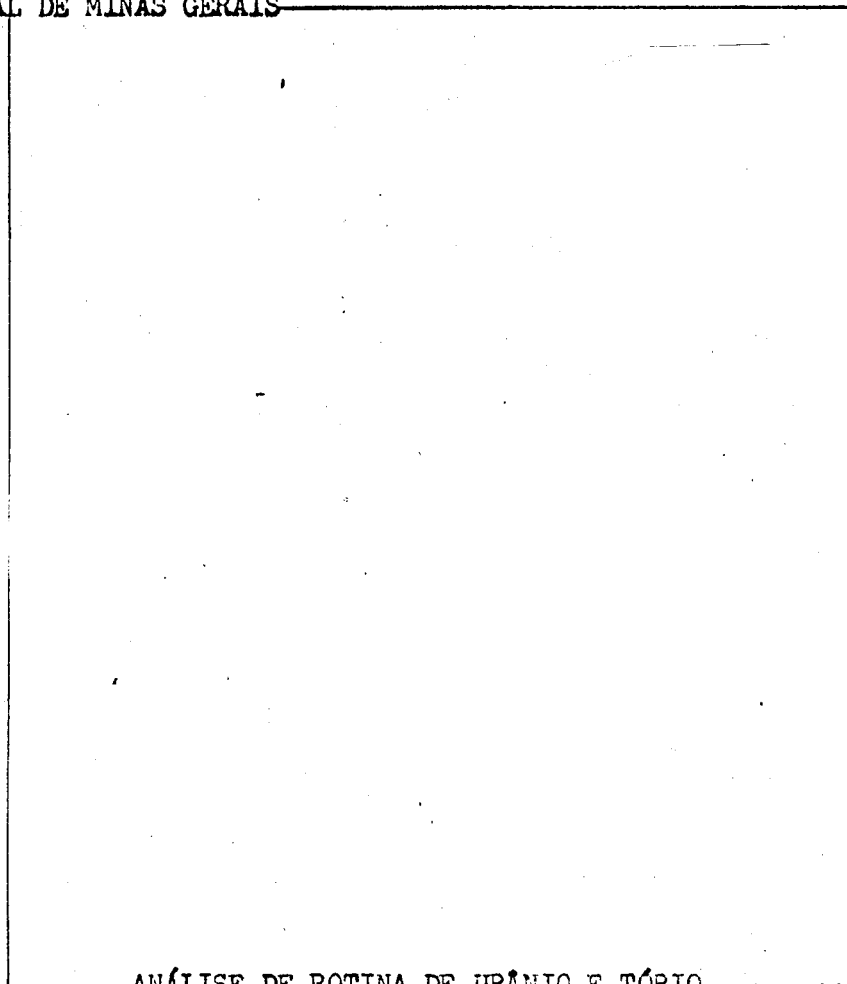
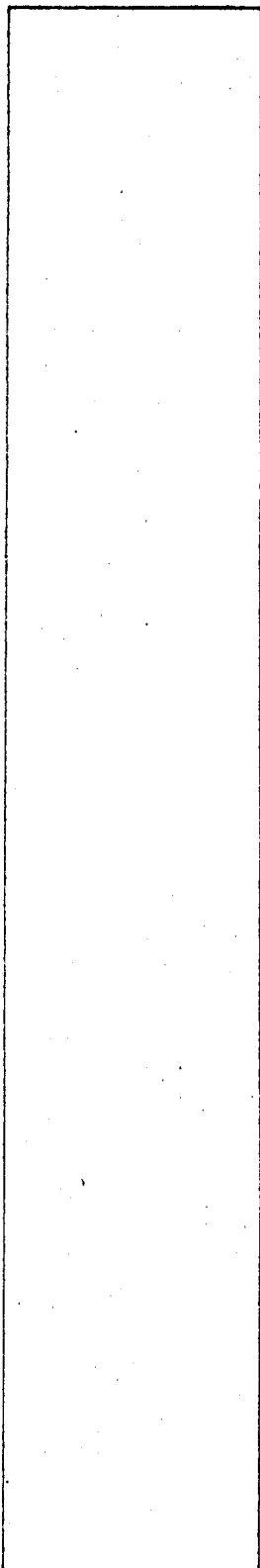
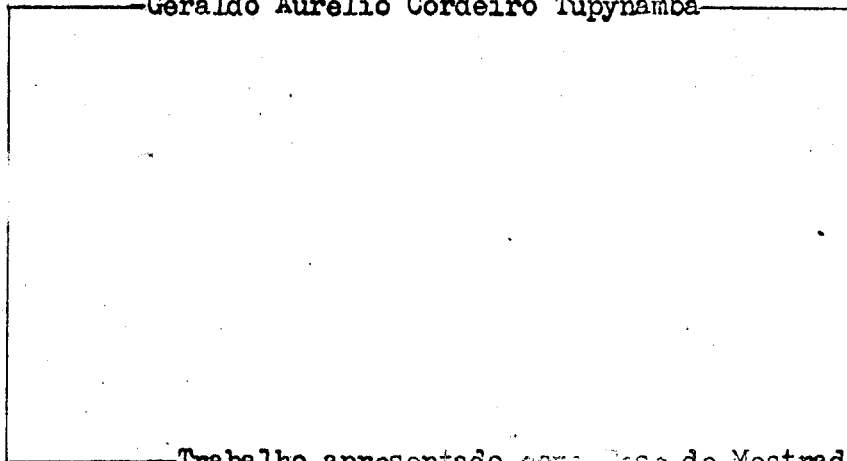


UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS



ANÁLISE DE ROTINA DE URÂNIO E TÓRIO
PELO MÉTODO DOS NEUTRONS RETARDADOS

Geraldo Aurelio Cordeiro Tupynambá



Trabalho apresentado como Tese de Mestrado
em Ciências Físicas Nucleares à
Universidade Federal de Minas Gerais.*

...bis dat qui cito dat...

ã Maria Luiza

TÓPICOS

HISTÓRICO À GUISA DE INTRODUÇÃO	1
1- CONSIDERAÇÕES PRELIMINARES	
1.1. Comparação dos métodos analíticos de urânio e tório	3
1.2. Os métodos de detecção de neutrons	7
2- FUNDAMENTOS TEÓRICOS	
2.1. O princípio do método	12
3- VERSÃO EXPERIMENTAL	
3.1. A aparelhagem experimental	23
3.2. A eletrônica associada	33
4- TEORIA DA OPERAÇÃO	
4.1. Sequência das operações de análise	41
4.2. Otimização dos tempo de irradiação e de contagem	44
4.3. Otimização do tempo de espera	48
5- INTERFERÊNCIAS NAS MEDIDAS	
5.1. Interferências I: Radiação gama e fotoneutrons	53
5.2. Interferências II: Outros neutrons retardados	59
5.3. Interferências III: Outras causas de desvio	64
6- PARTE TÉCNICA	
6.1. Cálculo da eficiência	68
6.2. Calibração	73
6.3. Discriminação entre o tório e o urânio	78
7- RESULTADOS E CONCLUSÕES	
7.1. Resultados	83
7.2. Aplicações adicionais	93
8- REFERÊNCIAS	
8.1. Referências	96

HISTÓRICO À GUIZA DE INTRODUÇÃO

Nos últimos anos o Instituto de Pesquisas Radioativas da Universidade Federal de Minas Gerais tem devotado uma grande porção de seu trabalho à pesquisa de métodos de análise e à análise rotineira de minérios de urânio e tório, principalmente ligado a um programa de pesquisa geológica e de mineração da Comissão Nacional de Energia Nuclear.

Quando da formação do Grupo de Medidas Físicas da Divisão de Ciências dos Materiais o diretor do Instituto, Prof. Milton Campos, procurou incentivar e apoiar o Grupo inclusive oferecendo recursos da Administração, caso necessário. Também sugeriu e propôs que o Grupo abordasse o problema de análise de urânio e tório pelo método dos neutrons retardados.

Vale citar este incentivo e apóio, — que se tornou material por diversas vezes,— pelo fator psicológico positivo que reavivava os bríos do Grupo nas fases em que o projeto parecia não ter possibilidade de chegar a termo.

Constituía o Grupo de Medidas Físicas os Engenheiros João B. de Siqueira, Arysio N. dos Santos e o autor. Mais tarde quando o Grupo fôï dosmembrado com a saída do eng^o João B. de Siqueira cuja presença era reclamada em setor de maior importância, o Grupo tentou se reorganizar em torno dêste trabalho passando o mesmo para a responsabilidade do autor que o pretendia para trabalho experimental de tese, enquanto o eng^o Arysio N. dos Santos assumia a sua orientação, como professor do Curso de Ciências e Técnicas Nucleares. Do Prof. Arysio N. dos Santos foi recebida não só a

orientação mas, também uma colaboração constante e efetiva durante todo o desenrolar do trabalho.

Colaboração não faltou durante os trabalhos experimentais e veio de todas as Divisões do I.P.R. De outra seção de nossa Divisão (Metalurgia Física) recebemos cádmio de pureza nuclear; da Divisão de Radioisótopos, empréstimo de aparelhos; da Divisão de Segurança e Radioproteção, o empréstimo dos detectores de BF_3 e fontes radioativas, além de um serviço de monitoração de radiação e, em particular, um mapeamento feito com filme dosimétrico pelo eng^o Delmiro S. Andrade na câmara de moderação de neutrons; da Divisão de Química material, drogas e um trabalho tedioso de confecção de padrões líquidos; da Divisão de Reatores, o serviço de irradiação de amostras, e em particular, a ajuda pessoal e prestimosa do eng^o J. Mendonça de Lima nas longas operações de irradiação; da Divisão de Matérias Primas, uma colaboração incessante de todo seu pessoal em assuntos que iam desde sugestões de calibração até series inteiras de dosagens por fluorescência de raios-X, fornecimento e preparação de material, não podendo deixar de citar nominalmente os eng^{os} Luiz de O. Castro, Hertz F. Batista, Maria José C. Mendes e em particular o eng^o Clécio C. Murta que entre muitas outras coisas incansavelmente fez e refez inumeráveis padrões, nas mais diversas formas, composição e concentração.

A êstes e aos citados anteriormente ficam registrados os agradecimentos e reconhecimento do autor, pois à sua colaboração é devido qualquer mérito que possa ter êste trabalho.

CONSIDERAÇÕES PRELIMINARES

1.1. COMPARAÇÃO DOS MÉTODOS ANALÍTICOS DE URÂNIO E TÓRIO

Para fazer uma comparação dos métodos analíticos de urânio e tório podemos classificar os métodos em geral em dois grandes grupos: os métodos químicos e os métodos físicos.

Métodos químicos - Os métodos químicos são caracterizados pela transformação química do material a ser analisado, chegando normalmente à separação e purificação de um composto do elemento em questão. Há casos em que é suficiente eliminar ou minimizar os elementos interferentes na medida final.

O método químico gravimétrico - Merece uma citação à parte pois é o único método absoluto de análise. Consiste na separação e purificação de um composto do elemento analisado que é finalmente dosado por pesagem. Sua precisão é limitada apenas pela extração e purificação de um lado e pela pesagem de outro. A qualidade da extração e purificação exige pessoal altamente especializado e trabalho criterioso, mesmo porque, uma variação na composição da rocha, frequentemente implica em mudança de técnica. A pesagem é tecnicamente limitada pela quantidade de material. Para precisão de 1% seria necessário tratamento da ordem de 1 kg de minério pobre, ainda que economicamente viável. Isto implica num volume grande de reagentes caros.

Em resumo: o método químico gravimétrico é um método demorado e caro, que exige pessoal altamente especializado, se bem que de grande precisão e o único absoluto.

Os outros métodos químicos trabalham com bem menor quantidade de material, sendo por isto mais baratos. Isto só é possível substituindo-se a pesada final por uma comparação com um padrão. Se de um lado isto significa maior facilidade na técnica, pois basta que os elementos interferentes na comparação sejam eliminados ou minimizados - ou seja, o problema de extração e pureza não é tão crítico - por outro lado perde-se o caráter absoluto e, possivelmente, se introduzem erros sistemáticos, além do que a precisão fica frequentemente limitada pela precisão do método de comparação. Estes métodos são chamados de volumétricos, potenciométricos, polarográficos, colorimétricos, de espectrofotometria, de cromatografia, de fluoroscopia, de espectrometria de massa, de análise por ativação, etc. conforme o tipo de comparação empregado. Sem dúvida, a análise por ativação é a mais específica, a que atinge melhor precisão típica, e também devido à sua ampla gama de concentração a mais desejável para centros de pesquisa que possuam um reator nuclear.

Resumindo: mesmo o método químico finalizado com análise por ativação é ainda demorado e relativamente caro e exige pessoal especializado; erros sistemáticos podem ocorrer e sua precisão não pode ser melhor que a das contagens.

Entre os métodos físicos, os de detecção da radioatividade natural, como a alfa-autoradiografia, gama-radiometria e a contagem de alfa, são longos, levando dias para determinação de conteúdo pobre e sua precisão dificilmente chega a melhor que 15%. Além disso, oferecem pouca discriminação entre o urânio e o tório.

A espectroscopia de emissão (espectrógrafo de arco) também é pouco sensível e leva a pequena precisão. O mais prático dos métodos físicos certamente é o da fluorescência de raios-X. Este método envolve uma certa manipulação da amostra para a preparação dos tabletes, os quais exigem uma homogeneidade na granulação, na compactação, e nas dimensões para resultados reproduzíveis. Seu maior inconveniente é sem dúvida as interferências da matriz que tornam a precisão da análise suspeita, particularmente quando se está operando com amostras de composição muito variadas. Neste ponto é de lastimar que as máquinas normais de raios-X não sejam capazes de excitar as camadas K dos elementos mais pesados, como o tório e o urânio, região esta que favoreceria sensivelmente a análise quanto às interferências da matriz.

Neste panorama, a análise por ativação dos neutrons retardados de fissão, que apresenta o aspecto pouco prático de ser necessário o uso de um reator nuclear, torna-se, num centro que possui um reator em utilização disponível, muito convidativa, pois, tem a seu crédito várias vantagens. A ausência quase total de manipulação de amostra, basta que a amostra caiba nos tubos comuns de polietileno usados como invólucros de irradiação. Em casos excepcionais se poderia usar apenas o tubo externo de plástico que comporta maior volume, ou mesmo os tubos de alumínio que têm ainda maior capacidade. O resultado é dado diretamente em conteúdo (massa) de urânio, assim, para se obter a percentagem basta apenas uma pesada.

Apresenta sensibilidade para dosagem de urânio até $1 \mu\text{g}$. É extremamente linear até $10^4 \mu\text{g}$. Para amostras muito ricas pode-se levar à faixa linear pela diminuição da massa da amostra ou ainda pelo abaixamento do fluxo, pois, também a dosagem é linear com o fluxo, e a não-linearidade manifesta-se primeiro com o tempo morto do contador. É isento de interferência de matriz porque a fissão é específica do urânio e do tório e outras reações que produzem neutrons retardados podem ter seus efeitos controlados. Além disso a discriminação do urânio e do tório é fácil, pela razão de cádmio. A precisão é muito boa, sendo limitada pela estabilidade do fluxo do reator que no nosso TRIGA é de 1%. Mesmo assim pode ser melhorada, monitorando-se o fluxo integrado no tempo de irradiação com um elemento padronizado, o sódio por exemplo. O tempo dispendido na análise é curto. Ótimos resultados são obtidos com 1 minuto de irradiação, 15 segundos de espera e 1 minuto de contagem; totalizando apenas 2 minutos e quinze segundos que numa sequência de amostras pode ser efetivamente reduzido à metade porque as operações são independentes. Isto apenas para uma medida, pois a determinação da razão de cádmio exige outra medida. A razão de cádmio nem sempre precisa ser feita, quando se quer dosar apenas o urânio e se sabe de antemão que o conteúdo de tório não é aberrante, já que a sensibilidade do urânio é muito maior. O método se presta assim a dosagens expeditas de triagem nas quais até a pesada pode ser feita posteriormente quando valer a pena. O ensaio é não-destrutivo, podendo-se repeti-lo na mesma amostra quantas vezes fôr necessário, bastando para isto uma espera de três minutos entre duas análises completas. Inclue-se ainda como vantagem, a possibilidade de se poder auto-

matizar as operações usando-se o transportador pneumático de amostras comandado pelo marcador de tempo da eletrônica de contagem. Isto trará ainda maior precisão na medida do tempo de irradiação e espera, e elimina a necessidade de pessoal especializado, exceto, evidentemente, o necessário para controlar o reator nuclear. Influências espúrias são efetivamente ausentes uma vez que se conseguiu um sistema praticamente sem contagem de fundo.

1.2. OS MÉTODOS DE DETECÇÃO DE NEUTRONS

Uma vez decidido fazer-se a análise do tório e do urânio observando-se os neutrons retardados de fissão, torna-se necessária a escolha de um método de detecção de neutrons, conveniente e compatível com a experiência: uma irradiação no reator torna radioativa a amostra, que é, em geral, uma matriz de composição variável e complexa.

É ponto capital diferenciar a radiação de neutrons, das outras radiações induzidas na matriz. Como a detecção de neutrons se faz indiretamente, ou seja, por sua conversão em radiação ionizante, há que se cuidar que a radiação convertida se distinga das outras radiações de mesma natureza induzidas na matriz.

A conversão de radiação de neutrons em energia radiante segue três processos básicos.

- 1 - Recuo de um núcleo com que o neutron colida.
- 2 - Emissão de partículas carregadas por meio de reações nucleares.
- 3 - A produção de núcleos radioativos causada por qualquer reação nuclear inclusive (n, γ) (Radioatividade induzida).

Medida por recuo de protons - No primeiro tipo de conversão, o recuo de protons é um tipo proeminente pela grande energia que os protons podem adquirir.

Neste caso os detetores principais são: câmara de Wilson com hidrogênio e emulsões fotográficas; câmaras de ionização, e cintiladores orgânicos.

nicos.

Os cintiladores orgânicos são os detetores mais eficientes e de fácil manejo. Como estes cintiladores são sensíveis a outros tipos de radiação, que no caso serão possivelmente mais abundantes, somente serão úteis com o uso de discriminador de pulsos e análise estatística.

As câmaras de ionização poderiam ser uma resposta ao problema no caso de neutrons de alta energia já que as radiações gama e beta são fracamente ionizantes quando comparados com o proton, não fossem elas tão lentas com tendência à saturação por largura de pulso.

A câmara de Wilson fica eliminada por se prestar a contagens individuais sendo, portanto, pouco indicada para sucessão rápida de eventos. As emulsões fotográficas são trabalhosas mas bem seletivas.

Reações nucleares - A reação $B^{10} (n, \alpha) Li^7$ é muito eficiente para neutrons lentos ou devidamente termalizados. Usado na câmara de ionização ou num contador proporcional como trifluoreto de boro, forma um detector muito seletivo. Também vidros dopados com boro formam cintiladores muito seletivos.

Uma possibilidade imaginada, mas não encontrada na bibliografia, seria a de dopar emulsão fotográfica com boro para se observar os rastros característicos das partículas formadas. Este seria também um processo muito seletivo.

A fissão é outro processo incluído nesta classe de detetores por reações nucleares e evidentemente pelos pulsos enormes de ionização será o mais seletivo dos métodos.

Radioatividade - A radioatividade induzida por neutrons é outro processo a se considerar. Além de ser de baixa eficiência não é seletivo pois o resultado seria mascarado por todas as radiações da matriz. Mas pode-se imaginar um elemento no qual seja induzido uma radiação beta-mais e uma geometria apropriada para detecção de destruição de par de eletrons o que aumentaria consideravelmente a seletividade, mas ainda comprometida com as radiações capazes de formação de par no local de contagem, como os gamas muito energéticos.

Enfim, como os neutrons serão provavelmente minoria na radiação induzida deve-se dar ênfase na escolha do método de detecção, primeiro à seletividade, depois à eficiência intrínseca do detector.

nicos.

Os cintiladores orgânicos são os detetores mais eficientes e de fácil manejo. Como estes cintiladores são sensíveis a outros tipos de radiação, que no caso serão possivelmente mais abundantes, somente serão úteis com o uso de discriminador de pulsos e análise estatística.

As câmaras de ionização poderiam ser uma resposta ao problema no caso de neutrons de alta energia já que as radiações gama e beta são fracamente ionizantes quando comparados com o proton, não fossem elas tão lentas com tendência à saturação por largura de pulso.

A câmara de Wilson fica eliminada por se prestar a contagens individuais sendo, portanto, pouco indicada para sucessão rápida de eventos. As emulsões fotográficas são trabalhosas mas bem seletivas.

Reações nucleares - A reação $B^{10} (n, \alpha) Li^7$ é muito eficiente para neutrons lentos ou devidamente termalizados. Usado na câmara de ionização ou num contador proporcional como trifluoreto de boro, forma um detector muito seletivo. Também vidros dopados com boro formam cintiladores muito seletivos.

Uma possibilidade imaginada, mas não encontrada na bibliografia, seria a de dopar emulsão fotográfica com boro para se observar os rastros característicos das partículas formadas. Este seria também um processo muito seletivo.

A fissão é outro processo incluído nesta classe de detetores por reações nucleares e evidentemente pelos pulsos enormes de ionização será o mais seletivo dos métodos.

Radioatividade - A radioatividade induzida por neutrons é outro processo a se considerar. Além de ser de baixa eficiência não é seletivo pois o resultado seria mascarado por todas as radiações da matriz. Mas pode-se imaginar um elemento no qual seja induzido uma radiação beta-mais e uma geometria apropriada para detecção de destruição de par de eletrons o que aumentaria consideravelmente a seletividade, mas ainda comprometida com as radiações capazes de formação de par no local de contagem, como os gamas muito energéticos.

Enfim, como os neutrons serão provavelmente minoria na radiação induzida deve-se dar ênfase na escolha do método de detecção, primeiro à seletividade, depois à eficiência intrínseca do detector.

Com o critério da seletividade praticamente amarramos nossa escolha dentro da classe dos detetores cujo princípio de funcionamento é uma reação nuclear.

Dentre os detetores baseados em reação nuclear de neutrons temos que decidir entre a câmara de ionização com trifluoreto de boro, o contador proporcional com trifluoreto de boro e a câmara de ionização com urânio (câmara de fissão).

Esta última, já foi dito, é a mais seletiva, mas sua eficiência é baixa; os dois primeiros não são tão seletivos mas de eficiência maior (da ordem de 50% de eficiência intrínseca). De modo que o critério da seletividade quando confrontado com a eficiência deixa um impasse. Temos que entrar na operação e na eletrônica associada para uma decisão final.

As câmaras de ionização têm tendência à saturação pela largura dos pulsos quando estes são frequentes. Considerando que a meia-vida efetiva dos neutrons retardados é muito curta isto parece um argumento sério contra a utilização destas câmaras. Por outro lado a eficiência dos contadores proporcionais é relativamente baixa para gamas, além disso os pulsos elétricos provenientes da detecção dos gamas tem sua amplitude uma ordem de grandeza menor que os pulsos da detecção de neutrons.

Além disso, o uso de discriminação por forma de pulso permite uma discriminação de neutron contra gama da ordem de 1.000 : 1 ; mesmo em larga faixa de energia (100 KeV a 10 MeV) e em regime de pulso rápido (~ 50 ns de duração). O pulso rápido é desejável por permitir alta velocidade de contagem. Com pulsos mais largos e faixa de energia mais estreita é talvez possível melhorar de uma ou duas ordens de grandeza a discriminação. Uma discussão mais detalhada desta parte está no projeto da eletrônica associada. Não podemos deixar de considerar também algumas técnicas simples, que no fundo constituem simplesmente as boas normas de contagem, por exemplo, o uso de uma blindagem de chumbo de cerca de 2 cm de espessura eliminará todos os alfas e betas e suas radiações secundárias e atenuará consideravelmente os gama (um fator de ~ 100) sem afetar os neutrons apreciavelmente. É possível portanto, em princípio pelo menos, elevar a seletividade dos contadores proporcionais com trifluoreto de boro a pé de igualdade com as câmaras de fissão. Como já têm a seu favor a eficiência, sua escolha parece natural.

A título de ilustração, a tabela I oferece a comparação feita por G. Frayssé num anteprojeto de detecção de neutrons térmicos para um estudo experimental de espectroscopia de neutrons por tempo de voo na Euratom (Isra-⁽¹⁾pra).

T A B E L A I

COMPARAÇÃO DE DETECTORES PARA NEUTRONS TÉRMICOS

REAÇÃO UTILIZADA	TIPO DE DETECTOR	EFICIÊNCIA INTRÍNSECA	RESOLUÇÃO TEMPORAL	LARGURA DA 1/2 ALTURA	SENSIBILIDADE A GAMAS	GAMAS DEBILITADAS e/ DESORBITAÇÃO
$B^{10} (n, \alpha) Li^7$	Cont. proporc.	46%	1,4 μs	40%	muito fraca	muito fraca
	Cintil. Líquida	98%	0,2 μs	80%	elevada	0,2%
	Cintil. ZrO ₂ P ¹⁰	34%	0,1 μs	-	fraca	fraca
$Li^6 (n, \alpha) T$	Cintil. Li ⁶ (Eu)	96%	0,1 μs	10%	muito elevada	0,2%
	Cintil. Líquida	27%	0,05 μs	60%	elevada	0,2%
	Vidros dopados Li ⁶	97%	0,01 μs	30%	elevada	0,3%
n, γ	Cintil. Líquida (Gd)	93%	0,05 μs	40%	elevada	0,2%
	Cintil. Líq. (Gd, Sm)	30%	0,05 μs	40%	elevada	0,3%
$He^3 (n, p) T$	Cont. proporc.	62%	1 μs	20%	fraca	muito fraca

2.1. O PRINCÍPIO DO MÉTODO

Fundamentalmente, o método é um processo de ativação. Contudo, distingue-se da ativação em geral por se medir o fluxo de neutrons retardados. Esta diferenciação que à primeira vista poderia parecer qualitativa ou acadêmica leva na prática a caracterizações interessantes.

Primeiro, que sendo a natureza da radiação neutrônica diferente das demais radiações pode nos levar a empregar um método de detecção específica, que teria não somente alta eficiência em detrimento das outras radiações, como também uma conversão em pulso elétrico de natureza tal, que permita o reconhecimento dos pulsos provenientes da detecção de neutrons, dos outros pulsos elétricos correspondentes à detecção de radiação de outra natureza.

Está ligada a este raciocínio a escolha do detetor proporcional contendo BF_3 . Este detetor de paredes metálicas relativamente grossas é insensível à radiação ionizante— beta (+) e (-) e alfa — incapaz de penetrar seu interior. Por seu turno a radiação gama é altamente penetrante e por isso mesmo de baixa eficiência. Contudo, seria ingenuidade confiar apenas na baixa eficiência da detecção de gama para separá-la da detecção de neutrons uma vez que gama é uma radiação muito abundante em qualquer material ativado ao passo que neutron é uma radiação modesta, quando presente. Confiamos mais na análise dos pulsos obtidos, que têm forma e amplitudes diferentes, para discriminar as duas radiações. Discriminação esta, diga-se de passagem, que provou ser absoluta na prática, como será descrito na teoria

da operação mais adiante. A detecção específica de neutrons é a chave de uma análise limpa por ativação.

→ Há um segundo fator oferecido pela natureza que é a raridade das reações nucleares que produzem neutrons. A ativação que leva à emissão de neutrons é característica quase exclusiva dos nuclídeos fissionáveis; com exceção de alguns nuclídeos leves capazes de emitir neutrons, somente alguns produtos de fissão têm tal propriedade. Mesmo reações dentro da câmara de contagem que levam à produção neutrons prontos são raras, e exigem condições especiais para se realizarem. Estas fontes espúrias de neutrons não prejudicam a medida, e são mais largamente discutidas, sob o título de interferências, mais adiante.

São muitos os nuclídeos passíveis de fissão induzida por irradiação de neutrons, contudo, do ponto de vista de análise de minério, somente os naturais têm interesse. Este conjunto engloba o elemento tório que é monoisotópico (Th^{232}) e o elemento urânio, constituído principalmente de U^{238} ; o U^{235} representa apenas 0,72% da abundância isotópica. Outros elementos passados susceptíveis de fissão induzida formam núcleos compostos de energia acima do espectro energético dos reatores, tornando sua probabilidade de fissão nula.

Tanto o U^{238} como o Th^{232} têm seção de fissão nula na região de energias baixas, apresentando um limiar de fissão em torno de 1,2 MeV para o U^{238} e 1,9 MeV para o Th^{232} . Já o U^{235} tem a seção de fissão característica de $1/\sqrt{E}$ nas energias baixas com uma ressonância em 0,3 eV. Enquanto que o U^{238} e Th^{232} têm, mesmo acima do limiar de fissão uma seção de fissão inferior a um barn, o U^{235} apresenta uma seção de fissão de 578 barns à energia de 0,025 eV— que é o valor convencional para se tabelar as seções de choque térmicas. Isto faz corresponder uma seção de fissão para o urânio natural de 4,2 barns nas energias térmicas. Estas considerações têm relêva nas medidas, uma vez que se utiliza reator térmico para irradiação de ativação. Se se trata de um minério de urânio em que o tório não esteja anormalmente presente— com isto queremos dizer um minério que não contenha vinte ou mais vezes menos urânio que o tório— podemos avaliar o conteúdo de urânio com apenas uma medida, pois podemos desprezar a atividade do tório comparada à do urânio.

Em qualquer caso, quando se tratar de conhecer tanto o con-

teúdo de tório como o de urânio, ou ainda quando se quizer o conteúdo de urânio com maior precisão serão necessários duas medidas, a primeira de ativação total e a segunda para se determinar a razão de cádmio da mistura, do que se poderá calcular a proporção dos elementos. Para isto, na fase de calibração, foram feitas as razões de cádmio do urânio natural e do tório - para o espectro de neutrons do nosso reator.

Fragmentos de fissão. Há no processo da fissão a formação de núclídeos, aos pares, com massa em torno da metade da massa do núcleo fissionado, além das mais diversas partículas emitidas. Estes fragmentos de fissão não-simétrica, são distribuídos, em massa, em torno da massa média que é ligeiramente menor do que a metade da massa do núcleo fissionado. Em suas características gerais as curvas de produção (probabilidade) de fragmentos de fissão dos núclídeos fissionáveis são bem semelhantes entre si, apresentando duas corcovas razoavelmente simétricas e suaves, exceto pelos pontos em torno dos núclídeos de números mágicos. (Fig. 1)

Entretanto, número de massa por número de massa, elas não podem coincidir já que partem de núcleos com diferentes massas. Pode haver até variação de cem vezes na probabilidade de produção de um certo núclídeo para fissões de diferentes origens. Mesmo para um mesmo núcleo fissionado, a distribuição de fragmentos será diferente, para diferentes energias do neutron causador da fissão. ⁽³⁾ É importante ter este fato em mente para se entender a variação da vida média dos grupos de neutrons retardados, para diferentes classes de fissão como veremos adiante.

Os elementos fissionáveis tem na constituição de seu núcleo uma proporção de mais ou menos 2,6 neutrons para cada proton, ao passo que os elementos correspondentes à meia massa dos fissionáveis guardam uma proporção de 2,3 neutrons para cada proton nos espécimens estáveis. Neste caso a fissão, mesmo com a perda de um ou alguns neutrons prontos, levará à formação de fragmentos ricos em neutrons.

O processo de emissão de neutrons é um processo rápido, mesmo na escala nuclear. Quando o núcleo excitado é de vida longa, outros processos radioativos - emissão de beta e gama - entram em competição com o de emissão de neutron, inibindo-o. Não é de se esperar que haja um núcleo radioativo de vida longa emissor de neutron. Por outro lado, para compensar o dese-

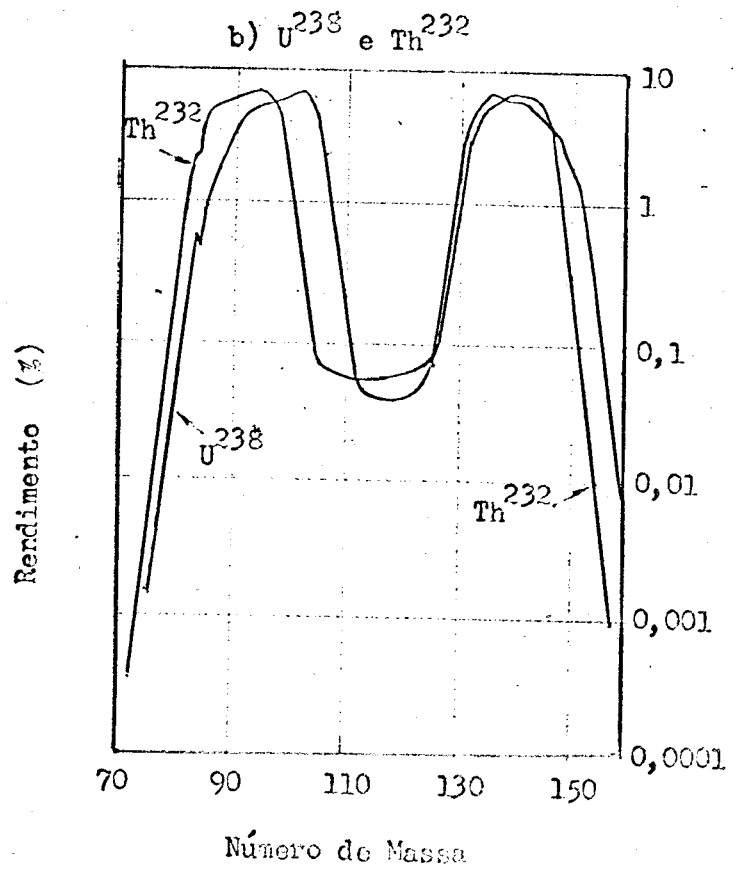
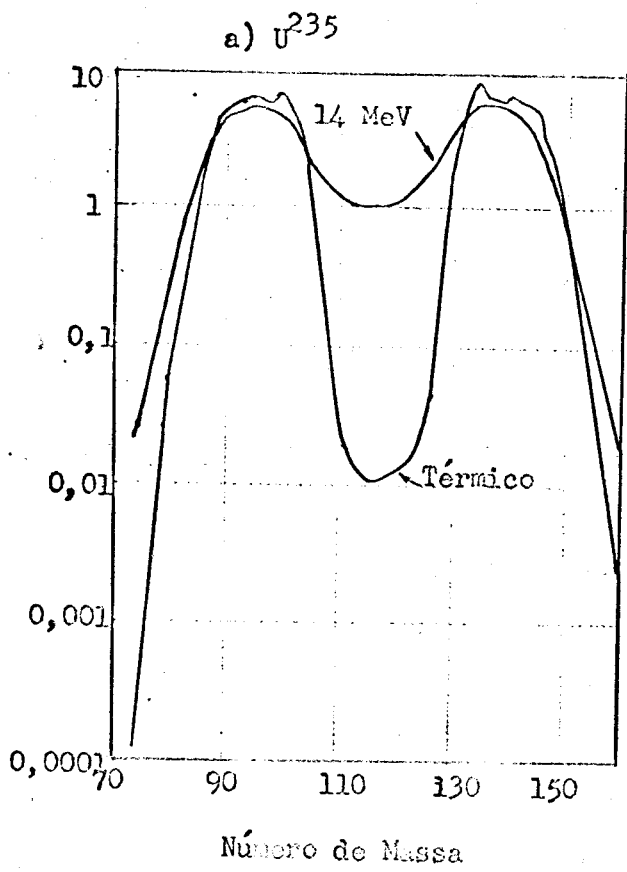
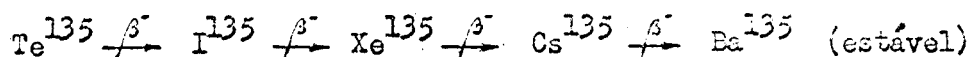


Fig.1 Rendimento dos produtos de fissão

quilíbrio causado por um excesso de neutrons a radiação beta é mais econômica pois além de consumir um neutron cria um proton. Um decaimento típico de um produto de fissão seria:



Os neutrons retardados que encontramos nas cinzas de fissão são também de emissão praticamente instantânea. O seu retardo provém do fato de estes neutrons se originarem de um decaimento por emissão de neutron de um núcleo produzido a partir de um decaimento beta de certos fragmentos de fissão.

Vejamos um caso específico, ⁽⁴⁾ o Br^{87} . Este nuclídeo pode em cerca de dois terços dos casos, decair com emissão de beta (< 2,6 MeV) para o nível de 5,4 MeV do Kr^{87} que por sua vez decai para o estado fundamental com a emissão de um ou dois gamas. Em pouco menos de um terço dos casos o Br^{87} decai diretamente para o estado fundamental do Kr^{87} com a emissão de um β de 8 MeV. Em aproximadamente 2% dos casos, contudo, a radiação beta é aproximadamente 2,6 MeV e o estado excitado do Kr^{87} formado se desintegra em tempo muito curto em Kr^{86} e neutron de 0,3 MeV. Como esta desintegração é muito curta comparada com a meia vida do Br^{87} o efeito aparente é que a radiação de neutron tem a meia vida do Br^{87} ou seja 54,5 s. (Fig. 2)

Como o Br^{87} não é o verdadeiro emissor do neutron dizemos que ele é o precursor do neutron retardado, pois a sua meia vida é que rege a emissão dos neutrons.

Não são muitos os precursores que foram identificados de maneira irrefutável, mas acredita-se que haja mais de vinte precursores responsáveis pela emissão de neutrons retardados nas cinzas de fissão. ⁽⁵⁾

A tabela II demonstra os precursores identificados e alguns prováveis com suas meia vidas. ⁽⁵⁾

É conveniente agrupar os fragmentos de fissão e dar a estes grupos uma meia vida equivalente. Como já foi dito, a abundância relativa dos produtos de fissão variam com o núcleo fissionado e com a energia do neutron que provocou a fissão. Assim a produção dos precursores, e portanto, dos neutrons retardados varia em atividade e em meia-vida de acordo com o núcleo

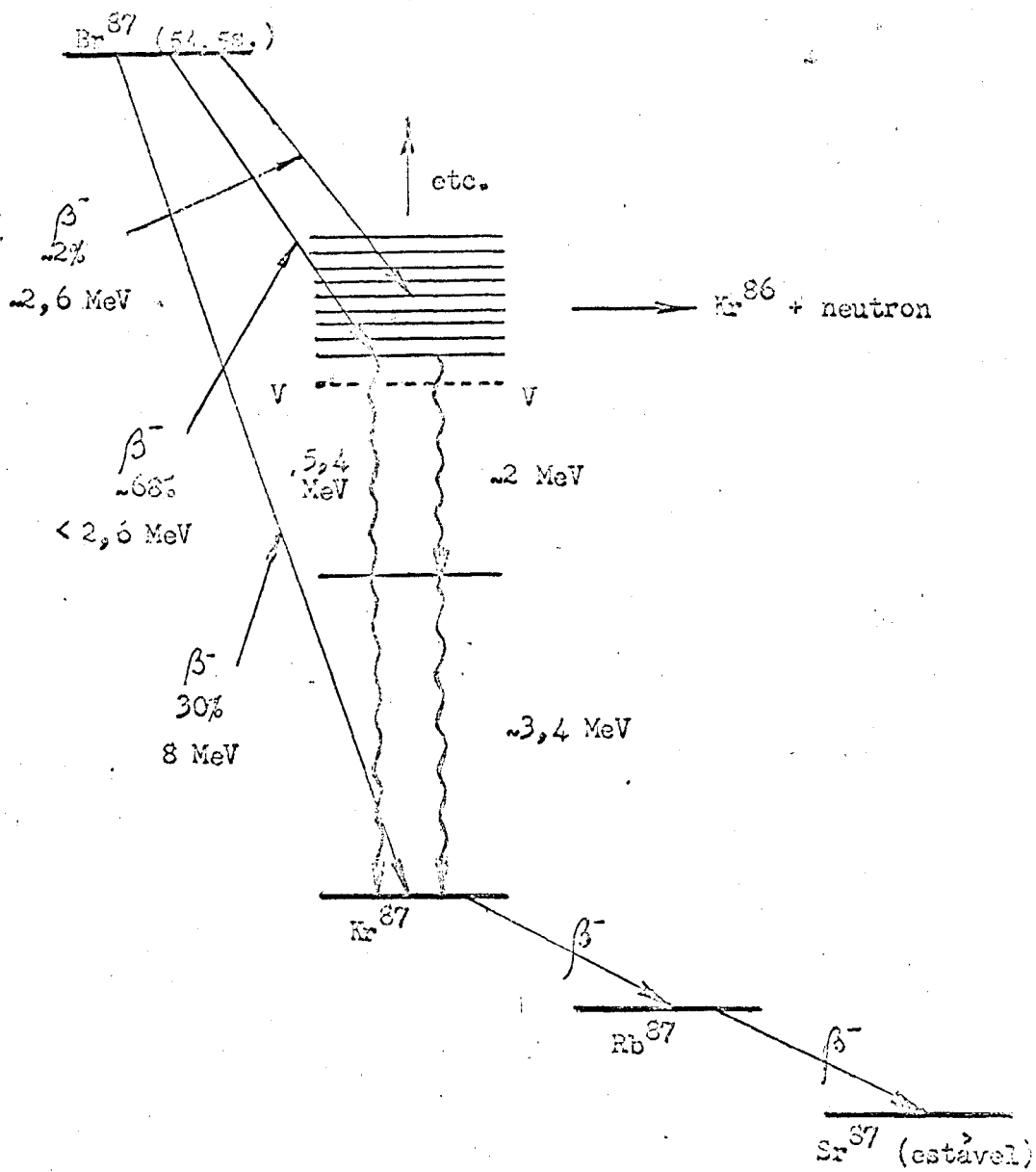


Fig.2 - Origem dos neutrons retardados provenientes do Br^{87} .
 A energia virtual do Kr^{87} está indicada por V---V.

Fig. 5

TABELA II

PRECURSORES DE NEUTRONS DELAYADOS DE URÂNIO

GRUPO	$T_{1/2}$ (s)	PRECURSOR IDENTIFICADO (PROVÁVEL)	$T_{1/2}$ (s)	RENDIMENTO
1	55,72	Br ⁸⁷	54,5	0,052
2	22,72	Br ⁸⁸ I ¹³⁷	16,3 24,4	0,346
3	6,22	Br ⁸⁹ Rb ⁹³ I ¹³⁸ Cs ¹⁴²	4,4 5,9 6,3 ~ 5	0,310
4	2,30	Br ⁹⁰ Rb ⁹⁴ (As ⁸⁵) (Kr ⁹²) (Kr ⁹³) I ¹³⁹ Cs ¹⁴³ (S ¹³⁵)	1,6 2,67 2,15 ~ 1,5 2 1,6 1,5	0,624
5	0,610	(As ⁸⁷) (Br ⁹¹) (S ¹⁴⁰)	< 1,5 ~ 0,5 ~ 0,5	0,182
6	0,230	Rb ⁹⁵ Rb ⁹⁶ (Br ⁹²)	0,35 0,25 ~ 0,2	0,066

fissionado e com a energia do neutron causador da fissão.

As tabelas III e IV fornecem a distribuição probabilística dos neutrons retardados e as correspondentes meias vidas para os núcleos em questão.⁽⁶⁾

Os neutrons pontos de fissão são emitidos com uma distribuição contínua de energia e sua distribuição normalizada é dada pela fórmula empírica:⁽⁷⁾

$$\chi(E) = 0,453 e^{-1,036E} \operatorname{senh} \sqrt{2,29E}$$

onde E é a energia em MeV. Isto leva a um valor médio de energia de 1.98 MeV.

Já os neutrons retardados apresentam um espectro discreto de energia. A tabela V nos dá a energia média por grupo de neutrons.⁽⁶⁾

Segundo o Argonne National Laboratory⁽⁶⁾ a existência dos neutrons retardados é conhecida experimentalmente desde 1939 e o reconhecimento dos grupos de neutrons foi feito logo a seguir. Mas, a julgar pelo Nuclear Science Abstracts o uso da ativação de emissão de neutrons retardados de fissão como método de análise é comparativamente recente: Amiel, em Israel, parece ter sido o primeiro a lançar o método como analítico para elementos fissionáveis em 1961.⁽⁸⁾

No ano seguinte apareceu um estudo completo sobre a análise de ativação de urânio por meio de contagem dos neutrons retardados feito por uma equipe do Oak Ridge National Laboratory;⁽⁹⁾ nesse trabalho foi determinado a concentração de urânio por este método em minério, granito, sedimentos marítimos, tecidos biológicos, grafita e ligas metálicas para reatores.

ANEXO III

Neutrons retardados do U^{235} produzidos por fissão térmica.

GRUPO	MEIA-VIDA (S)	RENDIMENTO (Neutrons/Fissão)
1	55,72	0,00052
2	22,72	0,00364
3	6,22	0,00310
4	2,30	0,00624
5	0,610	0,00182
6	0,230	0,00066

Neutrons retardados do U^{235} proveniente de fissão induzida por espectro de neutrons prontos de fissão.

GRUPO	MEIA-VIDA (S)	RENDIMENTO (Neutrons/Fissão)
1	54,51	0,00069
2	21,84	0,00351
3	6,00	0,00310
4	2,23	0,00672
5	0,496	0,00211
6	0,179	0,00043

TABELA IV

Neutrons retardados de Th^{232} provenientes de fissão induzida por espectro de neutrons prontos de fissão.

GRUPO	MEIA-VIDA (S)	RENDIMENTO (Neutrons/fissão)
1	56,03	0,00169
2	20,75	0,00744
3	5,74	0,00769
4	2,16	0,02212
5	0,571	0,00855
6	0,211	0,00213

Neutrons retardados de U^{238} proveniente de fissão induzida por espectro de neutrons prontos de fissão.

GRUPO	MEIA-VIDA (S)	RENDIMENTO (Neutrons/fissão)
1	52,38	0,00054
2	21,58	0,00564
3	5,00	0,00667
4	1,93	0,01599
5	0,490	0,00927
6	0,172	0,00309

TABELA V

Energias médias dos grupos de neutrons retardados para a fissão do U^{235} .

GRUPO	ENERGIA MÉDIA (KeV)		
	Hughes et. al.	Burgv et. al.	Batchelor
1	250 ± 60	300 ± 60	250 ± 20
2	560 ± 60	670 ± 60	460 ± 10
3	430 ± 60	650 ± 100	405 ± 20
4	620 ± 60	910 ± 90	450 ± 20
5	420 ± 60	400 ± 70	
6			

3.1. A APARELHAGEM EXPERIMENTAL

Foi construída uma câmara de moderação de neutrons usando-se uma caixa metálica cilíndrica contendo parafina (~ 95 Kg). As dimensões externas da caixa metálica perfaziam 50 cm de altura por 50 cm de diâmetro. A parte externa desta parafina foi convertida em blindagem de neutrons térmicos pela adição de ácido bórico à sua constituição. Para isto, fez-se solidificar primeiro uma camada de 5 cm de espessura de parafina borada sobre as paredes laterais internas e o fundo da caixa. Uma vez completada esta camada de parafina borada, aplicou-se sobre ela outra camada de parafina pura para sua proteção, para então se promover o enchimento paulatino do volume. Deu-se bastante atenção a esta fase da construção da aparelhagem, já porque a blindagem é de bastante importância não só pela proteção dos operadores, como pela necessidade de diminuir a contagem de fundo - a máquina é projetada para operar na vizinhança do reator nuclear onde há sempre alguma radiação neutrônica - já porque a contaminação do núcleo de parafina pura pelo boro pode levar a séria perda de eficiência. Uma vez preenchido o volume, aplicou-se uma camada de 5 cm de espessura de parafina borada na parte superior.

Uma vez completado o volume de parafina de moderação e blindagem procedeu-se a um furo cilíndrico, no eixo da câmara de moderação, de 5 cm de diâmetro e 29 cm de profundidade. Este orifício é o poço de contagem e abrigará a amostra. Suas paredes laterais foram revestidas de chumbo de 1 cm de espessura e o fundo com 1,5 cm do mesmo material, com a finalidade de

lhorar a discriminação entre neutrons e gamas.

A 16 em aparte um do outro, foram colocados dois contadores de neutrons simétricos em relação ao poço de contagem. Estes contadores são do tipo proporcional de trifluoreto de boro (BF_3) enriquecido 96% em B^{10} , e com pressão de 40 cm de Hg. Seu comprimento total é de 40 cm e foram completamente mergulhados na parafina da câmara de moderação apenas aflorando na superfície superior. Seu comprimento útil de contagem é de 30 cm. A tensão de operação deve ser de 2200 V num platô que vai de 2100 V a 2350V. Os contadores foram devidamente testados em suas características, a fig. 3 mostra o resultado.

Os contadores são alimentados pela fonte Philips FW 4022 de alta tensão regulada, e sua resposta é recolhida por um pré-amplificador que foi necessário construir-se especialmente, devido às exigências de discriminação. Na teoria da operação se darão mais dados sobre os requisitos e projeto do pré-amplificador. Este pré-amplificador é por sua vez alimentado por uma fonte de baixa tensão Lambda LH 124 FM e sua saída levada a um scaler-timer HP 520 IL o qual foi escolhido pela simplicidade uma vez que ele incorpora um analisador de pulsos elementar.

Não fazem parte essencial do sistema, mas foram usados durante os testes para maior conforto, e garantia das medidas, um osciloscópio Tektronix 545B e registrador digital HP 562A. (Fig.4)

Cálculo da blindagem de parafina borada. O fluxo é atenuado exponencialmente ao atravessar a camada de parafina borada

$$\phi = \phi_0 e^{-\Sigma_a d}$$

$$\phi = \phi_0 e^{-\sigma_a \frac{N_0 \rho d}{A}}$$

$$\rho d = \frac{A}{\sigma_a N_0} \ln \frac{\phi_0}{\phi}$$

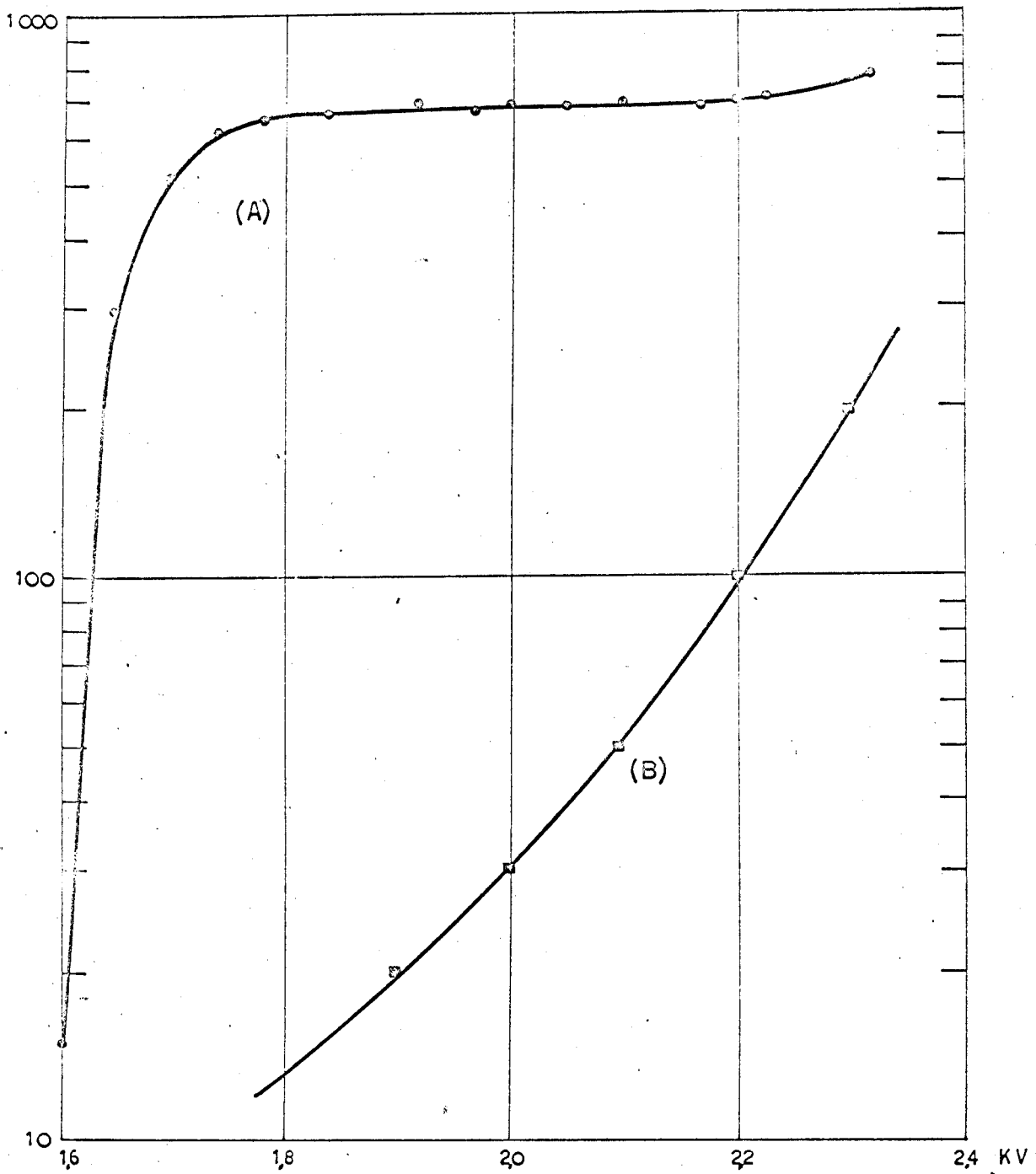
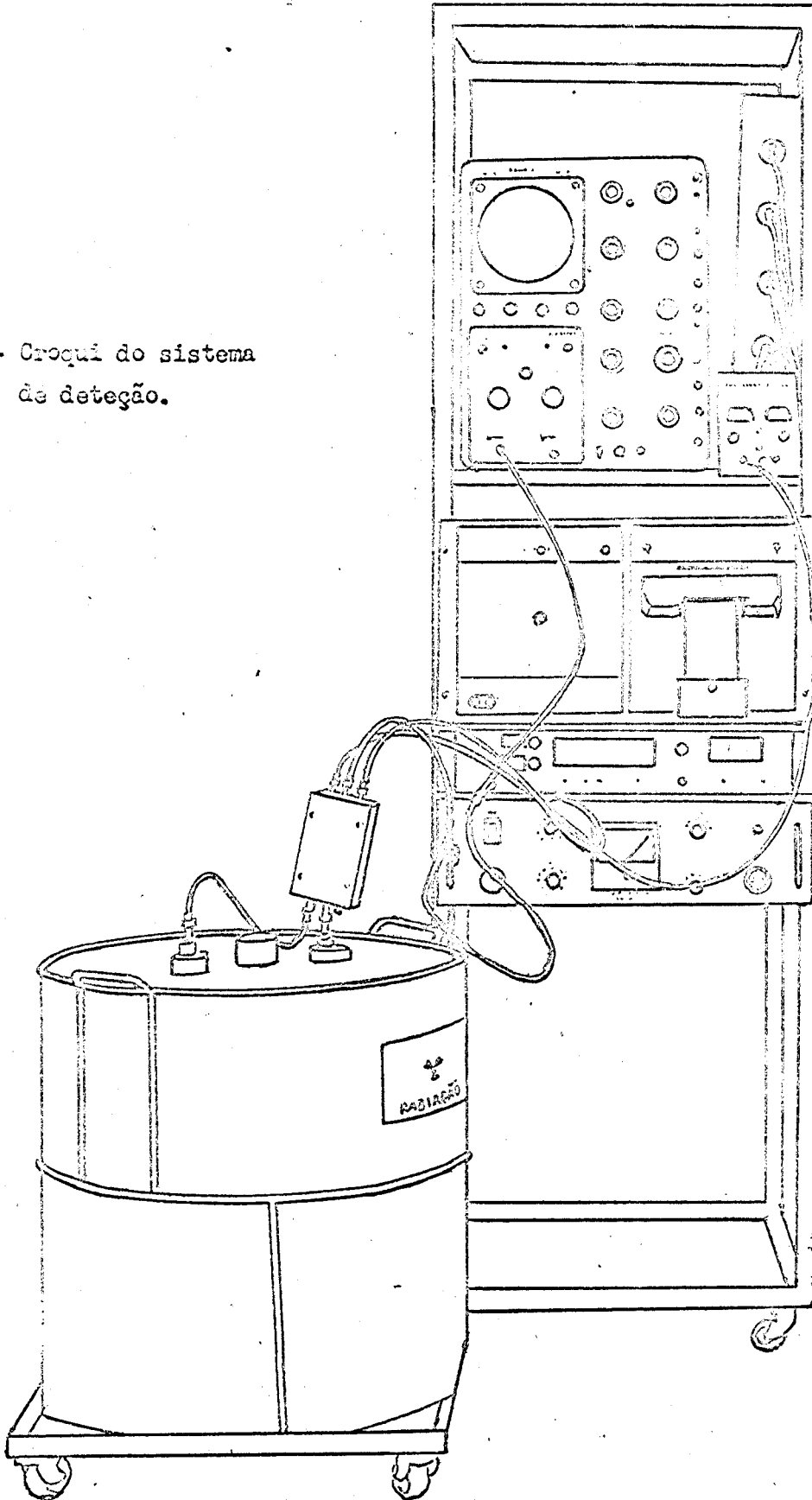


Fig.3 - CARACTERÍSTICAS DO DETETOR DE NEUTRONS B F₃
 (A) PATAMAR DE CONTAGEM (cpm)
 (B) AMPLITUDE DOS PULSOS DEVIDOS A NEUTRONS (mV)

Fig.4 - Croqui do sistema de detecção.



$$\rho d = \frac{10,8 \text{ g/cm}^2}{760 \times 10^{-24} \times 6,03 \times 10^{23}} \ln \frac{\Phi_0}{\Phi} = 2,35 \times 10^{-2} \text{ g/cm}^2 \ln \frac{\Phi_0}{\Phi}$$

Para uma atenuação de 10^6

$$\rho d = 2,35 \times 10^{-2} \text{ g/cm}^2 \times 13,82 = 325 \text{ mg/cm}^2$$

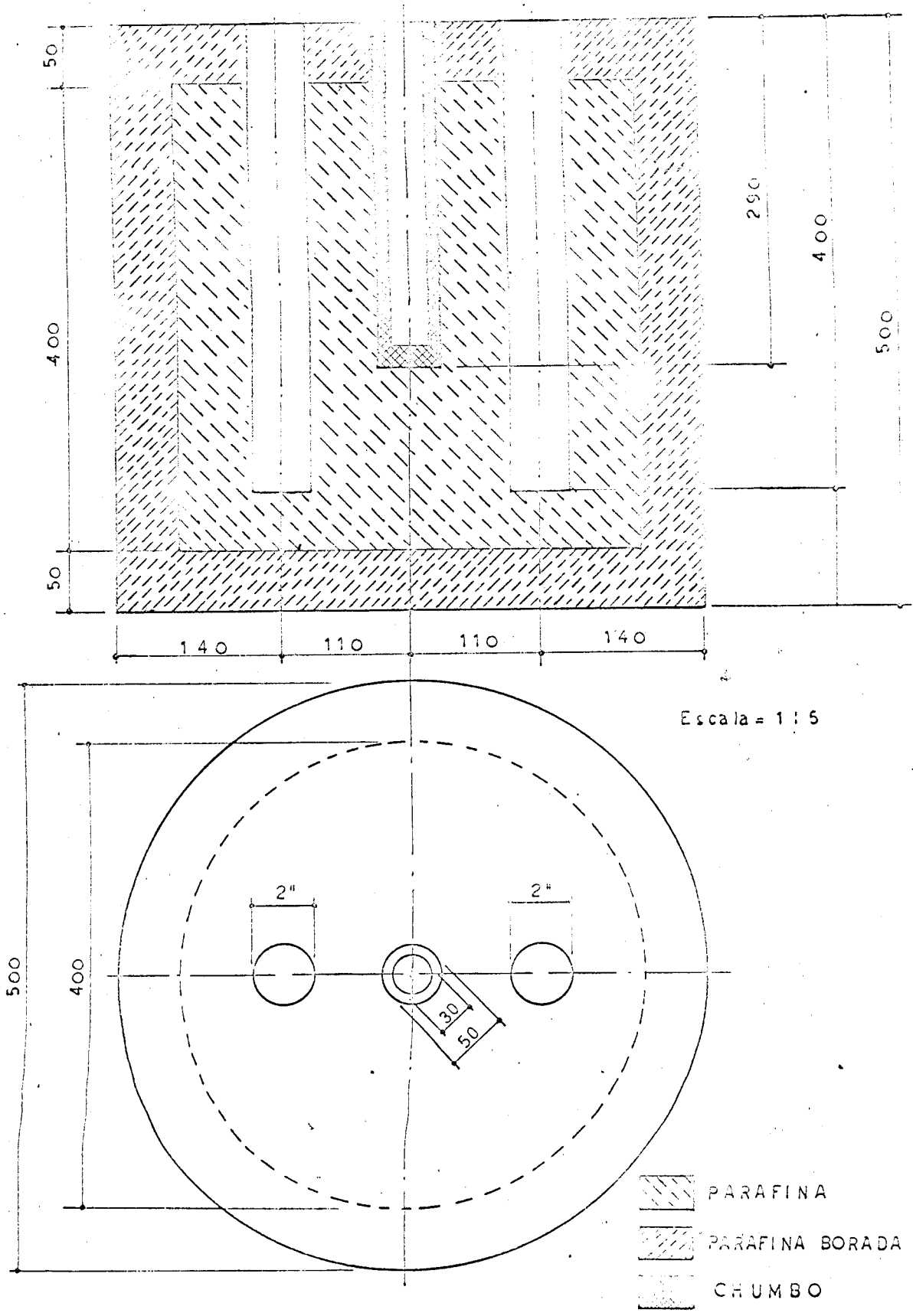
Foi usada esta proporção de boro na camada de blindagem, com uma tendência de concentrá-lo mais, na parte mais externa. A atenuação pretendida que à primeira vista pode ser considerada exagerada mas deve-se levar em conta que se pretende não somente blindagem da radiação de fundo como também radioproteção dos operadores. (Fig. 5)

Para se testar a blindagem foram colocadas as duas fontes de Amé-ricio-Berílio no seio da câmara de moderação. A surgência total das fontes é de $4,80 \times 10^6$ neutrons por segundo. A radiação de fuga mostrou ser principalmente gama e em dosagem compatível com o trabalho contínuo na vizinhança da fonte. Foi, ainda, requisitado um serviço especial da Divisão de Segurança e Radioproteção a qual fez um mapeamento com filme dosimétrico e filtros colocados em contato com as paredes externas da câmara de moderação por 72 horas. Os filmes revelaram a homogeneidade da blindagem e confirmaram a segurança de operação.

Localização dos detetores - Os detetores devem, evidentemente, ser colocados na região da câmara moderadora onde o fluxo de neutrons térmicos é maior, para se obter uma melhor eficiência de contagem. Para fazermos uma escolha, devemos ter uma idéia mais precisa da distribuição do fluxo na câmara moderadora. A solução do problema global incluindo os próprios detetores é em si trabalhosa envolvendo cálculo numérico de computação, pois de maneira alguma poder-se-á considerar a perturbação dos detetores ao fluxo neutrônico desprezível, já porque seu volume representa uma fração ponderável do volume da região de moderação, como também constituem partes altamente absorvedoras de neutrons pela própria natureza de sua função.

Não pretendemos, portanto, dar a este problema maior relevância do que ele merece. Fosse a parafina do interior da câmara de moderação

FIG. 5 - CÂMARA MODERADA



a camada de parafina borada do seu exterior, um material que permitisse um trabalho plástico de reconstrução e remodelamento fácil, o mais prático seria obter a localização dos detetores pelo método experimental de tentativas: com uma fonte constante de neutrons no poço de contagem e com os detetores colocados em diversas posições sucessivas, poderíamos localizar a posição dos detetores de maior eficiência de contagem. Contudo a nossa experiência com a construção da própria câmara de moderação nos mostrou que a parafina, ao contrário do que imaginávamos, não é fácil de trabalhar em remodelação. Ela não tem uma grande latitude de termoplasticidade que seria desejável e ainda oferece não só um grande calor latente de fusão como uma má condutividade térmica. Estes fatores são todos desfavoráveis para uma remodelação. Acresce-se a isto o risco constante de contaminação permanente da massa moderadora pelo boro contido na camada externa de blindagem. Após este julgamento, foi considerado inconveniente fazer-se a determinação do posicionamento dos detetores experimentalmente.

Para se avaliar teoricamente a posição ótima dos detetores foram feitas algumas conjecturas a respeito do fluxo de neutrons térmicos na câmara de moderação. Como se pretendia fugir do cálculo numérico por achá-lo pretensioso para um fim tão modesto, recorreu-se às formas analíticas de moderação. A teoria da idade de neutrons devida a Fermi mostra-se fraca para meios moderadores hidrogenosos, e isto centralmente porque a lei de Fick não é válida no hidrogênio, pelo menos para altas energias de neutrons. A razão deste fracasso é a característica incomum da seção de choque do hidrogênio associada ao fato de os neutrons perderem uma porção apreciável de sua energia a cada choque com o hidrogênio. Realmente, a seção de choque de espalhamento do hidrogênio é constante na região de 1 eV a 10 KeV, mas, para energias mais altas cai rapidamente. O caminho livre médio dos neutrons será $1/\Sigma_s(E)$ onde $\Sigma_s(E)$ é a seção de choque macroscópica na energia E. Como a cada choque o neutron ganha uma unidade de letargia, pois o incremento médio da letargia por colisão do neutron com hidrogênio é $\xi = 1$, a energia do neutron é estatisticamente decrescida de um fator de e ($\approx 2,73$). Na região de alta energia a variação da seção de choque de espalhamento com a energia é bastante rápida, como foi dito, isto implica numa variação de caminho livre médio também rápido, entre duas colisões sucessivas. Na realidade, os caminhos livres médios nas colisões subsequentes é tão dimi-

nuido que o caminho livre médio anterior à primeira colisão é praticamente determinante do percurso total efetuado pelos neutrons. O fluxo de neutrons térmicos é portanto razoavelmente descrito pela distribuição espacial da primeira colisão dos neutrons.

No plano equatorial da amostra podemos grosseiramente associar esta distribuição espacial a uma simetria cilíndrica e o fluxo terá a forma

$$\phi(r) = A \frac{e^{-\sum_s(E_0)(r-r_0)}}{2\pi r}$$

onde A é uma constante a ser determinada pela surgência da amostra e $\sum_s(E_0)$ a seção de choque macroscópica de espalhamento do hidrogênio para neutrons de energia E_0 , energia de emissão, e r_0 o raio do poço de contagem.

Esta aproximação significa fazer o fluxo independente da idade do neutron no meio hidrogenoso, como é aparente na expressão do fluxo. Ainda assim é conveniente usar a idade do neutron equivalente, como um parâmetro para mais comodamente se comparar com os dados experimentais. Da expressão acima espera-se uma idade de neutron equivalente da ordem de 40 cm^2 para neutrons de fissão. Esta estimativa é pobre pois considerando-se que o carbono das moléculas de parafina agirão como refletor, um decréscimo de até 35% pode ser esperado, levando a idade dos neutrons para 25 cm^2 , quando medidos pela ressonância do índio, $\text{In}^{115}(1,45 \text{ eV})$.

De fato, estes dados experimentais se referem a neutrons de fissão, que como dissemos anteriormente têm um espectro de energia bastante alargado com valor médio de energia em torno de 2 MeV. Como estamos interessados em neutrons retardados temos que considerar que sua energia gira em torno de 0,5 MeV. A idade equivalente dos neutrons não tem, neste cálculo, a celebrizada propriedade aditiva que a torna tão conveniente. Teremos que voltar aos princípios para calcular a nova idade. Indicamos que a seção de choque de espalhamento sofre com a mudança de energia de 2 MeV para 0,5 MeV um aumento por um fator de 2.⁽²⁾ Isto apenas para indicar a direção de variação da idade equivalente. Um cálculo mais preciso que levaria uma integral ponderada sobre o espectro de energia dos neutrons não será feito por falta de significação pois à medida que a idade equivalente se torna menor a aproximação que nos levou à expressão do fluxo de neutrons térmicos anterior se

torna cada vez mais pobre. Por outro lado apenas nos interessa a característica quase exponencial da distribuição espacial do fluxo. Dele poderíamos inferir que a posição ideal dos detetores é a mais próxima da fonte possível. Contudo, não levamos em consideração na estimativa da distribuição espacial do fluxo, a perturbação causada pelos próprios detetores que como já foi assinalado, são volumosos e fortemente absorvedores de neutrons.

Para um critério de até que ponto é possível aproximar os detetores da fonte sem prejudicar sensivelmente a termalização deve-se recorrer a novos dados experimentais.⁽¹⁰⁾

A fig. 6 nos mostra como a espessura das paredes de um poço de parafina influe na termalização dos neutrons. A curva A mostra como o fluxo termalizado cresce com a espessura da parede de parafina. A curva B indica o comportamento da espessura do fundo do poço como refletor do fluxo térmico. Vemos que em ambos os casos o fluxo térmico cresce abruptamente com a espessura das paredes para finalmente manter-se constante independente da espessura. As curvas apresentam um joelho nítido para espessuras em 5,5 cm o que nos leva a considerar que espessuras maiores que estas têm comportamento análogo a uma espessura infinita. É de se esperar que a introdução de materiais absorvedores de neutrons além desta região não prejudique a termalização dos neutrons provenientes de fontes colocadas no poço de parafina. Outros dados importantes são fornecidos pela curva C, da fig. 6, a qual descreve a transmissão do fluxo através de certas espessuras de parafina. Vemos que para uma espessura igual à espessura de joelho da curva de termalização, há um decréscimo de pouco mais de 20% do fluxo térmico. Esta perda de 20% quando se escolhe a distância igual à espessura de joelho da curva de termalização para a posição dos detetores e amplamente compensada pela garantia de que estes detetores não estão prejudicando a termalização. Realmente, a perda não é tão severa uma vez que a curva C nos dá o fluxo que chega radialmente da direção da fonte, e é portanto essencialmente uma medida de densidade de corrente de neutrons, enquanto que ao se mergulhar o detetor na parafina, ele receberá também a contribuição do fluxo proveniente da corrente de neutrons radial para dentro. Este é um raciocínio simplista pois na realidade os detetores funcionarão como um sumidouro de neutrons provocando uma considerável depressão no fluxo.

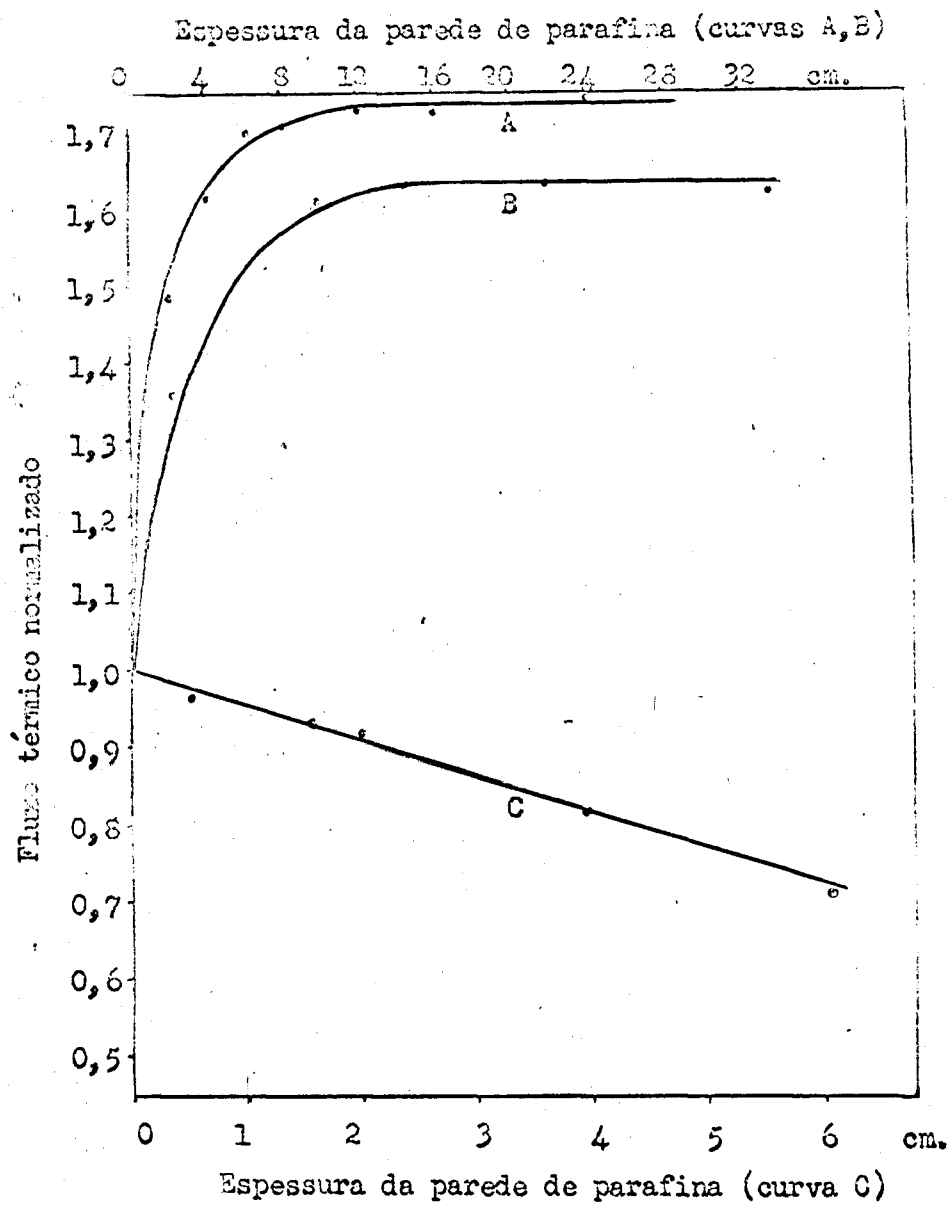


Fig.6 - Variação da termalização de neutrons com a espessura da parede de parafina.

3.2. A ELETRÔNICA ASSOCIADA

Considerações para o ante-projeto - Já ficou bem assinalado, páginas atrás, que é ponto chave uma discriminação eficiente entre a radiação gama e a radiação de neutrons. Quanto à amplitude dos pulsos, prevista teoricamente e confirmada experimentalmente, não há margem para preocupação. A riqueza de radiação gama é que pode causar o fenômeno estatístico de empilhamento. O detetor de trifluoreto de boro é um contador proporcional e como tal tem uma eficiência intrínseca de detecção gama pequena, mas finita: da ordem de 1%. Para amostras ricas em alumínio, sódio e outros elementos fortemente ativáveis, o fluxo de gama será muito mais intenso que o de neutrons. Se de um lado, os pulsos devidos aos gamas são pequenos - cerca de vinte vezes menor que os devidos aos neutrons - por outro lado, a sua abundância ocasiona o fenômeno de empilhamento no circuito do pré-amplificador que pode exceder o limiar da discriminação.

Numa distribuição de Poisson, a probabilidade de um empilhamento de ordem n, isto é, a probabilidade de n pulsos coincidirem no tempo, formando assim um pulso maior com uma amplitude n vezes a amplitude do pulso isolado, é dada por:

$$P_n = \frac{n_0}{1 + n_0 S} \cdot \frac{(n_0 T)^{n-1}}{(n-1)!} e^{-n_0 T}$$

onde T é a largura do pulso e n_0 o número de empilhamentos.

Para uma dada contagem n_0 o efeito de se reduzir T para T' é representado pela razão.

$$\frac{1}{1 + n_0 T} = \frac{1 + n_0 T}{1 + n_0 T'} \left(\frac{T'}{T} \right)^{n-1} e^{-n_0(T - T')}$$

Onde vemos que a largura do pulso toma um papel capital na probabilidade de empilhamento. Logo, o tempo de duração do pulso deverá ser tão curto quanto possível, compatível com o tempo de subida do detetor, que é da ordem de $1 \mu s$, e o da eletrônica complementar - totalizador, discriminador, etc., além de considerações de relação sinal/ruído.

O totalizador escolhido foi o HP 5201L, que já incorpora um discriminador, com um tempo de resolução global de $0,1 \mu s$. Este tempo de resolução dita o mínimo aceitável para a largura do pulso. A relação sinal/ruído ótima é obtida quando a constante de tempo de diferenciação é feita igual à constante de tempo de integração. Quando o circuito de ampliação é bastante rápido, predomina a constante de tempo devida ao tempo de subida do detetor.

O tempo de subida = $2,2RC = 2,2 T_{INT} = 1 \mu s$, donde $T_{INT} \approx 0,5 \mu s$. Ora fazendo $T_{INT} = T_{DIF} = RC_{DIF}$ teremos $RC_{DIF} \approx 0,5 \mu s$. Vejamos que probabilidade de empilhamento obteremos. Para o caso pessimista de uma amostra de alumínio de aproximadamente uma grama, e um tempo de irradiação de 60s a 100 W de potência (o que corresponde a um fluxo $\phi \approx 10^{12} n/cm^2/s$) a atividade esperada para a radiação gama será da ordem de $5000i \approx 2 \times 10^9$. Ora, com uma eficiência intrínseca na detecção de apenas 1% e com uma eficiência geométrica aproximada de:

$$\frac{2D \times h}{2\pi R \times h} \approx 0,1$$

onde D é o diâmetro do detetor, h comprimento eficaz do detetor e R a distância da amostra aos dois detetores.

Temos, portanto uma eficiência global de 0,1%. Teremos então 2×10^6 pulsos por segundo devido à radiação gama e uma probabilidade de empil-

ilhamento, supondo o limiar apenas 10 vezes a altura do pulso de gama, fica

$$P_n = \frac{2 \times 10^6 \text{ s}^{-1}}{1 + 2 \times 10^6 \text{ s}^{-1} \times 0,5 \mu\text{s}} \frac{(2 \times 10^6 \text{ s}^{-1} \times 0,5 \mu\text{s})^{n-1}}{(10 - 1)!} e^{-2 \times 10^6 \text{ s}^{-1} \times 0,5 \mu\text{s}}$$

$$P_n \approx 0,1 \text{ s}^{-1}$$

Vemos que a probabilidade de empilhamento é bastante baixa mesmo para um fluxo intenso de gamas, e pode ser ainda consideravelmente diminuída uma vez que o limiar pode ser elevado de algumas vezes a amplitude dos raios gama sem prejuízo da contagem dos neutrons. Levantar o limiar de algumas unidades significa reduzir a probabilidade por várias potências de 10. Só para se ter uma idéia, quando o limiar é dobrado, no exemplo acima, a probabilidade de empilhamento vai a 10^{-33} s^{-1} .

Experimentalmente foi testada esta probabilidade de empilhamento com uma amostra de 10g de alumínio que foi ativada a 500 mCi. Foram registradas 100 contagens. Entretanto, deve-se notar que o alumínio comercial contém urânio ⁽¹²⁾ na ordem de ppm, o qual deve ser o responsável pela maioria da contagem. Ainda que não fôsse, esta perturbação é mínima uma vez que corresponde a um conteúdo de $6 \mu\text{g}$ de urânio, a julgar pela calibração posterior, e isto, para 10 gramas de alumínio, o que em termos de análise seria um desvio menor que 1 ppm.

Especificações do pré-amplificador. Como ficou dito o pré-amplificador deverá ter um tempo de subida inferior a $1 \mu\text{s}$. Como se deseja operar diretamente o discriminador, que exige em torno de 0,5 Volts na entrada, e onde tem uma impedância de 500Ω , o pré-amplificador deverá ter um ganho adequado.

$$V_{in} = \frac{Q}{C_{in}} = \frac{Mkn \times e}{C_{in}}$$

onde V_{in} é o sinal de entrada em volts,

Q , a carga coletada por pulso,

C_{in} , a capacitância total de entrada,

M , fator de multiplicação do detetor
 n , o número de pares de íon formados
 e , a carga de um elétron.

O fator de multiplicação do detetor, quando este é operado à voltagem máxima permissível é da ordem de 100 vezes. O número de elétrons liberados pela reação $B^{10}(n, \alpha) Li^7$, com energia $E = 2,78$ MeV, é $n = E / W$, onde W é a energia média dispendida na ionização que é da ordem de 30 eV. Donde podemos estimar $n = 2,7 \times 10^6 / 30 \approx 10^5$ pares.

A capacitância do detetor é desprezível, (da ordem de 2pF) mas a capacitância dos cabos dificilmente é menor que 20 pF (o cabo tem mais ou menos 30 cm de comprimento e 20 pF por pé, é um cabo de 50 Ω) e na entrada do pré-amplificador encontramos uma capacitância da ordem de 10pF. A capacitância total de entrada será em torno de 30 pF.

Assim podemos calcular o pulso de entrada a partir da fórmula anterior.

$$V_{in} \approx \frac{10^2 \times 10^5 \times 1.6 \times 10^{-19}}{3,0 \times 10^{-11}} \approx 50 \text{ mV}$$

Com uma constante de tempo de diferenciação igual à da integração a amplitude do pulso é reduzida de $e^{-1} \approx 0,36$. Logo o ganho necessário é

$$G \approx \frac{500 \text{ mV}}{50 \text{ mV}} e^{-1} \approx 27 \text{ vezes}$$

Podemos, em vista do resultado, decidir por um ganho de 60 vezes o que implica em pulsos de saída máximos em torno de 1 Volt.

A diferenciação é feita na saída do pré-amplificador com um capacitor. A carga do pré-amplificador é, à entrada do discriminador, $R_L = 500 \Omega$, donde, $C_C = T / R_L \approx 5 \times 10^{-7} / 500 \approx 1000$ pF.

Para garantir uma única diferenciação no circuito, a constante de tempo da entrada do pré $R_{in} C_{in}$ deverá ser muito maior que T . Com $C_{in} \approx 30$ pF obtemos $R_{in} > T / C_{in} \approx 5 \times 10^{-7} / 3 \times 10^{-11} \approx 1,7 \times 10^4 = 17 \text{ K}\Omega$. Então $R_{in} = 100 \text{ K}\Omega$, que assim pode-se usar

transistores de junção na entrada, por causa da baixa impedância. A possibilidade de se usar um FET (Transistor de efeito de campo) foi encarada pela possibilidade de máxima relação sinal-ruído. Mas, como o sinal é relativamente grande e o FET é muito sensível a variações de alta tensão, a escolha recaiu em transistor comum do tipo 2N 3991A, que tem alto ganho de corrente, baixo ruído, ganho-vêzes-largura-de-faixa apropriado (100 Mc/s), baixo custo e excelente confiabilidade. Por simplicidade, os outros estágios terão o mesmo transistor.

Ainda é requerido: Realimentação negativa abundante para maior estabilidade de ganho. Acoplamento contínuo entre os estágios, para minimizar o tempo de recuperação de sobrecargas. Filtragem interna da alta tensão para evitar zumbidos e interferências da rede. Isolamento de alta tensão de requintada qualidade para evitar pulsos espúrios devidos a descarga corona. E, finalmente, um seguidor de emissor com uma corrente de 10 mA capaz de fornecer os 5 volts máximos do discriminador ($R_{in} = 500 \Omega$).

Projeto do pré-amplificador. Com estas especificações o projeto já está suficientemente amarrado para o cálculo direto das componentes.

Refira-se ao diagrama esquemático do circuito para o símbolo dos elementos. (Fig. 7)

1º estágio:

$$\text{Tomemos } R_{B1} = 250K\Omega, V_{E1} = 0,5V \text{ e } V_{CE1} = 2,5V$$

$$\text{então temos } I_{B1} = \frac{2,5 - 1,05}{500K} = 5 \mu A$$

$$\text{e também } I_C = \beta I_{B1} = 250 \times 5 \mu A = 750 \mu A$$

$$\text{Isto nos dá } R_{E1} = \frac{V}{I_{C1}} = \frac{0,5V}{0,75 \text{ mA}} = 660 \Omega$$

Usa-se o valor mais próximo das resistências comerciais: 680Ω . Com esse valor $R_{E1} = 250 \times 680 \Omega = 170 K\Omega$: é necessário uma realimentação de mais ou menos 6 vêzes para se obter $R_{in} \approx 1K\Omega$.

$$\text{Tomemos } R_{C1} = \frac{23}{0,5} R_{E1} = 44 \times 680 \Omega = 30 K\Omega$$

Consideremos que

$$\frac{v_2}{v_1} = \frac{\beta}{1 + R_B/R_C} \cdot \frac{1}{R_B C_B} = \frac{250}{1 + \frac{250K}{30K}} \cdot \frac{1}{R_B C_B} \approx \frac{30}{R_B C_B}$$

mas, $T_f = \frac{2}{w_1}$

$$C_B = \frac{20 \times 2 \times 10^{-6}}{2 \times 250K} \approx 120 \text{ pF}$$

A estabilidade pode ser calculada

$$S = \frac{1 + R_B/R_C}{1 + 2R_B/\beta R_C} \approx \frac{1 + 500/30}{1 + 500/250} \approx 17 \text{ vezes.}$$

O ganho do estágio é $G_{V1} = \frac{22V}{0,5V} = 44 \text{ vezes}$

2º estágio:

Tomemos $V_{E2} = 2,5V$

Para não carregar o estágio anterior $\beta R_{E2} = 5 = R_{C1}$

Então $R_{E2} = \frac{5 \times 33K}{250K} = 660\Omega$. Outra vez tomamos 680Ω que é o

valor comercial.

Dai obtemos: $I_{E2} = \frac{V_{E2}}{R_{E2}} = \frac{2,5V}{680\Omega} = 3,7 \text{ mA}$

$R_{C2} = \frac{25 - 7,5V}{2,5} \times 680\Omega = 4,7 \text{ K}\Omega$

$G_{V2} = \frac{R_{C2}}{R_{E2}} = \frac{\Delta V_C}{V_E} = \frac{17,5}{2,5} = 7 \text{ vezes.}$

3º estágio:

Procuramos mínimo valor para I_C para termos baixa impedância de saída mas devemos respeitar as limitações impostas por R_{E1} e $P_{D1} = 200 \text{ mW}$.

$$R_{E1} \gg 4,7 \text{ K}\Omega \text{ ou seja } R_{E1} \gg \frac{4700}{250} \approx 20 \Omega. \text{ Não há praticamente restrição a } R_{E1}$$

Por outro lado,

$$P_{D1} = (22 - 7) V \approx I_C > 0,2 \text{ W}$$

$$I_C > \frac{0,2 \text{ W}}{15,5 \text{ V}} > 13 \text{ mA}$$

Tomemos $I_C = 15 \text{ mA}$, calculamos $R_{E1} = \frac{22}{15} = 1,47 \text{ K}\Omega$. Tomemos $R_{B1} = 1 \text{ K}\Omega$ e

tomemos $R_{E2} \approx 250 \text{ K}\Omega$.

Reverto o circuito como um conjunto, o segundo estágio aparece com ganho próximo 1; temos um grau de liberdade em R_{E2} para sanar a falta. Como V_{E2} deve-se manter igual a V_{C1} , reduz-se I_{C2} para 1 mA mantendo $R_{E2} = 680 \Omega$ mas, utilizando R_{E2} devidamente desacoplado.

$$\text{Tomemos } R_{E2} = 2,2 \text{ K}\Omega, \text{ isto dá } I_{E2} = \frac{2,5 \text{ V}}{2,2 \text{ K}\Omega} = 1,14 \text{ mA}$$

Então $R_{C2} = \frac{15 \text{ mA}}{2,5} \approx 6 \text{ K}\Omega = 20 \text{ K}\Omega$, Tomemos o valor comum $15 \text{ K}\Omega$

$$\text{então } V_{C2} = 25 - 2,5 - 15 \approx 8,5 \text{ V}$$

$$\text{Então, } V_{E2} = 9,5 \text{ V}; V_{E3} = 9 \text{ V}; R_{E3} \approx 680 \Omega; I_{E3} \approx \frac{9}{8,2} \approx 1,1 \text{ mA}$$

e portanto,

$$P_{D2} = (25 - 9) V \approx 1,1 \text{ mA} = 176 \text{ mW}$$

$$G_{V2} = \frac{R_{C2}}{R_{E2}} = \frac{15 \text{ K}\Omega}{680 \Omega} = 22 \text{ vezes.}$$

4.1. SEQUÊNCIA DAS OPERAÇÕES DE ANÁLISE

O material a ser analisado é primeiramente colocado a fim de caber no pequeno tubo de polietileno que é receptáculo próprio para ser levado à irradiação no reator. A amostra assim preparada, deve ser pesada para se obter o conteúdo de urânio em termos da massa do material. Quando o material está na forma de pó, pesa-se, normalmente, uma grama, o que fornece o conteúdo de urânio por simples regra-de-três, já que se usa padrão de uma grama. Este passo da pesagem é essencial para o conhecimento acurado da percentagem de urânio na amostra.

Contudo, em operação de triagem, basta uma avaliação do peso deixando-se a pesagem para operação posterior quando se fizer necessário o conhecimento acurado do conteúdo de urânio.

O tubo de polietileno, uma vez contendo a amostra, é fechado e colocado no tubo externo de poliestireno, que é padronizado para irradiações na mesa giratória do reator. Note-se que a mesa giratória é o lugar apropriado para irradiações manuais; o tubo central do reator é uma região de fluxo mais forte, o que seria desejável, mas o fato de conter água torna a descida da amostra mais lenta, o que diminui a precisão da medida do tempo de irradiação. Por outro lado, se se retirar a água do tubo central, ele torna-se portador de intensa radiação neutrônica constituindo assim, uma desnecessária fonte de periculosidade à saúde dos operadores. Quando se procura precisão na medida, tem que se ter em mente, o

de que a flutuação estatística da contagem é relativamente menor para contagens mais elevadas. Isto nos leva a desejar o mais alto fluxo, uma vez que a atividade é proporcional ao fluxo de nêutrons. Esta é a razão por que se tem trabalhado com o reator operando a 100 kW.

O tubo de polietileno é descido pela prêsca automática até a mesa giratória. Procura-se fazer esta descida com velocidade homogênea pois cronometra-se o tempo de irradiação com o auxílio do som do choque do tubo de polietileno com o chão da mesa giratória. Desacopla-se a prêsca automática do tubo de polietileno uma vez que este atinge o chão da mesa giratória e levanta-se a prêsca a uma altura capaz de livrá-la do fluxo de nêutrons para que ela não se ative indevidamente.

Alguns instantes antes de se completar 60 segundos de irradiação, a prêsca automática é novamente descida e acoplada ao tubo de polietileno, para que ao se completar os 60 segundos de irradiação, possa o tubo de polietileno ser rapidamente levantado para fora do fluxo neutrônico e daí, subir até o exterior do reator onde é pego por garras manuais de manipulação à distância e levado à câmara de contagem.

O cronômetro, que não deve ter sido travado, é ainda usado para marcar mais quinze segundos de espera antes de se fazer a operação eletrônica iniciar a contagem. Assim, aos 75 segundos após o início da irradiação dá-se o início da contagem. Esta espera de 15 segundos é necessária, quando mais não seja, para se uniformizar os intervalos de tempo da operação de transporte da amostra ativada, da saída do reator até a câmara de contagem.

Veremos mais adiante que a espera pode trazer algum benefício à estatística da contagem e também diminuir certas interferências. Na realidade, este método de cronometragem está longe de ser o ideal; o desvio de tempo de irradiação é jogado no tempo de espera. Assim, se o desvio de tempo de irradiação for na direção de uma menor irradiação, o tempo de espera será maior. Isto significa que além da ativação ser menor, ainda haverá um maior decaimento da atividade antes de se começar a contagem: os efeitos dos desvios se acumulam.

Contudo, é ainda assim, o método mais prático, já que não quer nem a operação de cronometragem associada a retirada da amostra para fora do fluxo do reator. Aparentemente, a única forma de se sanar este

defeito, é automatizar a operação.

O cuidado que se deve ter para minimizar o desvio correspondente a esta indeterminação é o de procurar levantar o tubo de polietileno tão exatamente aos 60 segundos de irradiação quanto for possível e ao mesmo tempo tão depressa quanto for compatível com o método usado para recolher a presa automaticamente.

Experimentalmente, ficou verificado que é possível manter-se rigorosamente esta operação dentro de um desvio de um décimo de segundo.

O sistema eletrônico fica preparado para fazer contagens no modo de operação de tempo pré-estabelecido. Ao se dar os quinze segundos de espera, o totalizador deve ser disparado manualmente para iniciar a contagem. Como o modo de operação é o de tempo pré-estabelecido, ao se completar 60 segundos de contagem, o totalizador interrompe a contagem e transfere o número de pulsos contados para a máquina impressora que o imprime deixando o totalizador livre para ser zerado para nova contagem.

O tubo de polietileno é então retirado da câmara de contagem e colocado em lugar protegido para acabar de esfriar sua atividade.

Dentro de mais dois minutos a atividade do emissor de neutrons retardados já está suficientemente decaída a ponto de permitir nova análise no material, se for o caso.

Resumimos os processos radioativos da análise no seguinte quadro de tempos:

60 segundos:	irradiação, ativação
15 segundos:	espera
60 segundos:	contagem

Vemos que uma vez iniciada a contagem de uma amostra, o sistema está livre para irradiação de nova amostra podendo-se com isto, intercalar-se no tempo, as análises sucessivas, o que permitirá reduzir por um fator de dois, o tempo gasto efetivamente por análise.

4.2. CONTRIBUIÇÃO DOS GRUPOS DE IRRADIAÇÃO E DE CONTAGEM

Numa análise por ativação de rotina, temos dois objetivos conflitantes: a redução do tempo de análise e a precisão estatística das contagens.

O tempo de irradiação para ativação deve atender a necessidade da redução do tempo de análise de um lado e a precisão estatística do outro. Como na análise mais simples dos neutrons retardados não se pode fugir de atribuir um mínimo de seis grupos de tempos-vidas, devemos analisar a contribuição de cada grupo para a ativação.

A formação de núcleos ativados é proporcional à densidade de fissão, que é produto da seção de choque macroscópica de fissão pelo fluxo de neutrons, pois os núcleos precursores de neutrons retardados são produto de fissão. Além do mais, cada grupo i de neutrons retardados tem seu rendimento característico λ_i . Contudo, os núcleos formados estão em constante decaimento donde, ao cabo de um tempo de irradiação T_0 o número de núcleos ativados do grupo i é proporcional a

$$N_i = \sum_f \Phi \lambda_i \bar{\lambda}_i (1 - e^{-T_0/\bar{\lambda}_i})$$

onde, \sum_f = é a seção macroscópica de fissão

Φ = o fluxo de neutrons

λ_i = o rendimento do grupo i de precursores

$\bar{\lambda}_i$ = a vida média do grupo em questão

Podemos com a expressão acima calcular a ativação em função do tempo de irradiação. Uma análise completa deve levar em conta que os rendimentos e também a vida média dos grupos dependem da energia do neutron incidente causador da fissão. Contudo, a fissão térmica do U^{235} não somente é predominante como é bem representativa para cálculos aproximados. Além do fator variável com o tempo de irradiação na expressão da atividade, há um outro fator característico de cada grupo de neutrons retardados que é o produto $\lambda_i \tau_i$

$$\lambda_i \tau_i = \lambda_i (T_{1/2})_i / 0.693$$

Dos dados da tabela dos grupos de neutrons retardados da fissão térmica do U^{235} podemos calcular

$$\lambda_1 \tau_1 = 0,0418$$

$$\lambda_2 \tau_2 = 0,1134$$

$$\lambda_3 \tau_3 = 0,0273$$

$$\lambda_4 \tau_4 = 0,0207$$

$$\lambda_5 \tau_5 = 0,0016$$

$$\lambda_6 \tau_6 = 0,0002$$

Vemos que há um predomínio nítido do grupo 2 no número de átomos precursores quando da saturação, pois serão proporcionais a $\lambda_i \tau_i$. Antes da saturação diminuem com o fator $(1 - e^{-t/\tau_i})$.

Além da possibilidade de ser o mais populoso, com uma irradiação mais demorada, o grupo 2, com sua meia-vida de 22,72 segundos, sobrevive bem ao tempo de espera estabelecido na técnica usada, ao passo que o grupo 3 já sofre um decaimento maior que duas meias-vidas e os grupos 4 e 5 e 6 estão praticamente extintos.

A contribuição maior para a contagem será a do grupo 2 e 1, nesta ordem. Devemos, portanto, ter um tempo de irradiação suficiente para ativar plenamente os grupos 2 e 1. Podemos, com a ajuda do fator $(1 - e^{-t/\tau_i})$ calcular a percentagem da saturação atingida pelos varios grupos com tempos diversos de irradiação. E obtemos:

TEMPO DE IRRADIAÇÃO (min.)	GRUPO 1	GRUPO 2	OUTROS GRUPOS
1/2	31 %	60 %	
1	52 %	84 %	100 %
2	77 %	97 %	

Para tempos de contagem longos teremos que, as irradiações de um minuto apresentarão 22 % a mais de contagens que as irradiações de 1/2 minuto, ao passo que as irradiações de dois minutos não oferecerão mais que 17 % sobre as irradiações de um minuto, e estão a menos de 8 % do máximo possível, ou seja, com tempo de irradiação longo e tempo de contagem muito longo.

Para tempos de contagem curtos, os neutrons provenientes dos grupos de meia-vida mais curta são contados predominantemente, exceto, evidentemente, pelo fato dos grupos terem já decaídos durante o tempo de espera. Com a espera padronizada de 15 segundos há um nítido predomínio dos neutrons do grupo 2. Isto faz com que a escolha do tempo de irradiação recaia em um minuto. Escolha esta, que de maneira nenhuma é definitiva para uma rotina, mas apenas uma maneira de padronizar os tempos para que se possa fazer calibrações e a partir destas calibrações construir padrões apropriados para a técnica de comparação, a qual permitirá uma liberdade na escolha dos tempos da análise. Realmente, usando-se a irradiação manual, como se faz presentemente na mesa giratória, os tempos escolhidos estão seguramente próximos de otimização, mas a ressalva fica valendo para o caso de se usar o transporte pneumático, como será discutido mais adiante.

Para concluir a discussão, consideraremos a importância do tempo de contagem usando este mesmo cálculo para o U^{235} .

Partindo do rendimento e da percentagem da saturação — considerando o tempo de irradiação como sendo um minuto — obtemos a produção relativa de cada grupo. Podemos, então, calcular o decaimento simultâneo global dos seis grupos. Com isto, obteremos os seguintes resultados: até os quinze segundos correspondentes à espera, desintegram-se 50,0 % dos nuclídeos precursores formados; nos trinta segundos seguintes, há a desintegração de 27,8 %; nos seguintes trinta segundos, encontram fim mais 11,2 % dos nú

cleos precursores; enquanto que nos sessenta segundos seguintes, 7,6 % dos nuclídeos precursores decaem; sobrando então, apenas 3,4 % dêles, para decair num tempo indefinidamente longo. Podemos reorganizar êstes resultados da seguinte forma: consideremos que temos um tempo de espera pré-estabelecido de 15 segundos, a percentagem dos neutrons retardados que surgirão durante o tempo de contagem será de acôrdo com o seguinte quadro

TEMPO DE CONTAGEM (min.)	NÚMERO DE NEUTRONS (%)
1/2	27,8
1	39,0
2	45,6

Vemos que, se estendendo o tempo de contagem por um minuto haverá, ainda, 40 % mais de contagem do que a realizada em 30 segundos. No entanto, a contagem feita durante dois minutos não chega a crescer 20 % à contagem de um minuto. Podemos concluir que êste minuto adicional não será suficiente para modificar sensivelmente a estatística da contagem. Qualquer tempo adicional de contagem após êstes dois minutos só encontrará 3,4 % de nuclídeos precursores de neutrons retardados sobreviventes e isto não enriquecerá a contagem por mais de 7 %.

No esquema de uma irradiação de 60 segundos de duração, seguida de 15 segundos de espera, o tempo de contagem mais apropriado será seguramente um de 60 segundos de duração.

4.3. OTIMIZAÇÃO DO TEMPO DE ESPERA

Dissemos na descrição da sequência de operações da análise que a retirada da amostra do reator é um ponto crítico. Não somente porque ela constitui o término da irradiação, a qual não levando a amostra à saturação deve, por isso, ser bem cronometrada, mas, também porque, o desvio cometido no tempo de irradiação força automaticamente um desvio no tempo de espera porque o disparo dos contadores está amarrado com o início da irradiação, e os efeitos desses dois desvios são acumulativos.

Chamaremos este desvio de indeterminação na marca inicial do tempo de espera, e estamos interessados em conhecer a flutuação na contagem devida a esta indeterminação.

Faremos este cálculo para o U^{235} . Os outros elementos fissionáveis são bastante similares, o que justifica a ausência de um cálculo especial para eles; além do fato de que o efeito do U^{235} é, via de regra, predominante por sua alta seção de choque de fissão.

A ativação para um determinado grupo de neutrons retardados pode ser descrita por:

$$N_i = N_0 \phi \sigma_f \bar{\tau}_i (1 - e^{-\frac{T_0}{\bar{\tau}_i}}) \gamma_i$$

onde ϕ = o fluxo de neutrons

σ_f = a seção de choque de fissão

$\bar{\tau}_i$ = a vida média do grupo

T_0 = o tempo de irradiação no reator

γ_i = o rendimento da reação que conduz ao emissor de neutrons

Esta atividade quando é medida por um contador, aparece como:

$$C_i^*(t) = N_0 \phi \sigma_f \tau_i (1 - e^{-T_0/\tau_i}) \gamma_i \eta \frac{e^{-t/\tau_i}}{\tau_i}$$

onde η é a eficiência do contador. Realmente, η dependeria do grupo por que a eficiência está ligada à moderação dos neutrons, que por sua vez, depende da energia dos mesmos, e portanto, do grupo a que pertencem. A discussão da dependência da distribuição espacial do fluxo com a energia dos neutrons — e a distribuição espacial do fluxo de neutrons está diretamente ligada ao caráter geométrico da eficiência — foi feita no estudo da câmara moderadora. Contudo, cremos que a variação devida a η é desprezível e não a levaremos em conta.

Se introduzirmos um tempo de espera T_1

$$C_i(t) = N_0 \phi \sigma_f \tau_i (1 - e^{-T_0/\tau_i}) \gamma_i \eta e^{-T_1/\tau_i} \frac{e^{-t/\tau_i}}{\tau_i}$$

Um desvio no tempo de espera ΔT_1 nos dá um desvio na contagem de

$$\Delta C_i(t) = C_i(t) \Delta T_1$$

$$\Delta C_i(t) = N_0 \phi \sigma_f \tau_i (1 - e^{-T_0/\tau_i}) \gamma_i \eta e^{-T_1/\tau_i} \frac{\Delta t}{\tau_i}$$

Ao passo que o desvio relativo é

$$\delta_i = \frac{\Delta C_i(t)}{C_i} = \frac{\Delta C_i(t)}{\int_{T_1}^{\infty} C_i(t) dt}$$

$$\int_{T_1}^{\infty} C_i(t) dt = N_0 \phi \sigma_f \tau_i (1 - e^{-T_0/\tau_i}) \gamma_i \eta e^{-T_1/\tau_i}$$

$$\delta_i = \frac{N_0 \phi \sigma_f \tau_i (1 - e^{-T_0/\tau_i}) \gamma_i \eta e^{-T_1/\tau_i} \Delta t / \tau_i}{N_0 \phi \sigma_f \tau_i (1 - e^{-T_0/\tau_i}) \gamma_i \eta e^{-T_1/\tau_i}} = \frac{\Delta t}{\tau_i}$$

O que significa que os grupos de neutrons retardados, tomados os por si, têm um desvio relativo independente do tempo de espera T_1 . Porém, quando temos os seis grupos ativados simultaneamente, o desvio relativo do conjunto será:

$$\delta = \frac{\sum_{i=1}^6 \Delta C_i(t)}{\sum_{i=1}^6 C_i} = \frac{\sum_{i=1}^6 N_0 \phi \sigma_f \tau_i (1 - e^{-T_0/\tau_i}) \gamma_i \eta e^{-T_1/\tau_i} \frac{\Delta t}{\tau_i}}{\sum_{i=1}^6 N_0 \phi \sigma_f \tau_i (1 - e^{-T_0/\tau_i}) \gamma_i \eta e^{-T_1/\tau_i}}$$

$$\delta = \frac{\sum_{i=1}^6 (1 - e^{-T_i/\tau_i}) Y_i e^{-T_i/\tau_i} \Delta t}{\sum_{i=1}^6 \tau_i (1 - e^{-T_i/\tau_i}) Y_i e^{-T_i/\tau_i}}$$

Escolhendo previamente o tempo de irradiação $T_0 = 60s$, podemos escrever $Y_i (1 - e^{-T_0/\tau_i}) = Y_i^*$ e a expressão para o desvio relativo se reduz a

$$\delta = \frac{\sum_{i=1}^6 Y_i^* e^{-T_i/\tau_i}}{\sum_{i=1}^6 Y_i^* \tau_i e^{-T_i/\tau_i}} \Delta t$$

Com o processo de irradiação e cronometragem manual verificou-se experimentalmente ser possível manter um desvio na marca do tempo de espera da ordem de $\Delta t = 0,1$ segundo.

Com este desvio e o auxílio da fórmula acima vemos como o desvio relativo de contagem depende do tempo de espera.

Para tempo de espera nulo, $T_1 = 0$;	$\delta = 0,87 \%$
para tempo de espera $T_1 = 5s$;	$\delta = 0,47 \%$
para tempo de espera $T_1 = 10s$;	$\delta = 0,36 \%$
para tempo de espera $T_1 = 15s$;	$\delta = 0,31 \%$
para tempo de espera indefinidamente longo	$\delta = 0,12 \%$

Este último desvio relativo é também o desvio relativo correspondente ao primeiro grupo de neutrons retardados, o de vida média mais longa, e é devido exclusivamente ao fato de que a atividade medida não é constante com o tempo, mas decai exponencialmente com êle, e portanto, sua medida depende do instante em que é feita.

Como o desvio relativo decresce com o tempo de espera, poderia parecer que o tempo mais longo é o tempo ótimo; contudo, deve-se ter em mente que as meias-vidas em jogo são curtas e que qualquer espera é perda substancial de contagem. Levando em conta apenas estes dois fatores, chegaríamos à conclusão de que o tempo ótimo de espera é aquele que ocasiona um desvio relativo igual ao inverso da raiz quadrada do número de contagens; isto faz com que os desvios devido ao tempo de espera e o desvio devido à flutuação estatística da contagem sejam iguais, condição esta, necessária para mínimo desvio médio quadrático. O inconveniente deste critério é que o tempo de espera depende do conteúdo de urânio na amostra. Assim, uma amostra de

uma grama de rocha contendo até 1000 p. p. m. de urânio tem sua contagem ótima sem tempo de espera algum. Ao passo que uma amostra de 2000 p. p. m. possivelmente se beneficiaria com um tempo de espera de 5 segundos.

Para amostras mais ricas o tempo de espera pedido seria progressivamente maior, mas a melhoria do desvio relativa torna-se cada vez mais exígua para que se justifique uma preocupação maior com a questão. Por outro lado a estabilidade do fluxo no reator TRIGA é garantida dentro de 1% e o rendimento de neutrons retardados é proporcional ao fluxo, ou seja, esta estabilidade se reflete diretamente nas contagens. Aliás, com a sequência de experiências realizadas, principalmente com padrões puros, livres de qualquer tipo de interferência, nos leva a acreditar que pelo menos a longo prazo (horas) e nas condições atuais do reator,—é de se lembrar que pelas recomendações do fabricante, o reator já tem idade para uma limpeza total, incluindo desmonte das partes — esta estabilidade de 1% não é conseguida e fica muito a desejar. Note-se que, invertendo a ordem de dados e respostas, este método é, sem qualquer dúvida, muito apropriado para medir fluxo térmico de neutrons.

Estando já limitado pela estabilidade do reator, é inútil procurar minimizar, além de certo ponto razoável, aqueles desvios que já contribuem com uma fração pequena do desvio total; mesmo porque estes desvios de origem independente se somam quadráticamente o que faz com que os desvios maiores sobrepujem completamente os menores.

Vemos, a partir desta discussão, que um pequeno tempo de espera tem algumas vantagens na estatística das contagens. Para se obter resultados comparativos é necessário que se padronize este tempo de espera. Nesta fase inicial de testes, calibração e experiência, julgou-se conveniente fazer este tempo de espera, 15 segundos, uma vez que o transporte da amostra era feito manualmente, do reator para a aparelhagem de contagem. Este tempo de espera poderá ser diminuído ou mesmo eliminado no caso de se automatizarem as operações, usando-se o transporte pneumático. A técnica mais recomendada será a de rodar um padrão entre as amostras; e isto será sempre necessário, afim de se monitorar o fluxo de neutrons do reator. Uma vez que os padrões conhecidos sejam contados em igualdade de condições com as amostras, os conteúdos de urânio destas e daquelas serão proporcionais ao

número de pulsos contados, respectivamente. Isto ficou completamente demonstrado com a linearidade do método tanto em relação ao fluxo como em relação ao conteúdo de urânio.

5.1.

INTERFERÊNCIAS I: PARTIÇÃO GAMA E FONDONEUTRONS

Como o resultado final da medida é um certo número de pulsos contados durante um certo intervalo de tempo, este resultado terá valor até o ponto em que pudermos garantir que os pulsos correspondem às partículas desejadas.

Há sempre uma margem de contagens espúrias que aparecem mesmo na ausência da amostra: é a contagem de fundo. Como há também a possibilidade de que outras radiações, que não as focalizadas, se façam registrar nos totalizadores.

A construção deste conjunto detector foi particularmente feliz em relação à contagem de fundo. E isto seria o natural de se esperar pois um grande esforço foi investido na discriminação de neutrons das outras partículas; e neutron não é uma radiação abundante como radiação de fundo. Além do mais, devido aos escrúpulos de proteção da saúde dos operadores, a blindagem do sistema foi super-dimensionada. Para se ter uma idéia destas precauções, basta referir-se aos testes de blindagem descritos na "Aparelhagem Experimental", páginas atrás.

Quando o aparelho está colocado junto às capelas do sistema pneumático a contagem de fundo é de 3 a 4 pulsos por minuto. Colocado o aparelho às margens do reator, a contagem de fundo sobe para 14 pulsos por minuto. Nas medidas normais das amostras rotineiras nem se faz a correção de contagem de fundo uma vez que a contagem total se eleva normalmente pela ca

sa das decenas de milhares de pulsos por minuto.

Das outras radiações que são contadas juntamente com os neutrons a principal é a radiação gama. Os raios gamas podem interferir na contagem em diversas formas. Nas considerações relativas ao projeto da eletrônica associada vimos como os raios gama poderiam se amplificar formando ocasionalmente pulsos tão altos que não poderiam ser distinguidos da radiação neutrina pelo discriminador. Nesta mesma ocasião foi discutida a maneira de minimizar este aspecto com um projeto dirigido da parte eletrônica, o que provedor, quando testado experimentalmente, muito eficaz.

Também na descrição da construção da câmara de moderação foi mencionado que já se estava alerta a este problema; e que ao se formar o poço de contagem com uma camada espessa de chumbo, a idéia não era outra senão, atenuar a radiação gama, sem grande prejuízo para a radiação de neutrons.

Não só a radiação gama se faz contar mas também sua marca, formando neutrons através das reações (γ, n). Afortunadamente, o limiar das reações (γ, n) é bastante elevado, geralmente maior do que 6 Mev e que os pões fora do alcance dos radioisótopos exceto para o deutério (2,226 MeV) e o berílio (1,666 MeV). A tabela VI⁽¹⁹⁾ oferece uma lista dos radioisótopos capazes de produzir neutrons quando reagem com o deutério e o berílio.

O deutério está sempre presente, pois o moderador é feito de madeira de 90 kg de parafina; não é de se espantar que o berílio esteja presente na amostra, se bem que normalmente a baixas concentrações (talvez 100 ppm possa ser considerado típico).

O Na^{24} é sem dúvida um dos principais radioisótopos para a reação (γ, n) com o deutério. O Na^{24} tem uma meia-vida de 15 horas, a energia de sua radiação gama $E_\gamma = 2,75$ MeV—radiação sem competição. O núcleo pai é o Na^{23} , monoisotópico, com seção de choque de absorção $\sigma_a = 0,53$ barn.

Já em relação à formação de neutrons podemos dizer que o rendimento é para o Be : $1,9 \times 10^5$ neutrons/segundo/Ci e para o D = $2,7 \times 10^5$ neutrons/segundo/Ci.⁽⁶⁾ Em ambos os casos se considera o material a 1 cm de distância da fonte de 1 Ci.

Podemos tomar as seguintes seções de choque:⁽⁶⁾

$$\begin{aligned}\sigma_{\gamma n} &\approx 1 \text{ mbarn para o Be} \\ \sigma_{\gamma n} &\approx 1,6 \text{ mbarn para o D}\end{aligned}$$

TABELA VI

Radiosótopos emissores de gama ($E_\gamma > 1,67$ MeV)

NUCLÍDEO	E_γ (MeV)	$\sigma_{\text{ef.}}$ (barn)	RENDIMENTO γ (%)
Rb ⁸⁸	2,8	0,14	-
Na ²⁴	2,76	0,56	100
Tl ²⁰⁸	2,62		100
Cl ³⁸	2,15	0,6	47
Rb ⁸⁸	1,85	0,14	
Mn ⁵⁶	1,81	13,4	30
I ¹³⁵	1,8	6,3%	
Al ²⁸	1,78	0,25	100

Obs: Nuclídeos derivados da reação (n, γ) . I¹³⁵ é produto de fissão.

Gamas com eficiência < 10 % da atividade foram omitidos.

Para avaliar o efeito causado por estes elementos perturbadores calcularemos primeiro a ativação do Na^{23} .

Por grama de sódio temos

$$\Sigma = \sigma \frac{N_0}{A} = \frac{5,3 \times 10^{-25} \times 6 \times 10^{23}}{23} \times 10^3 = 1,4 \times 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{seg.}$$

e a ativação, 60 min. de irradiação $\ll T_{1/2}$, portanto

$$A = \Phi \Sigma t = 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ seg} \times 1,4 \times 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{ppm} \times 60 \text{ s} = 8,4 \times 10^4$$

A atividade γ do Na^{24}/g será, pois,

$$\frac{dN}{dt} = \frac{A}{T_{1/2}} = \frac{8,4 \times 10^4}{15 \times 60 \times 60} = 1,5 \times 10^7 \text{ } \gamma/\text{s} \cdot \text{g}_{\text{Na}}$$

No caso do Be^9 temos $\sigma_{\gamma,n} = 1 \text{ m barn}$, então

$$\Sigma = \sigma \frac{N_0}{A} = \frac{1 \times 10^{-27} \times 6 \times 10^{23}}{9} = 6,7 \times 10^{-4} \text{ n/g}$$

ou seja, o número de neutrons $= 1,5 \times 10^7 \times 6,7 \times 10^{-4} = 10^4 \text{ n/s}$ durante a contagem normal de 60 s obtendo $6 \times 10^7 \text{ neutrons}/\text{g}_{\text{Be}}/\text{g}_{\text{Na}}$. Deste mesmo cálculo vemos para 1 mg de Na e 1 mg de Be, ou seja, 1000 ppm de cada, obtemos 0,6 contagens. Em outras palavras, o fenômeno só será apreciável para teores mais elevados tanto de Be como de Na.

No caso do deuterio: Se tomamos a parafina na forma $(\text{CH}_2)_n$ para uma ordem de grandeza, teremos em toda massa moderadora 12 kg de hidrogênio. A abundância relativa isotópica natural do deuterio é de 0,015% e que faz participar da massa do moderador com 1,8 gramas. Ora, com $\sigma_{\gamma,n} = 1,5 \text{ m barn}$ haverá cerca de 10^3 reações (γ, n) por mg de Na.

Outro elemento de interesse é sem dúvida o Li^{20} , para o qual:

$$E_{\gamma} = 1,78 \text{ MeV}; \quad T_{1/2} = 2,3 \text{ min}; \quad \sigma_{\alpha} = 0,2 \text{ barn}$$

Como a energia do seu gama já é relativamente baixa somente pode interagir com o berílio.

Calculemos a ativação:

$$\Sigma = \frac{\sigma_a N_0}{A} = \frac{2 \cdot 10^{-25} \cdot 6 \cdot 10^{23}}{28} = 4,3 \cdot 10^{-3}$$

$$\Phi \Sigma t = 10^{12} \cdot 4,3 \cdot 10^{-3} = 430 = 2,6 \cdot 10^{11} \text{ átomos de Al}^{28}/g$$

A atividade é: $\frac{dN}{dt} \approx \frac{N}{T_{1/2}} = \frac{2,6 \cdot 10^{11}}{2,3 \cdot 60} = 1,9 \cdot 10^9$ (50 mCi / grama)

A seção de choque para a reação (γ, n) é $\sigma_{\gamma, n} = 2$ mbarn⁽⁶⁾ temos então

$$\Sigma = 1,3 \cdot 10^{-6} \text{ n}/\gamma / \text{mg, ou seja,}$$

$$1,9 \cdot 10^9 \cdot 1,3 \cdot 10^{-6} = 2,5 \cdot 10^3 \text{ n/s/ mg Be}$$

e no intervalo de contagem teremos

$$2,5 \cdot 10^3 \cdot 60 = 1,5 \cdot 10^5 \text{ neutrons.}$$

Isto para uma grama de alumínio. Se supusermos o alumínio presente em alguns por cento, e a eficiência dos fotoneutrons, baixa, porque a maior parte da radiação é perdida por geometria da amostra, a radiação dos fotoneutrons mal competirá com a correspondente de neutrons retardados de ^{238}U de urânio natural. Veja a discussão da eficiência absoluta do detetor.

Esta última fonte de neutrons $\text{Al}^{28} - \text{Be}$ não causa preocupação pois seria necessário tanto o alumínio como o berílio comparecer com relativa abundância na amostra. Contudo, a fonte de neutrons $\text{Na}^{24} - \text{D}$ depende apenas do sódio uma vez que o deutério está sempre presente. Decidiu-se que seria útil fazer um teste com o sódio. Tomou-se 5 gramas de carbonato de sódio puro (P.A.) e procedeu-se à análise, como se fôsse uma rocha, dando os mesmos tempos de irradiação, espera e contagem de uma análise comum. Não se observou contagem alguma adicional à escassa contagem de fundo.

Testes desta natureza são fáceis de serem realizados e na realidade são os mais efetivos pois dizem realmente se há ou não contribuição para a contagem, nas condições de operação. Uma sequência deles foi corrigida para verificar os tipos de invólucros que eram empregados, ou seja, os tubos de polietileno, tubo externo de acrílico.

Vez por outra, os tubos vão marcados com tintas ou amarrados com fitas adesivas de diferente natureza. Todas estas variações usuais foram testadas em vazio e mostraram não contribuir para a contagem.

Ao teste com 500 mCi de Al^{28} já se referiu na parte da construção do equipamento eletrônico, em face do problema de empilhamento de gama.

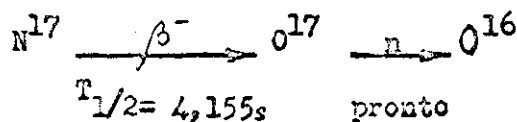
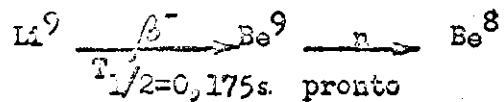
Mais ou menos surpreendente, foi o resultado dos testes com a agulha de rádio-226 de 5 mCi. Esta fonte deu uma contagem de ordem de 50 cpm. Como este foi um dos primeiros testes feitos, antes mesmo de se ter uma idéia mais nítida da sensibilidade da máquina para detecção de urânio e antes mesmo de estar definida a sequência de tempos de operação, parecia o prenúncio de sérios problemas com a radiação gama. Mas, finalmente, comparando os resultados obtidos de maneiras as mais diversas, parece insofismável que a fonte de rádio produz neutrons. Seria possivelmente através de uma reação (α, n) na platina⁽¹⁴⁾ do envólucro da agulha de rádio. Em condições comuns de contagem, estes neutrons são completamente mascarados pela alta atividade da fonte, por serem uma minoria, com a alta discriminação do conjunto detetor, esta minoria se manifesta.

Do ponto de interferência na medida, as reações (α, n) como a sugerida acima, assim como as reações (p, n) não são de nenhuma importância. As radiações alfa e proton são radiações prontas quando induzidas em reator. No caso da radiação alfa dos elementos radioativos naturais pesados já discutido desde a comparação dos métodos de análise que esta radiação é pequena para constituir problema na análise de rochas naturais.

5.2. INTERFERÊNCIAS II: OUTROS NEUTRONS RETARDADOS

Quando foi abordado o princípio em que se baseia o método, ficou dito que há quase uma exclusividade de emissão de neutrons retardados para os produtos de fissão. Alguns nuclídeos leves são exceções conhecidas a esta regra, e são apresentadas na tabela VII.⁽¹⁵⁾ O mecanismo de emissão do neutron é semelhante ao dos neutrons retardados de fissão. Constituem os nuclídeos Li^9 e N^{17} , os precursores dos neutrons retardados capazes de serem formados numa irradiação em reator. Ambos decaem por emissão beta e o núcleo composto formado, emite um neutron pronto. A emissão do neutron é uma reação de segunda ordem, e como é praticamente instantânea, a meia vida eficaz dos emissores dos neutrons é a meia vida dos precursores.

São as duas reações:



É evidente que, sendo neutrons retardados não haverá meio de distingui-los dos outros, uma vez formados. Podemos, contudo fugir da interferência esperando alguns segundos para fazer a contagem. Um segundo é suficiente para reduzir a contagem dos neutrons provenientes do Li^9 a um nada; ao passo que 17 segundos já representam quatro meias vidas dos neutrons

T A B E L A VII

NUCLÍDEOS LEVES PRECURSORES DE NEUTRONS RETARDADOS

PRECURSOR	EMISSOR	MEIA-VIDA (s)
He ⁸	Li ⁸	0,122
Li ⁹	Be ⁹	0,176
Be ¹²	B ¹²	0,011
C ¹⁶	N ¹⁶	0,74
N ¹⁷	O ¹⁷	4,16

provenientes da reação do N^{17} . Esta possibilidade de um tempo de espera entre a operação de irradiação de amostra e o início das contagens é a arma usada para contornar estes neutrons retardados de fontes espurias. Esta técnica se encontra pormenorizadamente descrita na parte da teoria da operação. Aqui estamos interessados em saber a origem desses núclídeos de vida curta, e quando podemos esperar a sua interferência, para ver até que ponto é eficaz a técnica da espera. Então, vejamos o mecanismo de formação do N^{17} .

No reator, o N^{17} pode ser formado por irradiação direta do O^{17} segundo a reação: $O^{17} (n, p) N^{17}$ ($Q = -7,9$ MeV). Esta ativação é normalmente pequena pois a participação do O^{17} no oxigênio natural é de apenas 0,039 % além do mais a reação exige neutrons muito energético e mesmo sem considerar a moderação, apenas uma pequena fração dos neutrons de fissão têm energia maior que 7,9 MeV. Sendo uma reação relativamente importante em reatores encontramos sua seção de ativação efetiva $\sigma_a = 5,2 \times 10^{-6}$ barn⁽⁶⁾ para o espectro de fissão. Portanto, em cada grama de oxigênio teremos $3,9 \times 10^{-4}$ g de O^{17} , o que corresponde a $\Sigma = \sigma_a \frac{N_a}{A} \times 3,9 \times 10^{-4} =$

$$\Sigma = \frac{5,2 \times 10^{-30} \times 6,03 \times 10^{23} \times 3,9 \times 10^{-4}}{17} = 7,2 \times 10^{-11} \text{ cm}^2/\text{g}$$

17

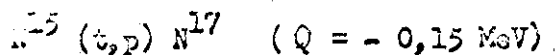
Com um fluxo $\phi = 10^{12}$ neutrons/cm²/s, esta seção macroscópica nos conduz a uma atividade de saturação de $A = \phi \Sigma = 10^{12} \times 7,2 \times 10^{-11} = 72$ neutrons/s. Com uma eficiência global de detecção da ordem de 1 % teremos uma contagem inicial de 43 cpm. Dando um tempo de espera de 15 segundos e contando por 60 segundos, a contagem total será:

$$C = \int_{15}^{75} N_0 e^{-t/\tau} dt = N_0 \tau \left[e^{-15/\tau} - e^{-75/\tau} \right] \approx 2 \text{ pulsos}$$

Outro mecanismo de formação do N^{17} , no reator, é indireto, através da reação:



Num segundo passo, o H^3 ou trício t é capaz de duas reações que levam ao N^{17} .



Para termos uma idéia do rendimento destas reações, precisamos primeiro calcular o rendimento de trício formado a partir do lítio, ${}^6\text{Li}$ constitui 7,4 % do lítio natural e sua seção de choque de absorção $\sigma_a = 910 \text{ b.}$ Um grama de lítio natural terá a seção macroscópica para a reação (n, α) .

$$\Sigma = \sigma \frac{N_a}{A} \nu = \frac{9,1 \times 10^{-22} \times 6,02 \times 10^{23} \times 7,4 \times 10^{-2}}{6} = 6,8 \text{ cm}^2/\text{g}$$

Com um fluxo $\phi = 10^{12}$ neutrons/cm²/s a densidade de reação seria $A = \Sigma \phi = 6,7 \times 10^{12}$ encontros, exceto pelo fato de que tal seção de choque impõe forte depressão ao fluxo e grande auto-blindagem. Na segunda etapa, consideramos o ${}^{18}\text{O}$ com sua abundância isotópica natural de 0,20 % e o ${}^{15}\text{N}$ comparecendo com 0,37 % do nitrogênio natural. Mesmo de posse das seções de choque para a reação com o trício, o cálculo do rendimento de ${}^{17}\text{N}$ torna-se impraticável pois, ao contrário dos neutrons, as partículas carregadas sofrem perda de energia nas camadas eletrônicas dos átomos. Assim sendo, o trício é freado por este processo e finalmente morre em sua maioria capturando um elétron orbital e transformando-se assim num átomo de H^3 . Essencialmente é a própria natureza do trício que impede a reação pois seu fluxo é comparável ao fluxo neutrônico local. Isto, associado à baixa abundância isotópica dos elementos em jogo, explica a fraca atividade das amostras que contêm lítio.

Nas rochas, o oxigênio é sempre abundante, podendo mesmo constituir grande parte de material. Mas oxigênio em si tem influência desprezível pois depende de seu isótopo ${}^{17}\text{O}$ que é escasso e tem uma seção de ativação efetiva muito pequena, pois a reação (n, p) que ele sofre tem o limiar elevado. Mas a presença abundante do oxigênio, garante a obtenção do ${}^{17}\text{N}$ através do lítio. Apesar do isótopo ativo do lítio comparecer com apenas 7,4 %, sua seção de choque compensa amplamente esta deficiência e o rendimento final só é pobre pela natureza do trício como partícula de bom

bardeio. A outra reação produtora de neutrons retardados se dá com o precursor Li^9 . Este nuclídeo é formado no reator a partir da reação.



Aqui aparece outra vez a interferência do berílio; já havíamos discutido sua capacidade de dar fotoneutrons, para o que, aliás, é o nuclídeo mais apropriado, pelo baixo limiar:



Mas voltemos à produção do Li^9 por ativação neutrônica. Podemos comparar esta reação diretamente à produção de N^{17} a partir de O^{17} . Se de um lado a produção do Li^9 é beneficiada pela abundância isotópica, por outro lado a seção de ativação eficaz fica automaticamente prejudicada pelo limiar elevado da reação. A energia de 13,3 MeV é realmente a cauda da curva de probabilidade de emissão dos neutrons de fissão. Enfim, não podemos esperar que o rendimento para Li^9 seja muito maior que o rendimento para N^{17} . Além do mais, o Li^9 tem a meia vida muito menor que o N^{17} . Além do mais, o Li^9 tem a meia vida muito menor que o N^{17} , donde a técnica do tempo é mais eficiente para ele. Sob o ponto de vista de interferência, Li^9 não constitui problema e mesmo em presença abundante de berílio pode ser superado com a técnica do tempo de espera.

5.3. INTERFERÊNCIAS III - OUTRAS CAUSAS DE DESVIOS

Vimos como radiações de outra natureza, bem como neutrons de outra origem, poderiam influir na análise. Contudo, mesmo a ativação pode ser modificada por elementos contidos na própria amostra. Esta modificação se daria por perturbações locais no fluxo de neutrons térmicos devidas a ditos elementos. É claro que alterações no fluxo de neutrons rápidos também são prejudiciais à contagem, mas na análise do urânio são de menor importância, além do que o fluxo de neutrons rápidos é menos susceptível a perturbações, uma vez que os elementos têm pequena seção de choque a altas energias. Contudo, na análise do tório ou numa medida de razão de cádmio teríamos que ficar atentos a tais fatores, principalmente à presença de elementos fortemente moderadores. É o caso do hidrogênio; se bem que o hidrogênio não ocorra em abundância em rochas, a ressalva ainda vale para o caso de se pretender estender o método a soluções aquosas.

A perturbação do fluxo de neutrons térmicos se dá em dois caminhos opostos; de um lado alguns elementos perturbadores provocam grande absorção e conseqüente depressão no fluxo térmico e de outro, outros elementos perturbadores causam a moderação do fluxo rápido e conseqüente exacerbação do fluxo térmico. Da mesma natureza que a absorção de neutrons térmicos e a depressão associada é a auto-blindagem no ^{235}U . Esta auto-blindagem se manifestará como uma saturação das contagens, o que acontece com uma grande concentração de urânio. Contudo, nas concentrações de minério pobre não é relevante, o que se pode facilmente inferir do estudo da linearidade do método que será apresentado mais adiante.

Elementos que apresentam seção de choque elevada na região térmica causam suspeita na precisão da medida, quando presentes nas rochas a ser analisadas. Uma inspeção numa tabela de seção de choque dos elementos na região térmica nos dá uma orientação nas possíveis interferências⁽²⁾. Alguns núclídeos de seção de choque elevada como o He³ e o Li⁶, devido às suas abundâncias isotópicas naturais baixas, não causam efeito notável. Esta também é a razão pela qual a auto-blindagem do U²³⁵ não é proeminente. Outros elementos que nas proporções isotópicas naturais têm grande seção de choque como o gadolínio (46,000 barns), samário (5.800 barns) e o európio (4300 barns) são suficientemente raros para não causar apreensão. Por isso veremos o caso do boro (759 barns) e do cádmio (2.450 barns). Podemos calcular o efeito da depressão local do fluxo devido ao absorvedor espalhado homogênea⁽¹⁶⁾mente na amostra.

$$\delta = 1 - \frac{9}{8} \frac{N_0}{\pi r(r+h)} \frac{m}{A} \sigma$$

Nos cilindros de polietileno de raio interno $r = 0,70$ cm, a amostra de uma grama tem uma altura típica de $h = 0,5$ cm. Com as dimensões acima a depressão torna-se expressa por

$$\delta = 0,257 \frac{m}{A} \sigma$$

σ expresso em barns. Depressão esta que corresponde a uma diminuição de contagem de 1,8% ou 0,56% para 1 mg de boro ou de cádmio na amostra, respectivamente. Os elementos seguintes na escala dos absorvedores de neutrons térmicos (Ir, Hg, In) já apresentam uma ordem de grandeza a menos na sua perturbação e não precisam ser considerados.

A exacerbação do fluxo térmico à custa da moderação de fluxo de neutrons rápidos pela amostra é mais rara. Contudo, o caso de soluções aquosas foi estudado experimentalmente pela necessidade de um padrão gravimétrico na forma de solução. Há um aumento de 5,0% na ativação de uma amostra de 2ml de solução e os pormenores experimentais são descritos na parte pertinente à calibração.

Podemos esperar desvios de outra natureza na medida.

Mesmo sem contar erros grosseiros devidos à má técnica (como tubos de irradiação contaminados de urânio) podemos esperar que haja variações de tubo para tubo devido a sua espessura; sendo o material do tubo orgânico, seu poder moderador é considerável e poderá modificar a razão

de fluxo rápido para fluxo térmico de neutrons. Foram feitas amostragens de vários tubos e notou-se que sua tolerância é suficiente para não causar problemas dessa natureza.

Quando é feita a razão de cádmio para se discriminar tório de urânio há a possibilidade da espessura do filtro de cádmio influir na razão ou mesmo que a depressão do fluxo local provocada pela presença do cádmio pudesse ser fortemente dependente da massa do cádmio. Contudo, foi observado que o fluxo de neutrons rápidos — que é o que interessa na medida segunda da razão de cádmio — não é afetado a ponto de transtornar a medida, podendo assim, haver uma tolerância das dimensões do filtro de cádmio — dentro de limites razoáveis, pelo menos — sem prejuízo da medida.

Outras flutuações comuns nos sistemas de contagem, as variações de geometria, não afetam o sistema, provavelmente porque a detecção do neutron se faz a uma distância relativamente grande da amostra e depende da prévia termalização. O contador em si, é robusto, não é sensível a vibrações e praticamente não apresenta problemas de envelhecimento.

Uma outra fonte de pulsos espúrios é devido à parte eletrônica. Ainda que as fontes de alta tensão pré-amplificadores e amplificadores sejam de confiança, introduzindo ruídos desprezíveis, toda vez que se opera com tensões acima de 2 KV e alta amplificação têm-se problemas com conectores e cabos. Ambos devem ser de alta qualidade. Mesmo com conectores e cabos escolhidos aparecem efeitos de envelhecimento com rupturas e efeito corona. Uma manutenção cuidadosa é requerida, principalmente no que se refere à limpeza das partes de alta tensão. Poeira, umidade e pequenos grãos de material estranho são capazes de fazer o sistema disparar pulsos, às vezes, em profusão. Isto não oferece maiores problemas de confiança uma vez que se teste frequentemente a contagem de fundo. Como o sistema é feito para baixa contagem de fundo, qualquer contagem espúria desta natureza é aparente.

O próprio fluxo do reator não é estável, o desejável para medidas por ativação de grande precisão. Além de pequenas flutuações a curto prazo há uma tendência contínua para diminuição do fluxo a longo prazo. As pequenas flutuações a curto prazo só podem ser remediadas com uma monitoração local do fluxo durante o processo mesmo da ativação. Esta operação, ainda que facilmente realizável por meio de seu testemunho padronizado, que

seria irradiado juntamente com a amostra e cuja ativação seria medida posteriormente, é necessariamente uma complicação a mais na análise que talvez não se justifique dado o estreito limitado das flutuações do fluxo. Já uma tendência de modificação do fluxo a longo prazo pode ser facilmente controlada fazendo-se periódica verificação do fluxo por meio de padrões de urânio, usando o próprio método dos neutrons retardados. Isto é realmente a técnica adotada; de tantas em tantas análises faz-se correr também um padrão que monitora o fluxo.

Finalmente, podemos dizer que ainda com a contagem de fundo praticamente inexistente — mesmo com o sistema de contagem ao lado do reator, que é a situação mais desfavorável, a contagem de fundo não chega a um equivalente de $1 \mu\text{g}$ de urânio na amostra — há a se considerar o desvio estatístico da contagem, que é a limitação última de toda análise por ativação.

6.1. CÁLCULO DA EFICIÊNCIA

Já vimos na discussão de câmara moderadora que a distribuição de fluxo de neutrons termalizados pode ser apropriadamente representada pela distribuição da primeira colisão dos neutrons com o hidrogênio, quando o meio é hidrogenoso. Ora, a função da distribuição da probabilidade de primeira colisão dos neutrons pode ser descrita para o sistema em foco, como

$$P(r) = 0 \quad \text{para } r < r_0$$

$$P(r) = \frac{\Sigma e^{-\Sigma(r-r_0)}}{4\pi r^2} \quad \text{para } r > r_0$$

onde r é a distância do ponto considerado à amostra emissora de neutrons retardados, r_0 é o raio do poço e Σ é a seção macroscópica de espalhamento eficaz para o meio

Ficou discutido também ao se tratar da câmara moderadora, que Σ é fortemente dependente da energia inicial dos neutrons e que é considerável o efeito de refletor dos núcleos de carbono. Como a seção de espalhamento é um dado experimental, usaremos o resultado mais aproximado de que dispomos para a situação.

A idade, à ressonância do In, para os quatro grupos de neutrons retardados de maior vida, é $7,1 \text{ cm}^2$, $9,2 \text{ cm}^2$, $8,6 \text{ cm}^2$ e $9,6 \text{ cm}^2$ em ordem de crescente de meia-vida.⁽¹⁷⁾

Do estudo dos tempos de irradiação, espera e contagem podemos apreender que a contribuição dos vários grupos para a contagem é da ordem de

22% para o grupo 1, 72% para o grupo 2 e 6% para o grupo 3, sendo que os demais grupos concorrem com contribuição desprezível. Isto faz com que a idade efetiva, à ressonância do In, seja para efeito da contagem

$$T = (0,22 \times 7,1 + 0,72 \times 9,1 + 0,06 \times 8,6) \text{ cm}^2$$

$$T = 8,6 \text{ cm}^2$$

Da distribuição de probabilidade da primeira colisão dos neutrons podemos tirar a seção macroscópica eficaz de espalhamento. ⁽⁷⁾

$$T = \frac{1}{6} \langle r^2 \rangle = \frac{1}{6} \int_0^\infty r^2 \frac{\Sigma e^{-\Sigma r}}{4\pi r^2} dV = \frac{1}{6} \frac{2}{\Sigma^2} = 8,6 \text{ cm}^2$$

$$\Sigma^2 = \frac{2}{6 \times 8,6 \text{ cm}^2} = 0,0387 \text{ cm}^{-2}$$

$$\Sigma = 0,196 \text{ cm}^{-1}$$

Calculemos a fração de neutrons que atinge o volume ocupado pelo detetor. Está implícito neste cálculo que o detetor se comporta como o meio moderador, o que é uma hipótese grosseira, mas em termos de distribuição de fluxo trata-se de uma perturbação de ordem superior ao efeito da primeira colisão.

$$P_1 = \int_V \frac{\Sigma e^{-\Sigma(r-r_0)}}{4\pi r^2} dV$$

$$P_1 = e^{-\Sigma r_0} \int_V \frac{\Sigma e^{-\Sigma r}}{4\pi r^2} dV$$

onde V é o volume do detetor. Considerando uma variação do fluxo apenas ao longo de seu comprimento, temos:

$$P_1 = e^{-\Sigma r_0} \int_0^\theta \frac{\Sigma e^{-\Sigma a / \cos \theta'}}{4\pi a^2 / \cos^2 \theta'} \pi R^2 \frac{a}{\cos^2 \theta'} d\theta'$$

$$P_1 = e^{-\Sigma r_0} \cdot \frac{\Sigma R^2}{2a} \int_0^\theta e^{-\Sigma a / \cos \theta'} d\theta'$$

onde R é o raio do detetor cilíndrico, a é a distância do detetor à amostra emissora de neutrons e 2θ o ângulo que a partir da amostra subtende o comprimento do detetor.

Como a distribuição cai rapidamente com θ crescente podemos escrever

$$P_1 \approx e^{-\Sigma r_0} \frac{\Sigma a^2}{2a} e^{-\Sigma a} \int_0^\theta e^{-\Sigma a \theta'^2/2} d\theta'$$

$$P_1 \approx e^{-\Sigma(a-r_0)} \frac{R^2}{2a\sqrt{a}} \int_0^\theta e^{-u^2} du$$

$$P_1 \approx e^{-\Sigma(a-r_0)} \frac{R^2}{2a\sqrt{a}} \left\{ 1 - \frac{2 e^{-\Sigma a \theta^2/2}}{\theta \sqrt{a\pi}} \right\}$$

Usando os dados da câmara moderadora, obtemos:

$$P_1 \approx 0,0405$$

Como são dois detetores, a probabilidade de um neutron retardado emitido pela amostra atingir qualquer um dos detetores é:

$$P_2 \approx 0,081$$

Como vemos, a distribuição geométrica do fluxo nos leva a uma eficiência muito baixa, pois considerando que a eficiência intrínseca de um detetor BF_3 é em torno de 46%,⁽¹⁾ obtemos:

$$\eta \approx 0,081 \times 46\% = 3,7\%$$

Como o B^{10} tem uma característica de captura de neutrons tipicamente de $1/\sqrt{E}$, sua seção de captura eficaz é praticamente independente do espectro de energia dos neutrons na região de energias baixas.

O urânio natural contém $\nu = 0,72\%$ de U^{235} e a seção de fissão térmica do U^{235} é $\sigma_f = 578$ barn,⁽²⁾ de modo que uma massa $m = 1$ mg de U_3O_8 com relação isotópica natural, no reator TRIGA a 100 MW, ou seja, num fluxo de

neutrons térmicos de $\bar{\Phi}_{th} = 5,87 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$, ⁽¹⁷⁾⁽¹⁹⁾ dará ao cabo de $T_0 = 60 \text{ s}$ de irradiação, precursores de neutrons retardados em número de

$$\begin{aligned}
 F &= \frac{\beta}{\Lambda} N_0 \sigma_{ch} \bar{\Phi}_{ch} \sum_{i=1}^6 \tau_i Y_i (1 - e^{-T_0/\tau_i}) \\
 &= \frac{10^{-3}}{238 + 16 \times 8/3} \cdot 6,02 \times 10^{23} \times 0,0072 \times 578 \times 10^{-22} \times 5,87 \times 10^{11} \\
 &\quad \times \sum_{i=1}^6 \tau_i Y_i (1 - e^{-T_0/\tau_i}) \\
 &= 50,8 \times 10^5 \sum_{i=1}^6 \tau_i Y_i (1 - e^{-T_0/\tau_i})
 \end{aligned}$$

onde Y_i é o rendimento de neutrons retardados do grupo i , por fissão, e τ_i a vida média do grupo i , tal como foi descrito no estudo da otimização dos tempos de operação. Com o tempo de ativação de 60 segundos, o termo exponencial afetará somente os dois primeiros grupos, reduzindo-lhes o rendimento global a 53% e 84% dos rendimentos de saturação, respectivamente

$$\begin{aligned}
 F &= 50,8 \times 10^5 (0,53 \times 81 \times 52 + 0,84 \times 32,8 \times 246 + 9,00 \times 310 + \\
 &\quad + 3,32 \times 624 + 0,877 \times 182 + 0,333 \times 86) \cdot 10^{-5}
 \end{aligned}$$

$F = 852 \text{ 000}$ precursores de neutrons retardados

dos quais apenas 46,6% decaem durante o tempo de contagem, o que com eficiência de contagem de 3,7% de

$$C = 852 \text{ 000} \times 0,466 \times 0,037 \text{ pulsos}$$

$$C = 14,700 \text{ pulsos}$$

Experimentalmente se obteve uma contagem de 16.300 pulsos o que corresponde a uma eficiência de

$$\eta_{exp} = 4,1\%$$

Podemos dizer que a concordância é boa, com isso querendo dizer que os principais fatores foram levados em consideração. Sem dúvida, a baixa eficiência de contagem é devida principalmente à distribuição do fluxo de neutrons na câmara moderadora. É verdade que algumas aproximações foram

feitas e que certos fatores não foram tomados em conta. Só consideramos a moderação até a ressonância do In (1,46 eV). Existe ainda a termalização e a difusão térmica, cujas tendências são no sentido de nivelar o fluxo, contribuindo, portanto, para um aumento de eficiência, uma vez que a primeira colisão se dá, mais abundantemente, na parte mais central. Porém, prejudicando a difusão térmica, temos a absorção de neutrons pelos núcleos de hidrogênio. Por outro lado, ainda como efeito secundário da difusão térmica, encontramos uma depressão do fluxo de neutrons térmicos na vizinhança dos detetores, o que, longe de significar uma diminuição de contagem, mostra como o poder absorvedor do detetor se manifesta além de suas fronteiras geométricas, o que é equivalente a dizer que suas dimensões eficazes são maiores que suas dimensões geométricas. Este último efeito já foi de uma certa forma levado em consideração na hipótese inicial de que poderíamos calcular o fluxo de neutrons supondo o meio homogêneo, mesmo com a presença do detetor, pois na realidade, não há praticamente primeiras colisões no detetor, e sim, na sua vizinhança.

6.2. CALIBRAÇÃO

Uma vez funcionando a aparelhagem, tentou-se a calibração da mesma. Foram seguidos os passos de calibração usados na técnica de espectrometria por fluorescência dos raios-X.⁽²⁰⁾

Depois de uma série de testes de interferência de outros elementos em matrizes sintéticas ficou comprovado que para os materiais normalmente submetidos à análise de rotina (rochas uraníferas de Araxá, Poços de Caldas, Bambuí e Nordeste Brasileiro) não havia interferência notável na análise.

A seguir foram feitos testes de linearidade de resposta, ainda com as técnicas referidas acima. Para esta finalidade pesou-se nitrato de uranila, padrão espectrométrico da companhia Johnson Matthey, "Specpure" com certificado de análise garantindo impurezas inferiores a 10 p. p. m., em quantidade suficiente para dar em balança de sensibilidade constante, desvio de ordem de uma parte em mil. Ao material assim pesado adicionou-se quantidades conhecidas de sílica moída, de alta pureza, proveniente de cristais de rocha de boa qualidade e já amplamente testada para técnica de fluorescência dos raios-X. A amostra obtida era homogeneizada em vibrador eletro-mecânico e novamente moída em gral. A porções pesadas desta mistura era adicionado novamente sílica em diversas proporções para se obter os padrões sintéticos de 25, 50, 75, 150, 250, 500, 750, p. p. m. .

A esta técnica que doravante será referida, neste trabalho como diluição

em fase sólida, se deve o conhecimento da linearidade de resposta deste método de análise. A linearidade do método pode ser julgada pelos dados apresentados na seção pertinente a resultados. Como as quantidades empregadas de nitrato de urânio eram conhecidas por pesadas, a máquina teria sido considerada calibrada se não fôsse pelo inesperado que se tinha de verificar a razão pela qual certos padrões químicos de outras procedências não se comportaram bem na técnica de fluorescência dos raios-X. Diga-se de passagem, que a razão deste mal comportamento não chegou a ser determinada, mas o uso de material proveniente das companhias químicas Baker, Merck e Carlo Erba mostrou todos eles darem resposta linear; porém, não havia concordância entre os padrões das várias procedências.

Como os desvios entre os vários padrões estavam muito acima de qualquer possível má técnica química, como se pode constatar nas páginas de resultados, a suspeita recaiu sobre algum aspecto físico, em particular mesmo, sobre a proporção isotópica dos constituintes do urânio, já que também o desvio era grande demais para ser considerado como perda de água de cristalização ou de erro de pesada; mesmo o processo de diluição em fase sólida não poderia ser o responsável por tal discrepância uma vez que a linearidade era boa. Sob esta suspeita também ficou o padrão Johnson & Matthey e com ele a primeira calibração.

Era necessário ter urânio de alta pureza e de sabida composição isotópica natural. Este material pôde nos ser oferecido por H.F. Batista, na forma de U_3O_8 , beneficiado nos laboratórios do I.P.R. a partir de minério brasileiro. Decidiu-se que uma nova comparação entre os padrões seria feita na mesma forma química e foi escolhida a forma de U_3O_8 por ser mais estável. Para isto foram levados à ignição os vários padrões, incluindo uma pastilha de urânio metálico natural da firma Reactor Experiments, em cadinhos de porcelana virgens. As várias amostras de U_3O_8 assim obtidas foram pesadas e sofreram o processo de diluição em fase sólida. O resultado da análise de ativação pelo método dos neutrons retardados foi coerente em si, porém era necessário ter a confirmação por outro método. A fluorescência dos raios-X chegou a dar um fator de dois entre certos padrões. Como as várias amostras de U_3O_8 eram provenientes de calcinação de substâncias quimicamente diferentes (nitrato, metal e óxido) supôs-se que deram produtos de granulação ou forma de aglomeração diferente que prejudicavam a ação dos

raios-X ou que sofriam diferentemente a ação da homogeneização. Esta hipótese era endossada pelo fato de que as amostras provenientes de nitrato de urânio eram coerentes entre si. Note-se que nesta etapa do trabalho eliminou-se, por escrúpulo, a passagem do padrão pelo gral. Tentou-se uma confirmação pela análise de ativação com contagem dos gamas do Np^{239} em multi canal. Esta análise confirmou que os raios-X estavam sendo de alguma forma descaminhados, mas não teve precisão suficiente para garantir a homogeneidade da diluição em fase sólida.

Decidiu-se então, que a calibração final seria feita com urânio em solução aquosa. Esta vinha sendo evitada pelo forte poder moderador da água. As várias formas químicas seriam primeiramente levadas à forma de U_3O_8 , então pesadas em quantidade suficiente para se obter boa precisão, daí solubilizada e diluída a concentrações convenientes. Com o uso de testemunhos, verificou-se que a precisão atingida era mais pobre que alguns porcentos. Atribuiu-se a discrepância a fatores inerentes à técnica volumétrica, por isso, a tentativa seguinte foi feita apenas com pesadas. Separaram-se três frações de U_3O_8 sabidamente de abundância isotópica natural, uma proveniente do I.E.A., de São Paulo, e as outras duas de tratamentos diferentes, mas ambas beneficiadas no I.P.R. Usou-se para pesagem uma balança do tipo automático cujas sensibilidade, reprodutibilidade e correção, foram testadas em toda a faixa de utilização, com a ajuda de pesos de balança analítica. Três erlenmeyers de 50 ml foram cuidadosamente lavados, secados e marcados, e a seguir pesados em sequência e a sequência das pesadas repetida três vezes, não apenas pela média, como também para evitar erros grosseiros de leitura. Cada um dos vidros recebeu uma porção das frações de U_3O_8 respectivamente. Tomou-se o cuidado de não deixar o óxido tocar os gargalos e as paredes do vidro, procurando-se depositá-lo diretamente no fundo do recipiente. Procurou-se colocar cerca de 100 mg de óxido em cada vidro, porém, não houve tentativa de levar exatamente a uma quantidade pré-determinada, evitando-se assim complexidade nesta operação de carga. Os óxidos foram pesados por diferença, em sequência, e a sequência repetida cinco vezes.

A seguir fez um ataque dos óxidos com 4 ml de HNO_3 , P.A., medidos com pipeta de 2 ml; aqueceu-se ligeiramente para favorecer a reação finalmente, diluiu-se cada porção com 40 ml de água bidistilada medidos

com pipeta de 20 ml. Uma vez homogeneizada, a solução foi pesada por diferença em sequência e a sequência repetida. Durante esta operação observou-se a velocidade de evaporação da água, e verificou-se ser desprezível nesta fase de operação. Levaram-se 2 ml de cada solução para tubos de polietileno próprios para irradiação, os quais tinham sido previamente, cuidadosamente lavados, secados, marcados e pesados. Os 2 ml de solução foram medidos com pipeta de 2 ml e pesados por diferença, em sequência, e a sequência repetida. Os tubos foram então fechados e lacrados com cera de abelha.

Os padrões assim preparados foram levados à análise por ativação pelo método dos neutrons retardados e analisados em sequência e a sequência repetida cinco vezes. Resultou numa concordância entre os padrões, com uma variação de duas partes em mil.

A seguir mediu-se o aumento percentual do fluxo térmico às expensas da moderação do fluxo de neutrons rápidos pela água. Foi usada a ótima solubilidade do nitrato de uranila; colocaram-se num tubo de polietileno de irradiação alguns grãos de nitrato de uranila e seu conteúdo de urânio foi medido por média de análises de ativação pelo método dos neutrons retardados; a seguir 2 ml de água foram adicionados a estes grãos de nitrato de uranila no tubo de polietileno, o que os dissolveu. Procedeu-se novamente à análise por neutrons retardados, agora simulando-se a situação dos padrões. O aumento percentual do fluxo térmico pela água é necessário para uma completa calibração.

A calibração do tório é bem mais simples por ser o tório um elemento monoisotópico e também por ser menos sensível à ativação de neutrons retardados. Pode-se analisar diretamente quantidades de óxido ou sais de tório grandes o suficiente para pesadas com precisão, ou seja, a calibração do tório dispensa a fase de diluição. Foram pesadas e analisadas diretamente porções de até 0,500 gramas de ThO_2 .

Para completar as calibrações é necessário ainda o elemento discriminativo entre o tório e o urânio: a razão de cádmio para o tório e o urânio. Foram utilizadas para este fim uma cápsula de cádmio cilíndrica de 10,0 mm de diâmetro interno e 1,0 mm de altura útil e todas as paredes de 1,0 mm de espessura. A quantidade de urânio (ou tório) foi medida pelo próprio analisador sendo para isto encapsulada por fita adesiva de modo não se perder material ao levar-se a amostra para a cápsula de cádmio. As a:

lises de urânio e tório, tanto sem blindagem como com blindagem de cádmio foram feitas por média de várias medidas e repetidas para diferentes quantidades de material. A razão de cádmio para o tório ficou sempre determinada com menor precisão que a do urânio por ser o tório sensivelmente menos afetado pela ativação.

6.3. DISCRIMINAÇÃO ENTRE TÓRIO E URÂNIO

Tanto o tório como o urânio são passíveis de produção de neutrons retardados de fissão. Assim, ambos podem ser analisados pelo método dos neutrons retardados. Contudo, quando estes elementos se encontram na amostra a ser analisada deve-se prover uma maneira de diferenciá-los. O tório e o U^{238} são bastante semelhantes no que se refere a seção de fissão, ambos têm um limiar de fissão bastante elevado. O U^{235} , porém, tem uma seção de fissão muito grande na região térmica. No caso de urânio natural, a relação isotópica do U^{235} para o U^{238} é constante, o que reduz o problema a apenas duas incógnitas. É, portanto, suficiente obtermos uma outra referência além da simples ativação da amostra para determinarmos o conteúdo de urânio e tório e esta referência nos é dada pela razão de cádmio da amostra, ou seja, a relação entre a contagem dos neutrons retardados quando a amostra é simplesmente ativada e a contagem da amostra ativada dentro de uma blindagem de cádmio. O cádmio sendo fortemente absorvedor de neutrons da região térmica do espectro, modifica drasticamente a resposta do U^{235} sem afetar grandemente a resposta do tório e do urânio 238. Temos assim duas equações linearmente independentes

$$C = K \cdot U + k \cdot Th$$

$$C_{cd} = K \cdot \frac{U}{R} + k \cdot \frac{Th}{r}$$

Onde, C e C_{Cd} são as contagens das ativações sem e com blindagem de cádmio respectivamente, U e Th os conteúdos de urânio natural e tório em μg , K e k as contagens específicas, em pulsos por μg , e R e r as razões de cádmio para urânio natural e tório, respectivamente.

Resolvendo estas equações para os conteúdos de tório e urânio obtemos:

$$U = \frac{C/r - C_{Cd}}{K} \frac{Rr}{R-r}$$

$$Th = \frac{C_{Cd} - C/R}{k} \frac{Rr}{R-r}$$

As constantes R e r dependem do espectro de energia dos neutrons, ou seja da geometria nuclear do reator, sendo invariantes com a potência e a grandeza do fluxo de neutrons e podem, portanto, ser previamente determinadas por reiteradas medidas. Encontramos os seguintes valores no TRIGA:

$$R = 27,8$$

$$r = 1,00$$

Desta forma, as equações para os conteúdos de tório e urânio podem ser escritos de forma mais simples.

$$U = \frac{1}{K} \left\{ C - \frac{RC_{Cd} - C}{R - 1} \right\}$$

$$Th = \frac{1}{k} \left\{ \frac{RC_{Cd} - C}{R - 1} \right\}$$

A expressão $(RC_{Cd} - C) / (R - 1)$ pode ser reconhecida como sendo a contagem devida ao tório e vamos simbolizá-la por C_{Th} .

Tanto K como k são dependentes da grandeza do fluxo de neutrons mas a razão K/k , tal como R e r , é uma constante da geometria nuclear do reator; para um dado reator, estas três grandezas dependem somente da posição de irradiação. Assim, para uma dada análise não precisamos determinar as duas constantes K e k , ou seja, não precisamos ter dois padrões, um pa

ra o urânio e outro para o tório, basta um deles, digamos o de urânio, que é mais sensível, o outro pode ser determinado pela razão K/k que, tal como R e r , pode ser previamente determinada por reiteradas medidas.

Assim, podemos escrever:

$$U = \frac{1}{K} (C - C_{Th})$$

$$Th = \frac{1}{K} \left(\frac{K}{k} C_{Th} \right)$$

$$e, \quad C_{Th} = \frac{R C_{Cd} - C}{R - 1}$$

Usando as constantes determinadas obtemos:

$$U = \frac{1}{K} (C - C_{Th})$$

$$Th = \frac{1}{K} (266 C_{Th})$$

$$C_{Th} = 1,037 \left(C_{Cd} - \frac{C}{27,8} \right)$$

A medida de K deve ser feita a cada pequena série de análises, pois ela corresponde a uma monitoração do fluxo de neutrons.

Consideremos agora o desvio destas medidas. O desvio correspondente às constantes já substituídas deve ser considerado como desvio sistemático e depende de uma boa calibração para ser minimizado. O desvio devido à medida de K depende fortemente do conteúdo de urânio do padrão e pode ser feito pequeno a ponto de ser desprezível comparado com outros desvios, usando-se um padrão suficientemente rico em urânio.

Já os desvios devidos à contagem de ativação na amostra, C , e de sua razão de cádmio, C_{Cd} , são dependentes do conteúdo de urânio e tório da própria amostra e podem ser calculados:

$$\Delta U \Big|_{\Delta C_{Cd}=0} = \frac{\partial U}{\partial C} \Delta C = \frac{R}{K(R-r)} \Delta C = 0,0635 \Delta C$$

$$\Delta U \Big|_{\Delta C=C} = \frac{\partial U}{\partial C_{Cd}} \Delta C_{Cd} = \frac{Rr}{K(R-r)} \Delta C_{Cd} = 0,0635 \Delta C_{Cd}$$

$$\Delta_{C_{Cd}} \left. \Delta_{Th} \right]_{\Delta C = 0} = 0 = \frac{\partial Th}{\partial C} \Delta C = \frac{r}{k(R-r)} \Delta C = 0,6075 \Delta C$$

$$\Delta_{\Delta C = 0} \left. \Delta_{Th} \right]_{\Delta C_{Cd}} = 0 = \frac{\partial Th}{\partial C_{Cd}} \Delta C_{Cd} = \frac{Rr}{k(R-r)} \Delta C_{Cd} = 16,9 \Delta C_{Cd}$$

Como são de origem independente, estes desvios se somam quadráticamente:

$$\Delta U = \sqrt{(0,0635 \Delta C)^2 + (0,0635 \Delta C_{Cd})^2}$$

$$\Delta_{Th} = \sqrt{(0,6075 \Delta C)^2 + (16,9 \Delta C_{Cd})^2}$$

Levando em consideração apenas o desvio estatístico da contagem:

$$\Delta U = 0,0635 \sqrt{C + C_{Cd}}$$

$$\Delta_{Th} = 0,6075 \sqrt{C + 27,8 C_{Cd}}$$

Podemos estar interessados apenas no desvio relativo, neste caso, basta lidar com as contagens:

$$C_U = C - C_{Th}$$

$$C_{Th} = (R C_{Cd} - C) / R - 1$$

$$\Delta_{C_U} \left. \Delta_{C_{Cd}} \right]_{\Delta C = 0} = \frac{R}{R-1} \Delta C = 1,037 \sqrt{C}$$

$$\Delta_{C_U} \left. \Delta_{C_{Cd}} \right]_{\Delta C = 0} = \frac{R}{R-1} \Delta C_{Cd} = 1,037 \sqrt{C_{Cd}}$$

$$\Delta_{C_{Th}} \left. \Delta_{C_{Cd}} \right]_{\Delta C = 0} = \frac{1}{R-1} \Delta C = 1,037 \sqrt{C / 27,8}$$

$$\Delta_{C_{Th}} \left. \Delta_{C_{Cd}} \right]_{\Delta C = 0} = \frac{R}{R-1} \Delta C_{Cd} = 1,037 \sqrt{C_{Cd}}$$

$$\Delta c_U = 1,037 \sqrt{c + c_{ca}}$$

$$\Delta c_{Th} = 1,037 \sqrt{\frac{c}{27,3} + c_{ca}}$$

$$\frac{\Delta c_{Th}}{c_{Th}} = \frac{\sqrt{\frac{c}{27,3} + c_{ca}}}{c_{ca} - \frac{c}{27,3}}$$

$$\frac{\Delta c_U}{c_U} = \frac{\sqrt{c + c_{ca}}}{c - c_{ca}}$$

RESULTADOS E CONCLUSÕES

7.1. RESULTADOS

1- Linearidade - Apresentamos abaixo uma tabela típica de medidas de linearidade. Os padrões sintéticos foram preparados pela técnica de diluição em fase sólida, descrita ao se tratar da calibração. Usou-se nitrato de uranila "Specpure" da Johnson & Matthey. A coluna p. p. m. se refere a g equivalente U_3O_8 e correspondem numericamente a g de U_3O_8 já que a massa das amostras era de 1,000 g. As medidas foram feitas com os tempos padronizados descritos anteriormente, com irradiação na mesa giratória do TRIGA a 100KW em sequência no tempo, e com um mínimo de atraso entre cada análise. A contagem é proveniente de uma única medida.

p. p. m.	Contagem
25	375
50	655
75	989
150	2062
250	3454
500	6876
750	10160
1000	13850

O gráfico correspondente a esta tabela se encontra na página seguinte.

2- Calibração - A tabela VIII apresenta os resultados da calibração gravimétrica descrita anteriormente. A coluna I se refere ao material proveniente do I.E.A., e as colunas II e III se referem às duas partidas do I.P.R. Foram conservados algarismos sem significado para se evitar propagação dos erros. Os valores da tabela são médias de um número de medidas variável de etapa para etapa e já mencionados na descrição da calibração.

3- Aumento percentual do fluxo térmico devido ao poder moderador da água - Ligado à calibração com padrão em solução aquosa, está o aumento percentual do fluxo térmico às expensas do fluxo epitérmico e rápido por causa do poder moderador da água. Este aumento foi medido e mostrou ser de 5,0% para 2,0 ml de água os quais correspondem ao volume da solução usada como padrão.

4- Sensibilidade - Da calibração gravimétrica obtivemos uma contagem específica de 17,16 pulsos por μg de urânio natural em equivalente de U_3O_8 . Mesmo com a correção devida à perturbação do fluxo pela água da solução padrão, ainda estamos na mesma ordem de grandeza com $K = 16,34$ pulsos por μg de urânio natural. Como a contagem de fundo é normalmente em torno de 10 ou 12 pulsos por minuto, podemos considerar que 1 μg de urânio natural é o limiar de sensibilidade do sistema.

Esta sensibilidade corresponderá a um limiar de aproximadamente 0,01 μg para U^{235} , U^{233} e Pu^{239} , no caso de usar o sistema para estudos de enriquecimento e criação de material físsil. Ao passo que o limite de sensibilidade para o tório se reduz a 300 μg de ThO_2 .

5- Eficiência - Também como fruto da calibração absoluta obtém-se a eficiência de contagem do sistema. Esta eficiência foi comparada com a eficiência teórica, páginas atrás, com a qual foi bem concordante.

$$\text{Obteve-se } \eta = 4,1\%$$

6- Calibração para análise de tório - Diferentes massas de ThO_2 em pó fo

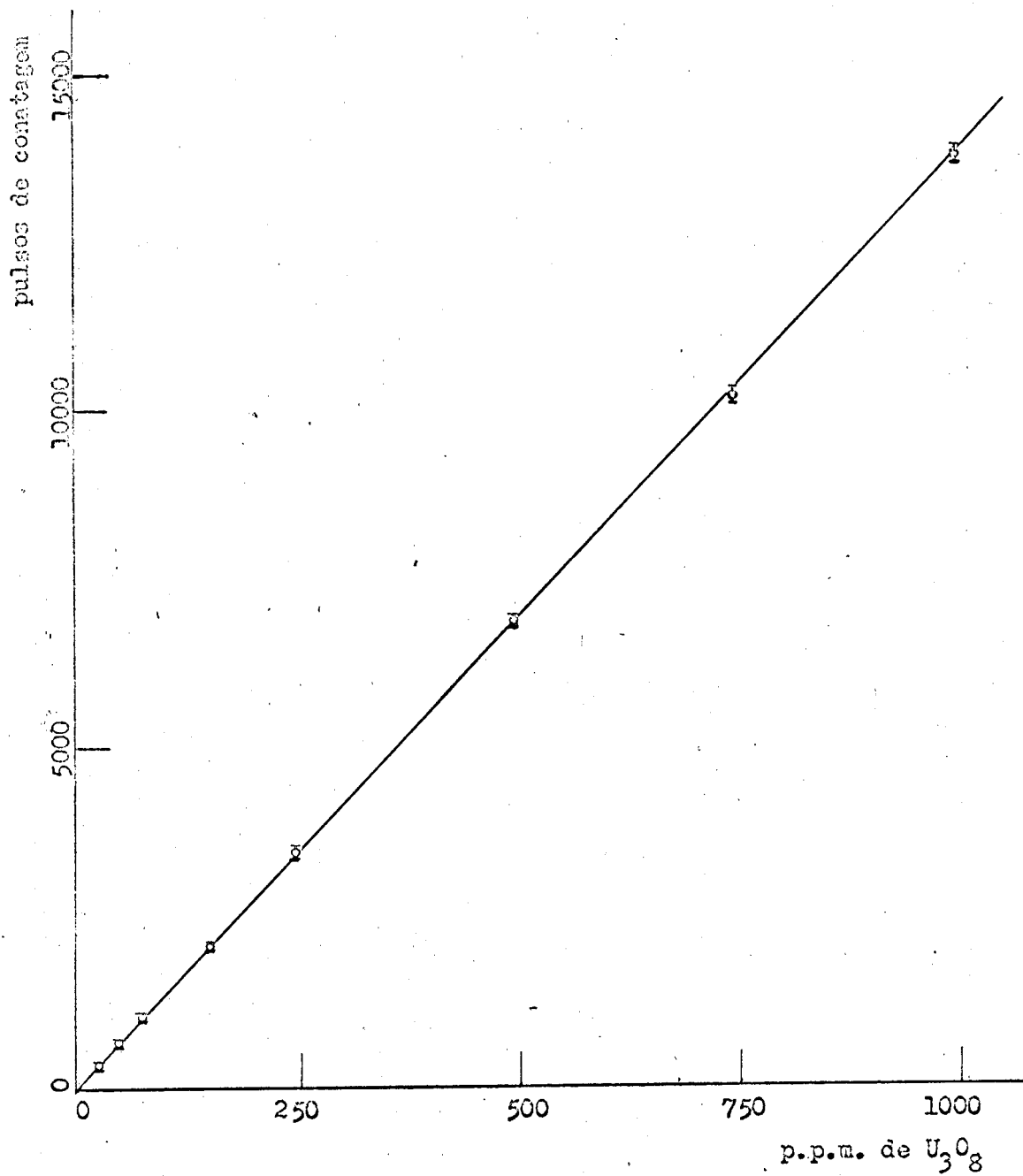


Fig.8- Curva de calibração: linearidade.

TABELA VIII

ETAPAS DA CALIBRAÇÃO GRAVIMÉTRICA

Procedência	I I. E. A.	II I. P. R.	III I. P. R.
Massa dos erlenmeyers (g)	23,92039	30,72036	33,99200
Massa dos erlenmeyers + U ₃ O ₈ (g)	24,02873	30,81978	34,09807
Massa do U ₃ O ₈ (p/ diferença) (mg)	98,34	99,42	106,07
Erlenmeyer + Solução (U ₃ O ₈ + 40ml HNO ₃ + 40ml H ₂ O) (g)	69,22190	76,02875	79,27620
Massa da solução padrão (p/ diferença) (g)	45,29151	45,30839	45,28420
Massa do tubo de irradiação (g)	3,67600	3,18952	3,15043
Tubo de irradiação + 2ml solução padrão (g)	5,69010	5,25345	5,23000
Massa da amostra padrão (p/ diferença) (g)	2,01410	2,06893	2,07957
Massa da amostra padrão +- massa da solução (%)	4,446970	4,55293	4,59263
Equivalente U ₃ O ₈ na amostra padrão (mg)	4,27315	4,52887	4,87101
Contagem média (análise p/ neutrons retardados) (pulsos)	74.898	77.822	83.615
Contagem específica (pulsos/μg)	17,127	17,126	17,166

Contagem Específica Média: 17,16 pulsos/μg

ram pesadas e analisadas diretamente, sem qualquer processamento. Foi obtido

$$k = 61,43 \text{ pulsos por mg}$$

7- Razão de cádmio - Também descrita como um elemento de calibração, por ser necessária para uma discriminação entre o tório e o urânio, a razão de cádmio foi determinada tanto para o tório como para o urânio, com o seguinte resultado proveniente de média de múltiplas medidas.

Razão de cádmio para o tório:

$$r = 1,00$$

Razão de cádmio para urânio:

$$R = 27,8$$

8- Relação isotópica - Tendo-se a massa de urânio da amostra e sabendo-se que nela não há tório ou outro material fissolinável, a calibração absoluta para urânio natural nos permite calcular a relação isotópica do urânio da amostra. Como resultado da fase experimental da calibração, foram feitas séries de padrões sintéticos a partir de padrões químicos de urânio de várias procedências. Foi constatado que os padrões químicos tinham todas relações isotópicas diferentes da natural. A título de ilustração apresentamos este resultado:

Procedência	$\frac{^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}}$
I.P.R. (natural)	0,72
Reactor Experiments.	0,70
Johnson & Matthey	0,66
Baker	0,62
Merck	0,44

9- Análises de rotina - O resultado mais importante é sem dúvida a facilidade com que o método foi posto em rotina e a confiança em seus resultados. O I.P.R. possui, na Divisão de Materiais, milhares de amostras de material uranífero analisado. Estas amostras servem, entre outras coisas

para uma eventual verificação de análises já feitas. O método dos neutrons retardados foi usado numa confirmação daquelas análises em áreas de maior interesse. Os resultados da análise pelo método dos neutrons retardados confirmaram a análise por espectrometria de fluorescência dos raios-X dentro de 5%, o que redobrou a confiança no enorme trabalho analítico já feito.

10--Padrões Internacionais - Tivemos a oportunidade de analisar material uranífero padronizado através de análises de várias instituições filiadas à International Atomic Energy Agency. O resultado das análises pelo método dos neutrons retardados é apresentado abaixo:

Amostra	Contagem (pulsos)	Conteúdo (%)	Valor I.A.E.A. (%)
S ₁	74 377	0,476 [±] 0,002	0,471
S ₂	48 674	0,311 [±] 0,002	0,313
S ₃	64 866	0,415 [±] 0,002	0,418
S ₄	57 564	0,368 [±] 0,002	0,375
Padrão	71 686		

Foi analisado 1,000 g de cada material. Todas as contagens são médias de duas análises. As contagens do padrão (solução aquosa) devem ser corrigidas dos 5,0% de aumento do fluxo térmico por causa do poder moderador da água; na rotina, evita-se este incômodo calibrando-se um padrão sintético sólido, por comparação de ativação. O desvio assinalado nos resultados se refere apenas à estatística de contagem.

Para comparação, o resultado de outras análises destes materiais é reproduzida nas páginas seguintes.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY

CERTIFICATE

REFERENCE SAMPLE S 1

LOW GRADE URANIUM ORE

TORBERNITE (ORIGIN: AUSTRALIA)

4756
 U_3O_8 : 0.471 % (based on sample heated for one hour at 110°C)

Results by the following methods were used to evaluate the uranium content:

Photometric:	(1) thiocyanate	Average: 0.473 %
	(2) dibenzoyl methane	" : 0.470 %
Volumetric:	ceric sulphate titration	" : 0.469 %

General Composition

(Quantitative)

(Semi-quantitative)

Al_2O_3	6.4 %	B_2O_3	0.04 %	Na_2O	<0.1 %
Fe_2O_3	3.6 %	BaO	0.03 %	NiO	0.002 %
K_2O	1.1 %	CaO	0.06 %	PbO	0.02 %
MgO	0.39 %	Cr_2O_3	0.01 %	SrO	<0.04 %
SiO_2	85.0 %	CuO	0.04 %	TiO_2	0.5 %
		Ga_2O_3	0.002 %	V_2O_5	0.03 %
		Li_2O	0.006 %	P_2O_5	<0.7 %
		MnO	0.03 %	ThO_2	10 ppm

Powder ground to pass 200 mesh.

The following laboratories collaborated in establishing the uranium content:

Australian Atomic Energy Commission, Research Establishment, Lucas Hts., Sydney; Canada: Metallurgical Laboratories, Eldorado Mining and Refining Ltd., Ottawa; Canada: Department of Mines and Technical Surveys, Extraction Metallurgy Division, Ottawa; France: Commissariat à l'Energie Atomique, Fontenay-aux-Roses; Poland: Instytut Badań Jadrowych, Warszawa; South Africa: Government Metallurgical Laboratory, Johannesburg; Spain: Junta de Energia Nuclear, Madrid; U. S. A.: Lucius Pitkin Inc., Grand Junction, Colorado.

The ore was prepared by the Junta de Energia Nuclear Spain, who also supplied the general analysis.

This sample is intended for checking chemical methods of analysis for uranium. It is not guaranteed that it is in radioactive equilibrium.

May 1967

Kärntnering 11
 1010 Vienna, Austria

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY

CERTIFICATE

REFERENCE SAMPLE S 3

LOW GRADE URANIUM ORE

CARNOTITE (ORIGIN: U.S.A.)

U_3O_8 : 0.418 % (based on sample heated for one hour at $110^\circ C$)

Results by the following methods were used to evaluate the uranium content:

Photometric:	(1) thiocyanate	Average:	0.420 %
	(2) dibenzoyl methane	" :	0.419 %
	(3) arsenazo	" :	0.417 %
Volumetric:	ceric sulphate titration	" :	0.415 %

General Composition

(Quantitative)

(Semi-quantitative)

Al_2O_3	6.0 %	B_2O_3	< 0.003 %	SrO	< 0.04 %
CaO	0.55 %	BaO	0.04 %	ZnO	0.04 %
Fe_2O_3	0.5 %	Cr_2O_3	< 0.004 %	CuO	< 0.02 %
MgO	1.2 %	K_2O	2.5 %	MnO	< 0.09 %
Na_2O	1.05 %	SiO_2	> 80 %	P_2O_5	< 0.1 %
TiO_2	0.33 %			ThO_2	4 ppm
V_2O_5	0.58 %				

Powder ground to pass 200 mesh.

The following laboratories collaborated in establishing the uranium content:

Australian Atomic Energy Commission, Research Establishment, Lucas Hts., Sydney; Canada: Metallurgical Laboratories, Eldorado Mining and Refining Ltd., Ottawa; Canada: Department of Mines and Technical Surveys, Extraction Metallurgy Division, Ottawa; France: Commissariat à l'Energie Atomique, Fontenay-aux-Roses; Poland: Instytut Badań Jadrowych, Warszawa; South Africa: Government Metallurgical Laboratory, Johannesburg; Spain: Junta de Energia Nuclear Madrid; U. S. A.: Lucius Pitkin Inc., Grand Junction, Colorado.

The ore was prepared by the Junta de Energia Nuclear Spain, who also supplied the general analysis.

This sample is intended for checking chemical methods of analysis for uranium. It is not guaranteed that it is in radioactive equilibrium.

May 1967

Kärntnering 11
1010 Vienna, Austria

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY

CERTIFICATE

REFERENCE SAMPLE S 4

LOW GRADE URANIUM ORE

URANINITE (ORIGIN: AUSTRALIA)

208
 U_3O_8 : 0.375 % (based on sample heated for one hour at 110°C)

Results by the following methods were used to evaluate the uranium content:

Photometric:	(1)	thiocyanate	Average:	0.377 %
	(2)	dibenzoyl methano	"	: 0.376 %
	(3)	arsenazo	"	: 0.377 %
Volumetric:		ceric sulphate titration	"	: 0.372 %

General Composition

(Quantitative)			(Semi-quantitative)					
Al_2O_3	16.5 %		MnO	0.35 %	B_2O_3	0.05 %	Ga_2O_3	0.005 %
CaO	0.52 %		Na_2O	0.18 %	BaO	0.03 %	Li_2O	0.02 %
CuO	0.02 %		P_2O_5	0.54 %	CoO	0.004 %	NiO	0.004 %
Fe_2O_3	12.8 %		SiO_2	58.0 %	Cr_2O_3	0.006 %	PbO	0.1 %
K_2O	1.4 %		TiO_2	0.81 %			ThO_2	5 ppm
MgO	10.6 %		V_2O_5	0.08 %				

Powder ground to pass 200 mesh.

The following laboratories collaborated in establishing the uranium content:

Australian Atomic Energy Commission, Research Establishment, Lucas Hts., Sydney; Canada: Metallurgical Laboratories, Eldorado Mining and Refining Ltd., Ottawa; Canada: Department of Mines and Technical Surveys, Extraction Metallurgy Division, Ottawa; France: Commissariat à l'Énergie Atomique, Fontenay-aux-Roses; Poland: Instytut Badań Jadrowych, Warszawa; South Africa: Government Metallurgical Laboratory, Johannesburg; Spain: Junta de Energía Nuclear, Madrid; U. S. A.: Lucius Pitkin Inc., Grand Junction, Colorado.

The ore was prepared by the Junta de Energía Nuclear Spain, who also supplied the general analysis.

The sample is intended for checking chemical methods of analysis for uranium. It is not guaranteed that it is in radioactive equilibrium.

May 1967

Kärntnerring 11
 1010 Vienna, Austria

7.2. APLICAÇÕES ADICIONAIS

O sistema de análise pelo método dos neutrons retardados discutido neste estudo foi especificamente projetado para análise rotineira de minérios uraníferos relativamente pobres; e, ainda, é nessa direção que se pretende complementar comodidades. Assim, será acrescentado ao sistema um transporte pneumático de amostras, capaz de levar a amostra à ativação no reator e decorrido o tempo de ativação, transportá-la até o sistema de contadores, de onde será expulsa e armazenada após a contagem; ao passo que os tempos das operações são comandados automaticamente e o resultado da contagem impresso, reduzindo assim, a possibilidade de erros grosseiros do operador.

Contudo, qualquer problema que possa ser colocado em termos de contagem de neutrons, de fontes ou amostras de dimensões relativamente pequenas, será possivelmente bem abordado com este equipamento, uma vez que a discriminação entre neutrons e outras radiações é quase absoluta, podendo-se com isto, detetar neutrons claramente, mesmo quando estão em franca minoria.

Já vimos como o fluxo do reator deve ser monitorado durante a análise. De fato, esta monitoração por um padrão de urânio pode ser convertida em medida de fluxo de alta precisão. Durante uma das análises de rotina, verificou-se uma incoerência entre as atividades produzidas quando o padrão era irradiado em compartimentos diferentes da mesa giratória. A con

tatagão de que havia material estranho num dos compartimentos e sua subsequente limpeza sanou a discrepância que era da ordem de 20%. Normalmente quando se tem ciência de algum acidente, cujo resultado é a contaminação do compartimento da mesa, faz-se a limpeza do compartimento imediatamente. Contudo, contaminações desconhecidas, acumuladas durante anos de operação do reator, pode levar a uma situação em que as análises comuns de ativação que algumas vezes são feitas com testemunhos irradiados em diferentes compartimentos, tornam-se completamente falhas. J. Mendonça utilizou o método dos neutrons retardados para uma verificação de todos os compartimentos da mesa giratória e em questão de horas conseguiu que os compartimentos da mesa ficassem completamente limpos. Os outros métodos de dosagem têm-se mostrado muito mais morosos e trabalhosos.

Deve-se notar a facilidade com que se duplica um padrão de confiança, quando se usa o método dos neutrons retardados. Também, é de significação que se possa construir um padrão de dimensões tão pequenas que se comportará como um dosímetro puntiforme. Além disso, deve-se consignar que pequenas quantidades de urânio natural não alteram o fluxo o que é demonstrado pela linearidade da detecção e, no entanto, apresentou atividade alta capaz de ser medida com precisão. Isto deve ser ressaltado, porque uma das deficiências mais aborrecidas de tratamento numa medida de fluxo é a depressão causada pelo próprio detetor.

Uma extensão da medida finamente localizada do fluxo é a medida de perturbação do fluxo por diversos materiais. Com montagem apropriada pode-se estudar a variação do fluxo de neutrons tanto no interior do material como na sua vizinhança. Esta vantagem se faz notar quando se quer estudar condições de fronteira entre dois meios. Com isto se torna um meio de detecção muito útil numa montagem crítica ou subcrítica, para determinação de parâmetros.

No caso de estudo de meios homogêneos, em que o material físsil está intimamente distribuído no moderador, pode-se estudar com relativa facilidade as proporções dos constituintes tendo em vista a absorção e a multiplicação de neutrons.

Um elemento que tenha vários isótopos e entre eles um fortemente absorvedor de neutrons, como o helio, o lítio, o boro e o cádmio, pode ter sua relação isotópica determinada pelo efeito da depressão de fluxo causa-

sada em seu seio. O enriquecimento isotópico de tais elementos é frequentemente utilizado por causa de sua capacidade de detecção.

No caso particular do lítio, pode-se usar a própria reação secundária, devida ao trítio e produtora de neutrons retardados — como ficou discutido no tocante às interferências — para sua dosagem, ou o estudo de relação isotópica.

No que tange o enriquecimento isotópico, deve-se fazer referência à facilidade com que êste é determinado no urânio. Além disso, existe a possibilidade da dosagem de U^{233} e Pu^{239} , em estudos de produção de material físsil ou estudos de conversão.

Há também a possibilidade de se monitorar neutrons produzidos em acelerador. Como êsses neutrons são de 3 MeV e 14 MeV é conveniente usar o tório como detetor.

Já a calibração de fontes de neutrons, que seria uma aplicação muito desejável, deve ser encarada com certa reserva, pois nêste sistema só é possível comparação de fontes de mesma natureza, pois como vimos na discussão da eficiência, esta é fortemente dependente do espectro da energia dos neutrons.

R E F E R Ê N C I A S

- 1) G. Fraysse - "Décteurs et circuits de déctection de neutrons térmiqnes"
International Symposium on Nuclear Electronics-Versailles
Vol. I - Sept. 1968
- 2) BNL - 325 - "Neutrons cross sections" - Nova York
1958
- 3) S. Katcoff - "Fission-products yelds from neutron induced fission"
Nucleonics
Vol. 18, nº 11, pag. 201 - Nov. 1960
- 4) C. Goodman - "Introduction to pile Theory"
(editor) Addison-Wesley Press. - Cambridge, Mass.
2ª ed. - 1952
- 5) H. Gauvin - "Emission de neutrons différés dans les réactions nucleai
-res induites"
Delayed Fission Neutrons I.A.E.A. - Viena
pag. 167 - 1968
- 6) ANL - 5800- "Reactor Physics Constants"
Argonne National Laboratory - Publ. U.S. Atomic Energy
Comission
2ª ed. - 1963
- 7) J. Lamarsh - "Nuclear Reactor Theory"
Addison-Wesley Publishing Co. Inc. Reading - Mass.
1966
- 8) S. Amiel - "Analytical applications of the delayed neutron emission
in fissionable elements"
Israel Atomic Energy Comision, Tel Aviv. N.S.A. 15:30575
maio 1961

- 9) ORNL - 3342 - Oak Ridge National Laboratory - Tenn.
N.S.A. 16:31 546 - out. 1962
- 10) A. J. Cox et al. "The design of neutrons Howitzers"
Int. Appl. Radiation Isotopes
vol. 19, pag. 591 - 1968
- 11) J. Labeyrie - "Génie Atomic"
Institut. National des Sciences et Techniques Nucléaires
Saclay - 1961
- 12) H. Gale - "Radioactive Dating and Methods of Low-level Counting"
(simposio) - I.A.E.A. - Viena
pag. 438 - 1967
- 13) D. R. Farmelo et al. Nucleonics Mc Graw-Hill Publishing Co. Inc.
N.Y.
fev. 1958
- 14) J. M. Blatt e-"Theoretical Nuclear Physics"
V.F. Weisskopf. John Wiley & Sons, N.Y.
pag. 353
- 15) T. Jahnsen et. al - "Delayed neutron emission theory and precursor
systematics"
Delayed Fission Neutrons - I.A.E.A. - Viena
pag. 35 - 1968
- 16) P. F. Zweifel -"Neutron self-shielding"
Nucleonics- Mc Graw-Hill Publishing Co. Inc. N.Y.
vol. 18, nº 11 - nov. 1960
- 17) V. W. Morris e-"Slowing-down Kernel for delayed neutron group"
P. F. Zweifel -Reactor Technology report
nº7, KAPL-2000-4 (1958)pag. 45, Apud (6)

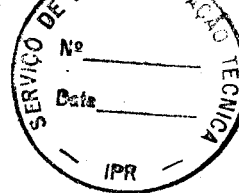
- 18) C. A. F. e A. Silva - "Medidas do fluxo de neutrons no reator TRIGA"
Mark I - IPR - Nota SAI - nº 10 - IPR - B. Hz.
- 19) J. M. Lima e V. M. - "Utilização do reator TRIGA"
Andrade (IPR - RI) - oito anos de operação - Nota DR-18
IPR - B. Hte.
- 20) C. C. Murta - (Comunicação pessoal; trabalho não publicado)
- 21) J. M. Lima - (Comunicação pessoal; trabalho não publicado)

TABELAS

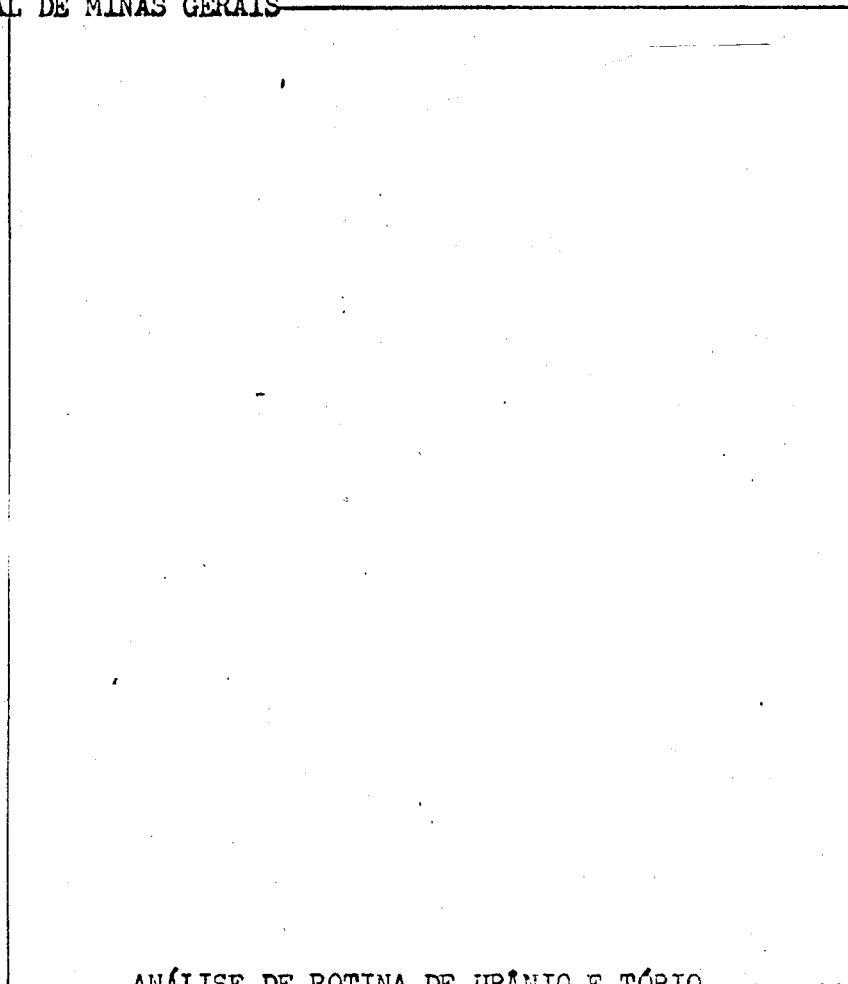
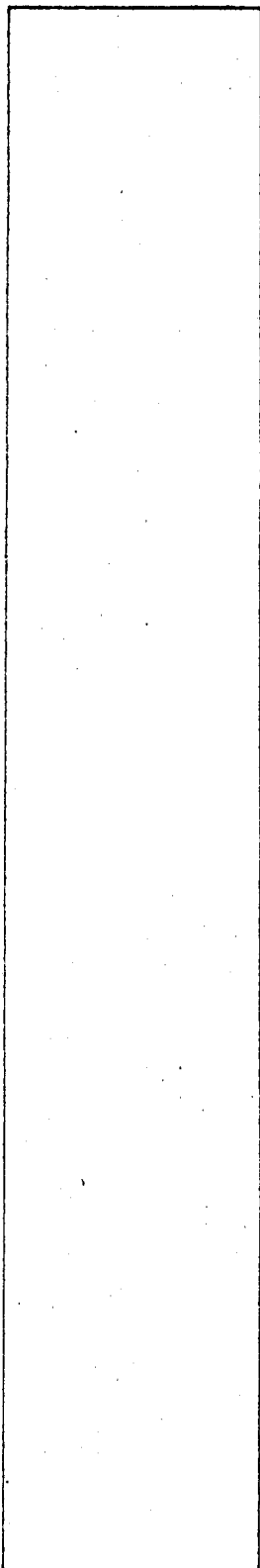
- I - Comparação de detetores de neutrons térmicos
- II - Precursores de neutrons retardados de fissão
- III - Neutrons retardados do U^{235}
- IV - Neutrons retardados do Th^{232} e U^{238}
- V - Energia média por grupo de neutrons
- VI - Radiosótopos emissores de gama ($E_\gamma > 1,67$ MeV)
- VII - Nuclídeos leves precursores de neutrons retardados
- VIII - Etapas da calibração gravimétrica

FIGURAS

- 1 - Distribuição dos produtos de fissão
- 2 - Origem dos neutrons retardados do precursor Br^{87}
- 3 - Características do detetor de neutrons a BF_3
- 4 - Croqui do sistema de detecção
- 5 - Câmara moderadora
- 6 - Variação da termalização dos neutrons com a espessura da parede de parafina
- 7 - Diagrama do circuito do pré-amplificador
- 8 - Curva de calibração - Linearidade

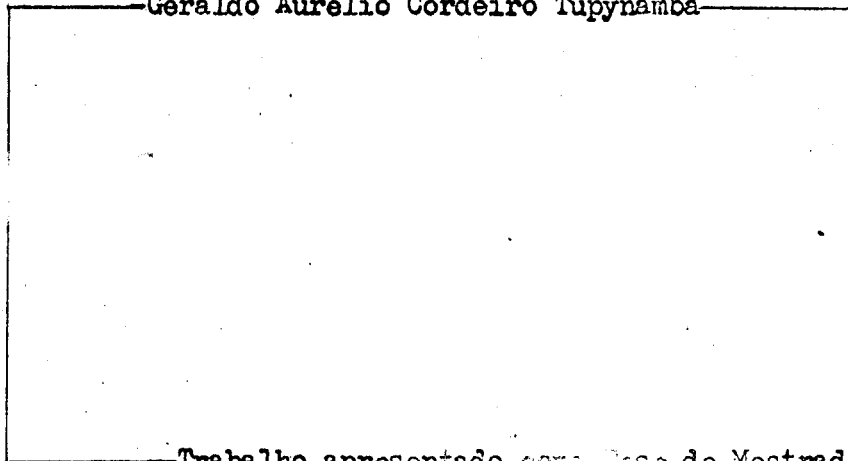


UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS



ANÁLISE DE ROTINA DE URÂNIO E TÓRIO
PELO MÉTODO DOS NEUTRONS RETARDADOS

Geraldo Aurelio Cordeiro Tupynambá



Trabalho apresentado como Tese de Mestrado
em Ciências Físicas Nucleares à
Universidade Federal de Minas Gerais.*