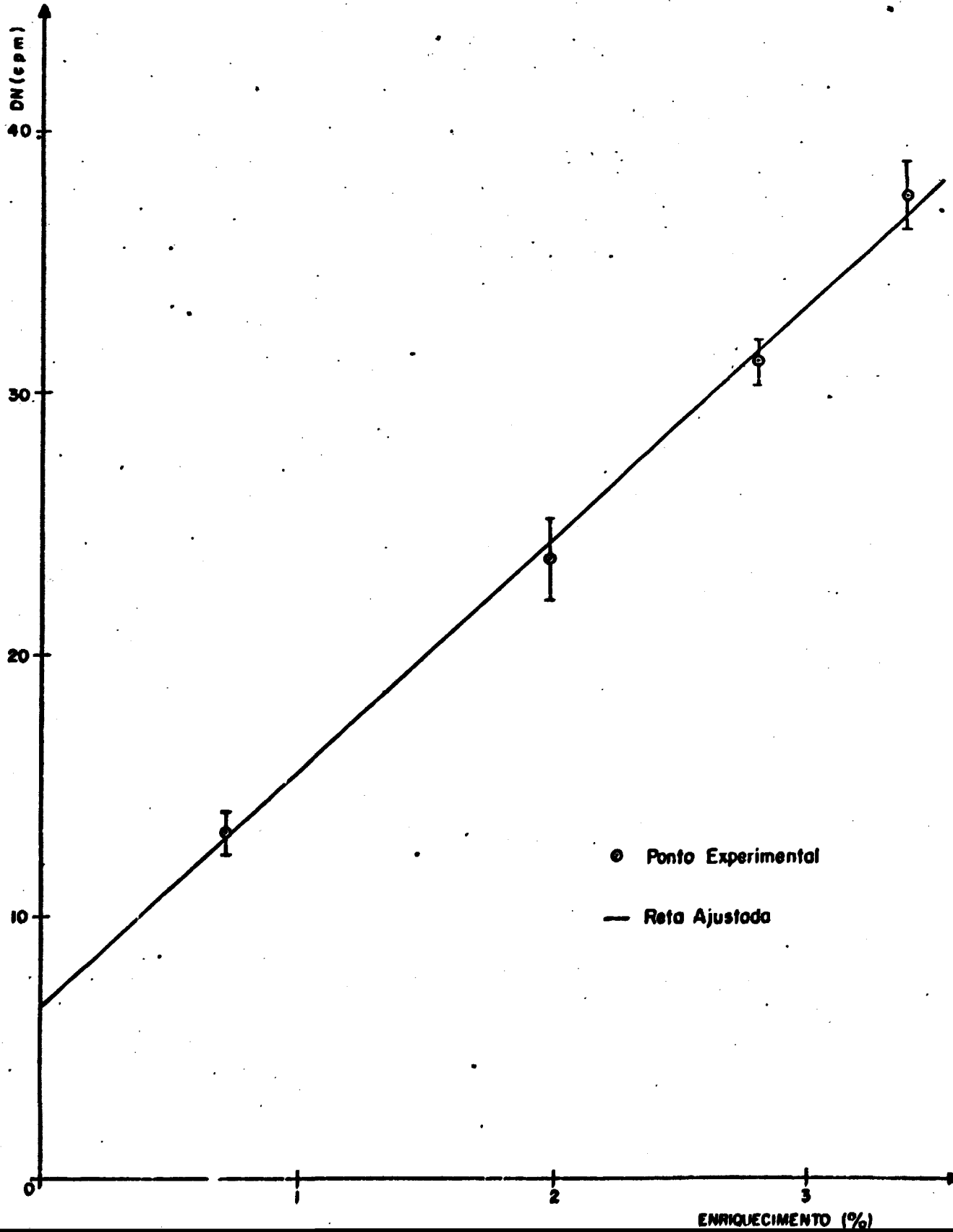


FIGURA 6.5

RÉTA DE CALIBRAÇÃO EM ENRIQUECIMENTO EM FUNÇÃO DA RESPOSTA DE NÊUTRONS ATRASADOS PARA PASTILHAS COM $M \approx 53,3g$



7. DISCUSSÃO E CONCLUSÕES

As possibilidades de se medir, pelo método proposto, o enriquecimento de urânio em amostras de composição química conhecida (UO_2) foram verificadas, obtendo-se, através do uso de quatro padrões, a reta de calibração em enriquecimento, Figura 6.3. O ajuste por mínimos quadrados dos dados de calibração forneceu desvios padrão de $\pm 11,3\%$ e $\pm 3,6\%$ para o intercepto e coeficiente angular, respectivamente.

Verificou-se também a viabilidade de utilizar o mesmo método para dosagem de urânio em amostras que não contêm outro elemento fissionável. Para isso, construiu-se, a partir das respostas de nêutrons atrasados de quatro conjuntos de pastilhas (UO_2), com o mesmo enriquecimento (3,38%), a reta de calibração em massa, Figura 6.4. Ajustando-a por mínimos quadrados obteve-se o desvio padrão de $\pm 1,4\%$ para o coeficiente angular da reta.

No tratamento estatístico dos dados obtidos, tanto para enriquecimento quanto para massas diferentes, foi adotado o critério do nível de confiança de 95%, nas estimativas dos intervalos de confiança dos parâmetros ajustados das retas de calibração e limites de detecção. Isso significa que, ao analisar pastilhas de UO_2 com teor isotópico mínimo de 0,33% em U-235 espera-se obter, em 95% dos casos, respostas de nêutrons atrasados que podem ser distinguidas do "background". Já a massa mínima de pastilhas que origina uma resposta que satisfaz essa mesma condição e com essa mesma probabilidade é 4,4 g. Essas conclusões obviamente são válidas apenas para as condições experimentais do presente trabalho (massas de amos-

tras, fluxo de nêutrons, geometria de irradiação e contagem) e considerando também o número de padrões utilizados e seus enriquecimentos.

A aplicação da reta de calibração em massa mostrou um desvio padrão de 3,7% e um desvio relativo de -5,2%, o que é um nível aceitável. Esses valores poderiam ser bem menores realizando-se um número maior de medidas, a fim de melhorar a estatística de contagem.

O N-17, formado pelas reações:



é um precursor de nêutrons atrasados e poderia causar interferência nas medidas. Essa interferência não foi detectada, o que pode ser explicado pelas seguintes razões:

- os limiares das reações são altos e a seção de choque (n,p) caí de 21,5 mb (para irradiação com nêutrons de 14,1 MeV) a cerca de 0,007 mb para nêutrons na região do espectro de fissão (segundo alguns autores). O abaixamento de energia do espectro reduz, portanto, consideravelmente a contribuição;

- as abundâncias isotópicas são baixas (0,037% para o ^{17}O e 0,204% para ^{18}O);

- tal contribuição atua como parcela constante nas respostas de nêutrons atrasados.

O método de análise não destrutiva desenvolvido neste trabalho pode ser empregado como sensor físico de nuclídeos fissionáveis diferentes, podendo portanto ser calibrado (para uma dada configuração de fonte e detector), para dar

uma indicação direta da quantidade de material físsil presente numa amostra ou sistema.

Para se determinar a razão de discriminação do método (DR), que fornece uma avaliação quantitativa do erro experimental cometido na análise, seria necessário o uso de outro espectro de energia dos nêutrons de interrogação na irradiação das amostras. Entretanto, devido a um problema apresentado pela bomba iônica do acelerador Kaman, de solução difícil em tempo hábil para a execução deste trabalho, foi impossível realizar tais medidas.

A dosagem de urânio em minério por irradiação no reator atômico IPR-R1 do CDTN, obtida a partir da resposta de nêutrons atrasados, tem sido realizada em rotina desde 1969, e essa rotina foi desenvolvida a partir do trabalho de dissertação de Mestrado apresentado ao CCTN [33], o qual também determinou, por esse mesmo método, a razão isotópica. A sensibilidade do sistema, encontrado em [33], é de 1 µg de urânio natural, obtida utilizando amostra de 1 g de minério com 1 ppm de urânio.

O reator possui características muito mais favoráveis à precisão e sensibilidade das medidas, considerando o fluxo de nêutrons, as seções de choque envolvidas muito superiores, as melhores condições de controle do fluxo, e a melhor razão de discriminação entre o U-235 e U-238, proporcionado pelo espectro de nêutrons do reator.

Outra dissertação sobre dosagem de urânio utilizando nêutrons de 14 MeV também foi realizada no CCTN [34]. Nesse trabalho foram empregadas irradiações contínuas, com transporte das amostras ao detector após a irradiação e contagem dos

nêutrons atrasados induzidos nas fissões. Não foi efetuada moderação dos nêutrons de interrogação. O limite de deteccão calculado por [34], usando o critério $LD=2\sigma_{BG}/b$ (b = coeficiente angular da reta: contagem versus teor de urânio), é de 100 ppm de urânio em amostras de 100 g contendo 1 g de urânio.

A utilização de gerador de nêutrons para a finalidade proposta apresenta interesse em situações em que não se disponha de reator apropriado, ou que não seja possível efetuar a irradiação da amostra no reator. Por outro lado, essa utilização em aplicações de rotina poderá eventualmente ter menor custo dependendo da precisão e sensilidades requeridas.

Em vista da necessidade crescente de um controle maior de materiais nucleares, devido a implantação de centrais nucleares no Brasil, o campo de salvaguarda nuclear poderá beneficiar-se deste método nas rotinas de fiscalização. Além disso, a possibilidade de identificação e análise de materiais fissionáveis, presentes numa amostra qualquer, pelo método dos rendimentos de nêutrons atrasados ("yields") associado com o abaixamento da energia dos nêutrons de interrogação, sugere que a técnica pode também ser aplicada em campo ("boca de mina") como uma avaliação preliminar da qualidade de amostras de minério.

REFERENCIAS

- [1] BOHR, N. & WHEELER, J.A. The mechanism of nuclear fission. Phys.Rev., New York, 56: 426, 1939.
- [2] TOMLINSON, L. Theory of delayed-neutron physics. Nucl. Technol., Tucson, 13: 42-51, 1972.
- [3] KEEPIN, G.R. Interpretation of delayed-neutron phenomena. J.Nucl.Energy, London, 7: 13-34, 1958.
- [4] KEEPIN, G.R. Physics of nuclear kinetics. Reading, Mass., Addison-Wesley, 1965.
- [5] MASTERS, F.C. et alii. The measurement of absolute delayed neutron yields from 3,1 and 14,1 MeV fission. Nucl.Sci.Eng., Hinsdale, 36: 202-208, 1969.
- [6] KEEPIN, G.R. Nondestructive detection identification and analysis of fissionable materials. In: SYMPOSIUM ON SAFE GUARDS RESEARCH AND DEVELOPMENT, Argonne National Laboratory, 26 June, 1967. Proceedings... Argonne, Argonne National Laboratory, 1967 (WASH-1076).
- [7] KEEPIN, G.R. Physics of delayed neutrons-recent experimental results. Nucl.Technol., Tucson, 13: 53-58, 1972.
- [8] KEEPIN, G.R. et alii. Delayed neutrons from fissionable isotopes of uranium, plutonium and thorium. J.Nucl. Energy, London, 6: 1-21, 1957.
- [9] KEEPIN, G.R. New methods and techniques in nuclear safeguard research and development. In: INTERNATIONAL CONFERENCE, CONSTRUCTIVE USES OF ATOMIC ENERGY, 1968, Washington, D.C., 10-15 Nov., 1968. Proceedings... Hinsdale, American Nuclear Society, 1969.

- [10] AUGUSTSON, R.H. et alii. Development of techniques for active and passive assay of fissionable materials. In: SYMPOSIUM ON SAFEGUARDS TECHNIQUES, Karlsruhe, 6-10 July, 1970. Proceedings... Vienna, IAEA, 1970. V.2, p.53-78.
- [11] EAST, L.V. & KEEPIN, G.R. Fundamental fission signatures and their applications to nuclear safeguards. In: SYMPOSIUM ON PHYSICS AND CHEMISTRY OF FISSION, Vienna, 28 July-1 Aug., 1969. Proceedings... Vienna, IAEA, 1969, p.647-664.
- [12] MENLOVE, H.O. et alii. A multi-spectra neutron irradiation technique for the nondestructive assay of fissionable materials. Nucl.Technol., Tucson, 10(3): 366-79, Mar.1971.
- [13] BROOKHAVEN NATIONAL LABORATORY. Neutron cross sections. 2ed. Upton N.Y., 1965/66. (BNL-325-Supl.2).
- [14] SMITH, DARRYL B. & MENLOVE, H.O. Tailored spectra from 14 MeV sources. Los Alamos, Los Alamos Scientific Laboratory/1968/(LA-DC-9756) (CONF-681101-27).
- [15] LOS ALAMOS SCIENTIFIC LABORATORY, Los Alamos. Parallel computational program. In: _____. Nuclear safeguards research and development; program status reports January 1967 - June 1969. Los Alamos, 1969. p.13-15. (LA-4320-MS).
- [16] LOS ALAMOS SCIENTIFIC LABORATORY, Los Alamos. Moderating assemblies for neutron beam tailoring. In: _____. Nuclear safeguards research and development; program status reports January-April, 1970. Los Alamos, 1970. p.8-10. (LA-4457-MS).

- [17] LOS ALAMOS SCIENTIFIC LABORATORY, Los Alamos. Neutron transport calculations. In: _____. Nuclear safeguards research and development; program status reports January-Mar.1958. Los Alamos, 1968. p.11-13. (LA-3921-MS).
- [18] HANSON, A.O. & MCKIBBEN. A neutron detector having uniform sensitivity from 10 KeV to 3 MeV. Phys.Rev., New York, 72: 673-677, 1947.
- [19] MASSAND, O.P. Investigation of some properties of the precision long counter. Luxembourg, Commission of the European Communities, 1972. (EUR-4383e).
- [20] EAST, L.V. & WALTON, R.B. Polyethylene moderated ^3He neutron detectors. Nucl.Instr. and Methods, Amsterdam, 72: p.161-166, 1969.
- [21] ALLEN, W.D. Flat response counters, In: MARION, J.B. & FOWLER, J.L. Fast neutron physics. New York, Interscience, 1960. Cap.3A, p.361-386.
- [22] WATT, D.E. & RAMSDEN, D. High sensitivity counting techniques. Oxford, Pergamon, 1964.
- [23] COX, A.J. et alii. The design of neutron howitzers- International Journal of Applied Radiation and Isotopes, Oxford, 19 (6): 541-544, 1968.
- [24] KNOLL, GLEN F. Radiation detection and measurement. New York, J.Wiley, 1979.
- [25] KAMAN NUCLEAR. Operational manual for the model A-1250 neutrons generator. Colorado Springs, Feb.1956.

- [26] FERNANDES, MÁRCIO P. Utilização de gravação de dados em fita cassete do LABFRE.PD. Belo Horizonte, NUCLEBRÁS/CDTN, 1985. (Nota Técnica DITES.PD-LABFRE.PD-DETR.PD-204/85).
- [27] KEEPIN, G.R. et alii. Application areas and results of non-destructive assay measurements. In: SYMPOSIUM ON SAFEGUARDS TECHNIQUES, Karlsruhe, 6-10 July, 1970. Proceedings... Vienna, IAEA, 1970, V.2, p.79-111.
- [28] LOS ALAMOS SCIENTIFIC LABORATORY, Los Alamos. Neutron interrogation and nondestructive assay of fissionable materials. In: _____. Nuclear safeguards research and development; program status reports Oct-Dec.1969. Los Alamos, 1969, p.1-9 (LA-4368-MS).
- [29] DEMING, W.E. Statistical adjustment of data. New York, Dover, 1964.
- [30] PAIVA, ANTÔNIO F.de. Testes de hipóteses. In: _____. Estatística. Belo Horizonte, UFMG, 1981. V.2, Cap.8, p.597-694.
- [31] CAMPOS, MAURÍCIO M. & PINTO, J.M.ANDRÁDE. Distribuição de frequência: aplicações no tratamento de resultados de análises. Belo Horizonte, NUCLEBRÁS/CDTN, 1981. (NUCLEBRÁS/SUPED/GT6Q/81).
- [32] CURRIE, L.A. Limits for qualitative detection and quantitative determination. Analytical Chemistry, Washington D.C., 40 (3): 586-93, Mar.1968.
- [33] TUPYNAMBÁ, G.A.C. Análise de rotina de urânio e tório pelo método dos nêutrons retardados. Belo Horizonte, Instituto de Pesquisas Radioativas, 1969. Tese de Mestrado.

- [34] CASAGRANDE, J.A. Dosagem de urânio e tório utilizando um gerador de nêutrons de 14 MeV e medida radiométrica. Belo Horizonte, Escola de Engenharia - UFMG, 1980 - Tese de Mestrado.