

**PAULO ROGÉRIO PINTO COELHO**

**ANÁLISE NÃO DESTRUTIVA DA MASSA DE URÂNIO NATURAL  
ATRAVÉS DA MEDIDA DE NÉUTRONS ATRASADOS  
COM O USO DA TÉCNICA DE FONTE PULSADA DE NÉUTRONS RÁPIDOS**

Dissertação apresentada à Escola  
Politécnica da Universidade de  
São Paulo, para obtenção do  
Título de Mestre em Ciências  
e Tecnologia Nucleares

**SÃO PAULO**

**1979**

PAULO ROGÉRIO PINTO COELHO

ANÁLISE NÃO DESTRUTIVA DA MASSA DE URÂNIO NATURAL  
ATRAVÉS DA MEDIDA DE NÊUTRONS ATRASADOS  
COM O USO DA TÉCNICA DE FONTE PULSADA DE NÊUTRONS RÁPIDOS

Orientador: Prof. Dr. Lao Holland



Dissertação apresentada à Es  
cola Politécnica da Universi  
dade de São Paulo, para obten  
ção do Título de Mestre em Ci  
ências e Tecnologia Nucleares.


São Paulo

1979

A meus pais e a Lena

### AGRADECIMENTOS

Agradeço a todos os que, de diferentes maneiras, contribuíram para a execução deste trabalho. Em particular, ao Prof.Dr. Lao Holland pela orientação deste trabalho e ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares pelo apoio financeiro e material.



este trabalho são apresentados resultados da análise não destrutiva da massa de urânio natural através da técnica de fonte pulsada. O método empregado é de medida relativa, sendo que a massa de urânio é determinada através da medida da produção de nêutrons atrasados, emitidos após fissões produzidas pela irradiação da amostra com pulsos de nêutrons de 14 MeV. As medidas são normalizadas em função da contagem integral da intensidade de nêutrons de 14 MeV obtida através de um cintilador.

Os nêutrons atrasados são medidos utilizando-se um detector tipo fatia especialmente construído, operado em anti-sincronismo com os pulsos de nêutrons de 14 MeV.

Os nêutrons de 14 MeV são produzidos através da reação  $T(d,n)^4He$  usando um acelerador Van de Graaff de 400 kV operado de modo pulsado, em 200 kV.

Três tipos de amostras foram analisadas, a saber: discos de urânio metálico, pastilhas de óxido de urânio sinterizado e placas de liga urânio-alumínio, envoltas por duas ou outras placas de alumínio. Essas placas simulam aquelas de elementos combustíveis de reator tipo MTR (Material Testing Reactor).

Os resultados das medidas são reprodutíveis dentro de um erro total no intervalo de 1,6 a 3,9%. O erro específico depende da forma, tamanho e massa da amostra.

## ABSTRACT

This work presents results of non destructive mass analysis of natural uranium by the pulsed source technique. Fissioning is produced by irradiating the test sample with pulses of 14 MeV neutrons and the uranium mass is calculated on a relative scale from the measured emission of delayed neutrons. Individual measurements were normalised against the integral counts of a scintillation detector measuring the 14 MeV neutron intensity.

Delayed neutrons were measured using a specially constructed slab detector operated in antisynchronism with the fast pulsed source.

The 14 MeV neutrons were produced via the  $T(d,n)^4He$  reaction using a 400 kV Van de Graaff accelerated operated at 200 kV in the pulsed source mode.

Three types of sample were analysed, namely: discs of metallic uranium, pellets of sintered uranium oxide and plates of uranium aluminium alloy sandwiched between aluminium. These plates simulated those of Material Testing Reactor fuel elements.

Results of measurements were reproducible to within an overall error in the range 1.6 to 3.9%; the specific error depending on the shape, size and mass of the sample.

## ÍNDICE

	Pág.
I. INTRODUÇÃO	1
1.1 - Objetivo	1
1.2 - Justificativa para a execução desse trabalho	1
1.3 - Escolha do Método de Medida	4
1.3.1 - Considerações Gerais	4
1.3.2 - Método de Interrogação Passiva	8
a. Medida de Raios Gama	8
b. Medida de nêutrons	11
1.3.3 - Método de Interrogação Ativa	12
a. Medida de gamas após fissões induzidas por nêutrons	12
b. Medida de gamas após fotofissão	13
c. Métodos baseados na detecção de nêutrons produzidos por fissão	14
c.1-Detecção de nêutrons prontos	14
c.2-Detecção de nêutrons atrasados	16
1.3.4 - Conclusão	19
II. DESCRIÇÃO DO MÉTODO	21
2.1 - Base teórica	21
2.2 - Contagem no detector fatia	27
2.3 - Contagem no monitor	37
2.4 - Normalização	38
2.5 - Equação de Calibração	39
III. ARRANJO EXPERIMENTAL	42
3.1 - Descrição do sistema	42
3.2 - Fonte de nêutrons	42
3.2.1 - Fonte Am-Be	46
3.2.2 - Acelerador Van de Graaff	46
3.3 - Detector fatia	50
3.4 - Sistema de contagem do detector fatia e do monitor	52
3.5 - Controle dos tempos de contagem dos nêutrons interrogadores e dos nêutrons atrasados	54

3.6 - Amostras utilizadas	55
IV. ANÁLISE DOS ERROS	58
4.1 - Erro associado à estatísticas de contagem	58
4.2 - Erro associado à determinação das massas	61
4.3 - Erro relacionado com o posicionamento da amostra	62
4.4 - Erro devido a não simultaneidade do início do tempo de análise com o início de um pulso de nêutrons interrogadores	63
4.5 - Erro relacionado com flutuações nos tempos de irradiação e contagem	63
4.6 - Erro total na determinação da massa	64
V. MEDIDAS E ANÁLISE DOS DADOS	67
5.1 - Calibração dos equipamentos utilizados	67
5.1.1 - Calibração do sistema de contagem de nêutrons atrasados	67
5.1.2 - Escolha da alta tensão aplicada ao monitor	69
5.1.3 - Calibração do sistema de contagem no monitor	71
5.1.4 - Testes de verificação do funcionamento dos dois sistemas de contagem	73
5.1.5 - Estudo do tempo morto dos dois sistemas de contagem	74
5.2 - Medida das características do sistema pulsa do do acelerador Van de Graaff conjuntamente com os sistemas de contagem	74
5.3 - Escolha da posição da amostra a ser analisada	79
5.4 - Medida da reprodutibilidade do sistema de análise	84
5.4.1 - Teste de estabilidade do sistema de análise	87
5.4.2 - Teste de eficiência do monitor na normalização da intensidade de nêutrons	87
5.4.3 - Medida da reprodutibilidade no posicionamento da amostra	89



5.5 - Investigação do efeito da presença de alumí nio na medida de nêutrons atrasados	89
5.6 - Estudo da influência da distribuição espa cial do urânio	93
5.6.1 - Estudo da influência da distribuição la teral de urânio	94
5.6.2 - Estudo da influência da distribuição frontal de urânio	97
5.6.3 - Estudo da influência da distribuição vo lumétrica de urânio	97
5.7 - Estudo com placas de elemento combustível	99
VI. CONCLUSÕES E SUGESTÕES	103
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	106

## LISTA DE FIGURAS

	Pág.
FIGURA 1.1 - Esquema dos métodos não-destrutivos de <u>a</u> nálise	7
FIGURA 2.1 - Distribuição dos produtos de fissão para fissão produzida por neutrons t $\acute{e}$ rnicos e de 14 MeV	23
FIGURA 2.2 - Esquema de decaimento do $^{87}\text{Br}$	23
FIGURA 2.3 - Sequencia temporal do funcionamento da fonte pulsada de n $\acute{e}$ utrons e do detector fatia	27
FIGURA 2.4 - Tempos envolvidos no ciclo de irradia $\tilde{c}$ o e contagem	32
FIGURA 3.1 - Disposi $\tilde{c}$ o dos equipamentos na sala do <u>a</u> celerador	43
FIGURA 3.2 - Disposi $\tilde{c}$ o dos equipamentos na sala do <u>a</u> celerador	44
FIGURA 3.3 - Esquema de algumas partes do acelerador Van de Graaff	44
FIGURA 3.4 - Esquema do equipamento eletr $\acute{o}$ nico utili $\tilde{z}$ ado	45
FIGURA 3.5 - Esquema de funcionamento do sistema de pulsa $\tilde{c}$ o do acelerador Van de Graaff	48
FIGURA 3.6 - Vista em corte do detector fatia	51
FIGURA 5.1 - Espectro de altura de pulso do detector fatia	68
FIGURA 5.2 - Espectro de altura de pulso do monitor	72
FIGURA 5.3 - Medida de tempo morto para o NE-102	75
FIGURA 5.4 - Medida do tempo morto do detector fatia	76
FIGURA 5.5 - Características do sistema pulsado do <u>a</u> celerador Van de Graaff conjuntamente com os sistemas de contagem	78
FIGURA 5.6 - Curva de resposta do sistema de an $\acute{a}$ lise em fun $\tilde{c}$ o da dist $\tilde{a}$ ncia Y, para X = 40 cm e X = 60 cm	82

FIGURA 5.7 - Curva de resposta do sistema de análise em função da distância Y, usando como amostra 4 discos de urânio metálico	83
FIGURA 5.8 - Erros devido ao posicionamento da amostra e à estatística de contagem em função da distância Y entre o alvo do acelerador e a amostra	85
FIGURA 5.9 - Curva de resposta do sistema de análise em função da distância Y, usando como amostra 17 placas de "elemento combustível"	86
FIGURA 5.10 - Curva de normalização para variações de intensidade de nêutrons interrogadores	88
FIGURA 5.11 - Logarítmo da contagem ( $C_a$ ) em função da espessura de Al entre o alvo e a amostra (4 discos de U)	91
FIGURA 5.12 - Logarítmo da contagem ( $C_a$ ) em função da espessura de Al entre a amostra (4 discos de U) e o detector fatia	91
FIGURA 5.13 - Logarítmo da contagem ( $C_a$ ) em função da espessura de Al na forma de discos pequenos de Al ( $\phi=8,3$ cm) colocados entre o alvo e a amostra (1 disco de U)	92
FIGURA 5.14 - Logarítmo da contagem ( $C_a$ ) em função da espessura de Al na forma de discos grandes de Al ( $\phi=26,5$ cm) colocados entre o alvo do acelerador e a amostra (1 disco de U)	92
FIGURA 5.15 - Curva de resposta do sistema de análise em função do deslocamento lateral (Z) da amostra	95
FIGURA 5.16 - Influência da distribuição frontal de urânio no resultado da análise	98
FIGURA 5.17 - Influência da distribuição volumétrica de urânio no resultado da análise	98
FIGURA 5.18 - Resposta do sistema de análise ao aumento de placas de "elementos combustíveis"	100

## LISTA DE TABELAS

	Pág.
TABELA 1.1 - Comparação entre métodos não destrutivos de análise	18
TABELA 2.1 - Características dos grupos de nêutrons a trasados para fissão rápida	25
TABELA 4.1 - Fonte de erro na determinação da massa de urânio	65
TABELA 5.1 - Medidas para determinação da influência da distribuição lateral de urânio no resultado da análise	96
TABELA 5.2 - Medidas para determinação da influência do posicionamento das placas de "elemento combustível" nos resultados das análises	102

## I. INTRODUÇÃO

### 1.1 - Objetivo

O objetivo do presente trabalho foi implantar no Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares um sistema de análise não-destrutiva, através da interrogação ativa por nêutrons, para a determinação quantitativa de urânio em matrizes que o contenham associado a materiais não fissionáveis, em várias composições e formas físicas. Em particular, realizar análises utilizando discos de urânio metálico, pastilhas de óxido de urânio e placas de liga urânio-alumínio.

### 1.2 - Justificativa para a execução desse trabalho

Com a implantação de um programa nuclear de potência no Brasil, torna-se importante o desenvolvimento de métodos não-destrutivos de análise de combustíveis nucleares, baseado em três aspectos: salvaguarda, controle de qualidade no processo de fabricação dos combustíveis e econômico, os quais são fundamentados a seguir.

a. A posse de urânio altamente enriquecido (maior do que 90%) ou plutônio são essenciais para a fabricação de artefatos nucleares para fins militares, daí haver interesse em que seja exercido rigoroso controle deles como o meio mais eficiente de limitar a proliferação mundial de armas nucleares. Isto só se torna viável se fôr possível contabilizá-los com alto grau de precisão.

Entretanto, com a multiplicação do número de instalações nucleares, quer sejam centrais nucleares para geração de e

nergia elétrica, usinas de processamento de urânio para fabricação de combustíveis nucleares ou instituições de pesquisa na área nuclear, tornou-se difícil a tarefa de organizações internacionais de salvaguarda no controle da localização, da posse e da quantidade de urânio que está sendo utilizada nessas instalações.

Em vista do exposto acima, tornou-se de suma importância em termos políticos e de segurança mundial, o desenvolvimento de sistemas de administração e salvaguardas de materiais nucleares, o que levou ao aperfeiçoamento de muitos métodos físicos que permitem a análise de materiais fissionáveis em mistura com materiais não fissionáveis em várias configurações e à publicação na literatura de diversas técnicas de análise não-destrutiva.

b. As características de operação de um reator nuclear, tais como: nível de potência, transferência de calor, reatividade, razão de queima, estabilidade, etc..., dependem diretamente das características e comportamento dos elementos de combustível. Elementos de combustível que não estejam dentro das especificações podem alterar significativamente essas características do reator, podendo ocasionar grandes prejuízos econômicos. Por esta razão, é essencial que se tenha um grande controle de qualidade dos mesmos, o qual é obtido analisando-se individualmente e de modo não-destrutivo o elemento combustível, nas várias etapas de seu processo de fabricação.

c. Por outro lado, com a assim chamada crise do petróleo e o aumento acelerado de demanda de energia nos mais diversos países, houve uma valorização de todas as fontes de ener

nergia elétrica, usinas de processamento de urânio para fabricação de combustíveis nucleares ou instituições de pesquisa na área nuclear, tornou-se difícil a tarefa de organizações internacionais de salvaguarda no controle da localização, da posse e da quantidade de urânio que está sendo utilizada nessas instalações.

Em vista do exposto acima, tornou-se de suma importância em termos políticos e de segurança mundial, o desenvolvimento de sistemas de administração e salvaguardas de materiais nucleares, o que levou ao aperfeiçoamento de muitos métodos físicos que permitem a análise de materiais fissionáveis em mistura com materiais não fissionáveis em várias configurações e à publicação na literatura de diversas técnicas de análise não-destrutiva.

b. As características de operação de um reator nuclear, tais como: nível de potência, transferência de calor, reatividade, razão de queima, estabilidade, etc..., dependem diretamente das características e comportamento dos elementos de combustível. Elementos de combustível que não estejam dentro das especificações podem alterar significativamente essas características do reator, podendo ocasionar grandes prejuízos econômicos. Por esta razão, é essencial que se tenha um grande controle de qualidade dos mesmos, o qual é obtido analisando-se individualmente e de modo não-destrutivo o elemento combustível, nas várias etapas de seu processo de fabricação.

c. Por outro lado, com a assim chamada crise do petróleo e o aumento acelerado de demanda de energia nos mais diversos países, houve uma valorização de todas as fontes de ener

gia economicamente aproveitáveis, o que tem levado a aumentos substanciais no preço de urânio por quilograma de  $U_3O_8$ . O preço subiu de US\$ 20/kg em 1973 (em US\$ de 1976) até US\$ 100/kg /15/.

Verifica-se, portanto, a grande importância sob o aspecto econômico que, nas etapas de processamento de urânio para fabricar combustível nuclear, sejam feitas medidas da quantidade de urânio presente para que não haja perda ou extravio de material fissionável e, que ao se comprar urânio na forma de elemento combustível, haja condições de fazer uma medida independente da quantidade fornecida de urânio.

Conforme descrito no item 1.3, muitos métodos não-destrutivos de análise são aplicados rotineiramente no mundo todo, sendo estes métodos alvo de constantes aperfeiçoamentos e, em decorrência, novos métodos e aperfeiçoamentos nos já existentes vêm a ser desenvolvidos. Isso se deve ao grande número de condições e problemas provenientes do processamento de material nuclear e da fabricação e transporte de combustíveis, e devido à necessidade de refinamentos desses métodos para obter-se melhor eficiência.

Análises não-destrutivas são utilizadas no inventário de material nuclear, no controle de qualidade de processos industriais de material nuclear e em controle de operações com combustível ao longo de todo o seu ciclo, incluindo estocagem de resíduos radioativos.

Essas ponderações assumem importância crescente com a entrada do Brasil no campo da produção e administração de combustível nuclear em larga escala, principalmente agora com a



implantação do acordo nuclear Brasil-Alemanha. Será necessária a utilização de métodos não-destrutivos de análise, tanto devido a problemas de segurança nacional, quanto a acordos internacionais.

Considerando-se todos esses aspectos, iniciou-se, na Coordenadoria de Engenharia Nuclear do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, o desenvolvimento de um programa de análise não-destrutiva de material nuclear. Um primeiro passo desse programa foi a implantação da técnica de espectrometria gama para a determinação da queima de elementos combustíveis do reator IEA-R1 /35/; técnica esta muito utilizada cujo campo de aplicação se restringe a elementos queimados (irradiados em um reator vários dias seguidos), sendo que a análise torna-se de difícil execução na presença de alta radiação de fundo. Com o presente trabalho, será ampliada a potencialidade deste programa para o caso de elementos combustíveis novos, elementos combustíveis queimados com grande atividade gama e recipientes contendo resíduos radioativos.

### 1.3 - Escolha do Método de Medida

#### 1.3.1- Considerações Gerais

Na indústria nuclear são utilizados dois tipos de medidas para análise de material nuclear:

a. Medidas destrutivas. As análises são feitas com amostras pequenas e representativas do material analisado, o que restringe a aplicação dessas medidas a pontos do ciclo de combustível em que o urânio esteja na forma de solução ou

ou pó. A precisão nessas medidas está na ordem de 0,05% a 0,5%.

- b. Medidas não-destrutivas. São aquelas nas quais não é destruída a utilidade potencial do material analisado. A análise é de rápida execução. Possibilita a análise de amostras grandes e heterogêneas, bem como de amostras pequenas, sendo aplicáveis a todos os isótopos fissionáveis importantes nas várias composições e formas físicas encontradas no ciclo de combustível. A precisão nessas medidas está na faixa de 0,5% a 5%.

Baseando-se nos aspectos de salvaguarda e controle da qualidade de material nuclear, optou-se por métodos não-destrutivos de análise, uma vez que, na indústria nuclear, são frequentes as situações em que os métodos destrutivos não são válidos. A validade das medidas (método destrutivo) pode ser prejudicada tanto pela dificuldade de obter amostras representativas, como no caso de grandes quantidades (barris) de resíduos radioativos, quanto, para determinar a quantidade de material físsil em cada um dos elementos combustíveis fabricados, a necessidade de não destruir a amostra.

As análises não-destrutivas são medidas relativas e os valores absolutos da massa de materiais fissionáveis contidos numa amostra são obtidos por comparação com medidas similares feitas com uma amostra padrão de massa e composição conhecidas.

Os métodos não-destrutivos mais utilizados baseiam-se na detecção de propriedades inerentes aos materiais físséis, constituídas pelas emissões de nêutrons e gamas característicos. Esses métodos são divididos em dois grupos principais de

acordo com o fato da emissão das radiações serem naturais (método de interrogação passiva) ou induzidos pelo bombardeamento da amostra com alguma forma de partícula nuclear ou energia (método de interrogação ativa).

De modo geral, os métodos de interrogação passiva tem a grande vantagem de envolver equipamentos simples mas, para a análise de urânio, tem seu domínio de aplicação limitado pela pequena penetrabilidade em meios densos dos gamas emitidos pelo  $^{235}\text{U}$ . Conseqüentemente, esse método é mais utilizado para o caso de amostras pouco densas ou pequenas.

Os métodos de interrogação ativa requerem equipamentos mais complexos, mas possibilitam a análise de amostras grandes uma vez que as radiações que induzem as fissões e as emitidas após as fissões são altamente penetrantes, ou seja, raios gamas ou nêutrons de alta energia. Para ocorrer fissão de um isótopo fértil, a radiação incidente tem que possuir energia acima de um limiar, enquanto que para os isótopos físséis não existe esse limiar; desta forma, tirando-se proveito da energia das radiações incidentes, pode-se discriminar de imediato os isótopos físséis dos férteis.

A melhor opção na escolha entre utilizar um método de interrogação passiva ou ativa (ou uma combinação deles) para analisar material fissionável depende do isótopo a ser examinado, da concentração deste na amostra e das características como densidade, volume e composição química da amostra. Um esquema representativo desses vários métodos é dado na figura 1.1 e discutido com maiores detalhes nos itens 1.3.2 e 1.3.3, onde são apresentados exemplos existentes na literatura, que mostram as possibilidades de aplicação de cada método e são citadas referências de outras aplicações para cada um dos métodos.

Método de Interrogação Passiva

- medida da produção de gamas de decaimento radioativo
- medida da produção de nêutrons de fissão espontânea

Método de Interrogação Ativa

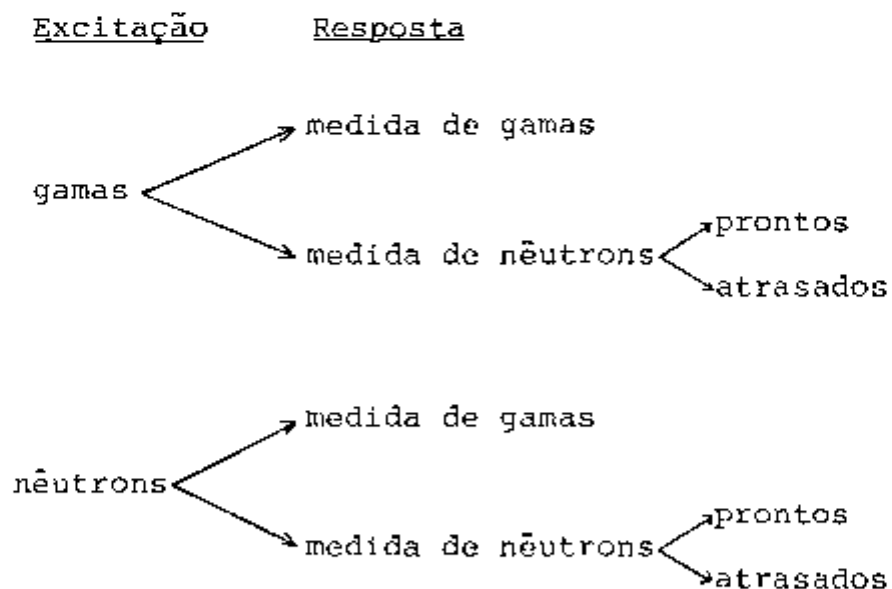


FIGURA 1.1 - Esquema dos métodos não-destrutivos de análise

### 1.3.2- Método de Interrogação Passiva

#### a. Medida de Raios Gama

Quando o isótopo a ser analisado emite, através de decaimento radioativo, um ou mais gamas característicos, a medida destes permite a determinação da quantidade de material fissionável.

Esse método tem como limitação a pequena penetrabilidade dos gamas característicos em meio constituído de elementos pesados (alto Z), como é o caso de materiais nucleares. Devido à atenuação, a contribuição para o fluxo de gamas fora da amostra pode ser maior para gamas emitidos perto da superfície do que no centro da amostra. Então, a medida é fortemente dependente da localização do isótopo emissor do gama característico dentro da amostra e, diferenças entre a distribuição de material na amostra padrão e na amostra desconhecida aparecerá como erro na medida relativa da quantidade de material fissionável. A aplicabilidade depende da homogeneidade do combustível e do tamanho da amostra.

Em geral, nesse método utilizam-se detetores de Ge(Li) devido a sua alta resolução em energia.

Os raios gama emitidos em fissão espontânea não são utilizados nesse tipo de análise devido a sua baixa taxa de emissão.

Baumung, K. e outros /8/ utilizaram esse método para pinos de óxido de plutônio com 1 cm de diâmetro e densidade de  $9,3 \text{ g/cm}^3$ . Verificou que 60% dos raios gamas de 413,7 keV do  $^{239}\text{Pu}$  (emissão igual  $1,4 \times 10^5$  gamas/g/s) são absorvidos dentro do pino e que, heterogeneidade radial na distribuição do plutônio, pode provocar erro de até 20% na medida do conteúdo

do de  $^{239}\text{Pu}$ . Para reduzir o erro é necessário checar a homogeneidade do material separadamente.

Walton, R.B., Reilly, T.D. e outros /37,33/ implantaram na linha de produção da usina de difusão gasosa da Good year Atomic Corp., em Ohio (USA), um monitor de enriquecimento de  $^{235}\text{U}$  de operação automática que, em 1975, já estava no segundo ano de operação rotineira. É medida a porcentagem de  $^{235}\text{U}$  no  $\text{UF}_6$ , antes dele ser engarrafado em cilindros, para verificar se o enriquecimento requerido foi alcançado e garantir a segurança contra criticalidade no processo de enchimento desses cilindros. O enriquecimento de  $^{235}\text{U}$  é medido com uma precisão de 0,25%, através da contagem do gama de 185,7 keV emitido por esse isótopo. Eles desenvolveram também um equipamento portátil para fazer essas análises que, aplicado a cilindros de  $\text{UF}_6$  com 2,5 toneladas e enriquecimentos de 1,3 a 3,1% fornece precisão de 5%. Para cilindros de 5 polegadas de diâmetro usados para estocagem de urânio altamente enriquecido, devido a maior atividade de gamas de 185,7 keV do  $^{235}\text{U}$ , a precisão sobe a 2,1% quando considerados cilindros de  $\text{UF}_6$  com enriquecimento entre 7 e 97,7%.

Cesar, M.F. e Mafra, O.Y. /14/ implantaram no IPEN a técnica de determinação do enriquecimento de  $^{235}\text{U}$ , através da contagem de raio gama de 185,7 keV emitido pelo  $^{235}\text{U}$ . Foram feitas análises de pastilhas de  $\text{UO}_2$  e  $\text{U}_3\text{O}_8$ , obtendo-se uma precisão de 1% nos resultados.

Nas Instalações da General Atomic Company, para a produção do combustível do reator de potência HTGR (Fort St. Vrain), foi testado /3/ um sistema de prospecção axial por segmentos à base de raios gama para analisar vasilhas contendo fragmentos desse combustível e materiais inúteis. A densidade da amostra tem que ser baixa para permitir a transmissão

do gama do  $^{235}\text{U}$ . O urânio do combustível do HTGR é altamente enriquecido (93%), o que torna essa medida muito importante em termos de salvaguarda. O sistema foi testado para vasilhas com volume de 1 a 20 litros e, no máximo, 200 g de urânio, obtendo uma precisão de 1,5 a 2%, o que o torna aplicável dentro das condições normais de operação da usina. Esse mesmo sistema tem sido utilizado nas instalações de processamento de plutônio de Los Álamos /24/, em uso de rotina, com uma precisão de 0,5 a 2,5% dependendo da característica da amostra e do tempo de contagem.

Um grama de  $^{235}\text{U}$  emite aproximadamente  $4,3 \times 10^4$  raios gama de 185,7 keV por segundo, mas, devido a sua baixa penetrabilidade (alcance médio em  $\text{UO}_2 = 0,5$  mm), não é possível analisar como um todo elementos combustíveis novos (não irradiados) devido à auto-absorção. É possível apenas, em certos casos, a análise somente de uma placa ou vareta de combustível /13/.

O método de interrogação passiva com medida de raios gama (espectrometria gama) é muito utilizado para análise de elementos combustíveis queimados (já irradiados por longo tempo em um reator) /35/. Esse método baseia-se na detecção, ao longo de um elemento combustível, de um ou mais gamas características emitidos por um ou mais produtos de fissão. A atividade gama dessas dadas energias podem ser relacionadas com a massa de urânio fissionada, o que possibilita a medida da distribuição da queima ao longo do elemento combustível. Em muitas publicações foi analisado o gama de 661,6 keV do  $^{137}\text{Cs}$  com uma precisão de medida da ordem de 0,2% /16/. Esse método foi implantado no IPEN, conforme já citado em 1.2.

Outras referências /3, 5, 10, 25, 26, 27, 36/.

## b. Medida de nêutrons

A quantidade de material fissionável pode ser determinada pela contagem de nêutrons de fissão espontânea, tendo como principal limitação a baixa produção de fissões; o único isótopo fissionável que não sofre essa limitação é o  $^{240}\text{Pu}$ . Os nêutrons de reações  $(\alpha, n)$  podem ser discriminados através de uma técnica de coincidência.

Para o plutônio, é interessante a utilização desse método devido a sua simplicidade e à alta penetrabilidade dos nêutrons de fissão. Esse método foi aplicado, em combinação com o método passivo de contagem do gama de 384 keV do  $^{239}\text{Pu}$ , para o controle do estoque de combustível de um reator rápido (ZEBRA) de potência zero /12/. O combustível do ZEBRA é composto de  $10^4$  pequenas placas, compreendendo plutônio metálico e uma mistura de óxido ( $\text{U/PuO}_2$ ) sinterizado com 20 e 70 g de plutônio cada. O método demonstrou que em mais de 95% dos casos foi possível detectar a troca do elemento combustível verdadeiro por um falso, mostrando-se viável em termos de salvaguarda.

Nas instalações da Westinghouse para fabricação de elementos combustíveis com plutônio /18,24/, de 1972 a 1975, foram analisadas 35000 varetas de combustível contendo aproximadamente 5 milhões de pastilhas de óxido misto de plutônio e urânio ( $\text{U/PuO}_2$ ). Aplicando-se essa técnica foi analisado o conteúdo de  $^{240}\text{Pu}$  com uma precisão de aproximadamente 1% na medida de cada vareta.

Nas instalações da Goodyear para enriquecimento de  $\text{UF}_6$  faz-se em linha o controle do enriquecimento de  $^{234}\text{U}$  /33, 37/ através da reação  $^{19}\text{F}(\alpha, n)^{22}\text{Na}$  com uma precisão de 1,3% ( $^{234}\text{U}$  emite partículas alfa que reagem com o fluór para



produzir nêutrons rápidos). Para urânio pouco enriquecido (de 2 a 5%  $^{235}\text{U}$ ), o enriquecimento de  $^{234}\text{U}$  é aproximadamente proporcional ao de  $^{235}\text{U}$ . Nesse caso, como o  $^{234}\text{U}$  é controlado diretamente, obtêm-se um controle indireto do  $^{235}\text{U}$ .

Nas instalações da Dow Chemical Company/30/ para fabricação de elementos combustíveis de plutônio, foi testado esse método para barris de volume=208 litros de resíduos radioativos, obtendo um desvio-padrão de 16% na determinação do conteúdo de plutônio em amostras padrão de massa de plutônio conhecida.

Outras referências /12, 36/.

### 1.3.3- Método de Interrogação Ativa

#### a. Medida de gamas após fissões induzidas por nêutrons

A contagem de gamas dos produtos de fissão, após pequenos tempos (ms) de irradiação, é uma técnica padrão de determinação da razão de fissão e pode ser utilizada para análise de material fissionável.

Essa técnica baseia-se no fato de que para isótopos diferentes de material fissionável, obtêm-se diferentes distribuições de massa dos produtos de fissão, acarretando diferenças nos seus espectros de raios gama.

A penetrabilidade desses gamas é muito maior do que a dos gamas de análise passiva, conseguindo-se, dessa forma, menor erro devido à heterogeneidade do combustível.

Medindo-se raios gama de 1 MeV emitidos por produtos de fissão ao invés dos gamas de 413,7 keV do  $^{239}\text{Pu}$ , o erro de 20% devido à heterogeneidade radial, citado em 1.3.2, pas

sa a 6%.

Radionuclídeos são muito utilizados como fonte de nêutrons interrogadores, tal como  $^{252}\text{Cf}$ , envolto por meio moderador para produzir um fluxo de nêutrons térmicos, empregado para determinar a uniformidade na distribuição de  $^{235}\text{U}$  nas barras de combustível do reator HTGR /3/.

Nesse tipo de análise de urânio, onde é utilizado o método de interrogação ativa, quando a heterogeneidade radial é relevante, deve-se evitar a depressão do fluxo de nêutrons na amostra; pois provoca irregularidade na distribuição dos produtos de fissão e conseqüente erro devido a atenuação dos raios gama emitidos por esses produtos. Isso significa que os nêutrons interrogadores devem ter energia mais alta para serem mais penetrantes, ou seja, nêutrons térmicos e de ressonância não devem ser utilizados. Entretanto, como na região de keV as seções de choque de fissão são menores, o fluxo de nêutrons deve ser correspondentemente maior, provocando, então, desvantagem no uso da espectrometria gama.

Outra referência /10/.

#### b. Medida de gamas após fotofissão

Esse método difere do anterior, uma vez que os gamas são produzidos em reação de fotofissão. Elétrons produzidos em um acelerador são convertidos em fótons por meio de "bremsstrahlung", os quais incidem na amostra provocando fotofissão.

Gozani, T. e outros /20/ testaram esse método, analisando alguns pinos de massa conhecida de combustível do reator HTGR, obtendo erro de 2,4% nos resultados. O equipamento

requerido e o método de análise são sofisticados, o que torna o método útil apenas em situações em que a medida de nêutrons de fissão (métodos descritos a seguir) é difícil.

c. Métodos baseados na detecção de nêutrons produzidos por fissão

A ocorrência de nêutrons produzidos por fissão é uma característica dos materiais fissionáveis, sendo natural a escolha do uso deles para a análise quantitativa desses materiais. Devido a sua alta penetrabilidade, os nêutrons de fissão podem ser utilizados para análises. Entretanto, isto requer discriminação entre:

1. Nêutrons injetados e nêutrons emitidos na fissão
2. Fissão em material fértil e físsil
3. Fissão em  $^{235}\text{U}$  e  $^{239}\text{Pu}$ .

Ao serem utilizados esses métodos, deve-se evitar, também, a depressão do fluxo de nêutrons na amostra quando a heterogeneidade radial é relevante.

c.1-Detecção de nêutrons prontos

A intensidade de nêutrons prontos, emitidos durante o processo de fissão, é pequena quando é comparada com a dos nêutrons interrogadores. Isto dificulta a discriminação entre os dois grupos de nêutrons, podendo implicar em equipamentos complexos de detecção e acumulação de dados.

Devido a esse fato, um grupo da Gulf General Atomic está desenvolvendo a técnica de detecção de nêutrons prontos,

produzidos em reações de fotofissão /11, 20/, citado em 1.3.3.b. Baseado no fato de que a produção de nêutrons prontos varia de isótopo para isótopo e depende da energia dos fótons incidentes, pode-se obter informações sobre os isótopos. Foram feitas análises de latas (de aproximadamente 1 litro) de resíduos contendo massas conhecidas de plutônio /11/, tendo sido obtida a incerteza média de 5%.

Khoury, M.T.F.C. /26/ analisou briquetes de liga U-Al, utilizados na fabricação de placas de combustível, através da detecção de nêutrons de reações fotoinduzidas, obtendo resultados com a precisão de 1% na determinação da massa de urânio presente na amostra. Como fonte de gamas utilizou-se o reator IEA-R1.

Tirando proveito das diferentes dependências com a energia das seções de choque de fissões do  $^{235}\text{U}$  e do  $^{239}\text{Pu}$ , Krinninger, H. e outros /28/ determinaram o conteúdo desses isótopos em elementos combustíveis irradiados ou não, expondo a amostra em questão a pulsos de nêutrons com energia média diferentes (0,3 eV e 0,025 eV) fornecidos por um espectrômetro de chumbo. A concentração (número de átomos/cm<sup>3</sup>) de cada um desses isótopos pode ser determinada com uma precisão menor ou igual a 5%.

Outra técnica muito utilizada, dentro desse método, tem sido o emprego de radionuclídeos que emitam nêutrons de energia menor do que a dos nêutrons prontos, ou, então, moderam-se os nêutrons interrogadores.

Uma fonte de  $^{252}\text{Cf}$  envolta por meio moderador para thermalizar o fluxo de nêutrons emitidos foi utilizada /24/ para analisar o conteúdo de plutônio físsil ( $^{239}\text{Pu} + ^{241}\text{Pu}$ ) de cada uma das 35 000 varetas dos elementos combustíveis (item 1.3.2.b), com uma precisão de 0,6% na medida de cada vareta.

Esse mesmo sistema de medida foi utilizado para analisar varetas de combustível do HTGR /3/, obtendo uma precisão de 2%.

Go<sup>zani</sup>, T. /19/ projetou um sistema de medida para a determinação quantitativa de  $^{235}\text{U}$  e  $^{239}\text{Pu}$  em combustíveis irradiados de reator de potência a água leve, com uma incerteza possivelmente menor do que 5%. A análise deverá ser feita na piscina de estocagem de combustível queimado do reator, usando fonte isotópica intensa de nêutrons =  $10^7$  nêutrons/s, por exemplo, 100 mg de  $^{252}\text{Cf}$  ou 10 c de  $^{124}\text{Sb-Be}$ , e, medindo os nêutrons prontos ou os nêutrons prontos e os atrasados.

Baumung, K. e Bohnel, K. /7/ desenvolveram um sistema de medida do conteúdo de  $^{235}\text{U}$  em combustível não irradiado de reator a água fervente, com uma fonte de  $^{124}\text{Sb-Be}$  de 10 c. Análises de uma hora de duração, utilizando esse sistema forneceram uma precisão de 0,5% na estatística de contagem e de 1% na análise.

Outra referência /6/.

## c.2-Detecção de nêutrons atrasados

Análise dos materiais nucleares baseada na detecção de nêutrons atrasados utilizam três fenômenos básicos:

1. Existência de energia limiar para que os nêutrons interrogadores induzam fissões em isótopos férteis;
2. A produção de nêutrons atrasados varia de isótopo para isótopo, e com energia dos nêutrons interrogadores;
3. A relação entre o número de nêutrons atrasados produzidos nos seus diversos grupos varia de isótopo

para isótopo.

Como a vida média dos precursores de nêutrons atrasados é relativamente grande ( $10^{-1}$ s a  $10^2$ s), consegue-se uma completa separação temporal destes em relação ao pulso de nêutrons ou fótons interrogadores, permitindo o uso de equipamentos de contagem e aquisição de dados relativamente simples.

Amiel, S. /2/ pesquisou um sistema para análise de material fissionável utilizando como fonte de nêutrons um reator de pesquisa tipo piscina. A amostra é irradiada junto ao núcleo do reator e transferida, através de um sistema pneumático de transferência de amostra, para uma estação de contagem de nêutrons atrasados. Verificou que o método possibilita análise com sensibilidade de 0,01  $\mu$ g de urânio natural e aproximadamente 1  $\mu$ g de tório quando o fluxo de nêutrons térmicos é de  $4 \times 10^{12}$  nêutrons/cm<sup>2</sup>/s. O sistema de transferência de amostra empregado possibilita a análise de amostras de aproximadamente 200 g no máximo.

No laboratório Otaniemi, Finlândia, desde 1974 está em operação um sistema de análise de amostras geológicas de urânio, operado manualmente, similar a este descrito, realizando aproximadamente 10 000 análises por ano. Hiismaki, P. e outros /21/ estão desenvolvendo um sistema automático que possibilitará 40 análises por hora, com uma sensibilidade de 0,1  $\mu$ g de urânio natural quando em fluxo térmico de  $5 \times 10^{12}$  nêutrons/cm<sup>2</sup>/s, com massa de amostra de 1 a 10 g.

Augustson, R.H. e outros /4/ analisaram o conteúdo de <sup>235</sup>U em um elemento combustível queimado de um reator tipo piscina, irradiando-o com pulsos de nêutrons de 14 MeV produzidos por um acelerador, via reação <sup>3</sup>H (d,n)<sup>4</sup>He. Os nêutrons a

TABELA 1.1 - Comparação entre métodos não-destrutivos de análise

MÉTODO		PROBLEMA	VANTAGEM
Passivo	$\gamma$	- baixa energia dos raios gama produzidos $\rightarrow$ dependência com tamanho e homogeneidade da amostra	- simplicidade
	n	- produção baixa de fissões - reações ( $\alpha, n$ )	- simplicidade - alta penetrabilidade dos nêutrons de fissão
Ativo	n $\gamma$	- penetrabilidade dos raios gama - quando a heterogeneidade radial é relevante, uso de fluxo de nêutrons alto - baixa eficiência do GE(Li)	- penetrabilidade dos raios gama muito maior do que no método passivo
	$\gamma$ $\gamma$	- penetrabilidade dos raios gama	
	n $\frac{n}{\text{protonos}}$	- discriminação entre nêutrons interrogadores e de fissão	
	$\gamma$ $\frac{n}{\text{protonos}}$	- penetrabilidade dos raios gama em materiais de alto Z	- alta penetrabilidade dos nêutrons
	$\gamma$ n atrasados		
	n n atrasados	- moderação de nêutrons em materiais hidrogenados	- alta penetrabilidade dos nêutrons interrogadores - simplicidade dos equipamentos de contagem e aquisição de dados

trasados são contados através de detectores operando em anti-sincronismo com o acelerador. Devido à alta atividade dos produtos de fissão (12 000 c), a análise foi feita com o elemento combustível envolto por uma camada de chumbo de 15 cm de espessura, tendo sido obtida uma concordância dentro de 1,5% com o conteúdo de  $^{235}\text{U}$  previsto por cálculos de queima ("burnup") do reator.

Outras referências /6, 24, 29, 36/.

#### 1.3.4- Conclusão

Na Tabela 1.1 são apresentadas, de forma resumida, as vantagens e desvantagens de cada um dos métodos citados para facilitar a visualização da comparação entre esses métodos.

O método escolhido para a execução desse trabalho foi o de interrogação ativa pela medida da produção de nêutrons a trasados de fissão induzida por nêutrons, pelos seguintes motivos:

1º) Possibilitará maior amplitude no campo de aplicação do programa de análise não-destrutiva em desenvolvimento no IPEN, devido ao uso de radiações altamente penetrantes (nêutrons) e permitirá analisar tanto amostras pequenas, por exemplo uma pastilha de combustível, como amostras grandes, por exemplo um conjunto de elementos combustíveis.

2º) Como é possível completa separação temporal entre o pulso de nêutrons interrogadores e a contagem dos nêutrons atrasados, foi possível a utilização de equipamentos simples, sendo que os principais estão disponíveis no laboratório de



Física de reatores da Coordenadoria de Engenharia Nuclear (IPEN) e, como fonte de nêutrons, está disponível o acelerador Van de Graaff, após modificações no seu sistema de pulsação.

## II. DESCRIÇÃO DO MÉTODO

A determinação da quantidade de urânio contido nas a mostras é feita pelo método de medida da produção de nêutrons atrasados, emitidos após fissões induzidas nas amostras por pulsos de nêutrons interrogadores de energia aproximadamente igual a 14 MeV.

Os nêutrons interrogadores são gerados por um acelera dor Van de Graaff de 400 kV, operando em modo pulsado, atra vés da reação  ${}^3\text{H}(\text{d},\text{n}){}^4\text{He}$ .

Os nêutrons atrasados são contados, no intervalo de tempo entre os pulsos de nêutrons interrogadores, por um de tector de nêutrons tipo fatia /17/, associado a um sistema de análise de altura do pulso. Um monitor, detector de nêu trons rápidos, operando em sincronismo com os pulsos de nêu trons do acelerador, é utilizado para normalizar as contagens de nêutrons atrasados quanto a variações do fluxo de nêu trons do acelerador, durante cada irradiação.

A normalização é feita dividindo-se a contagem do de tector fatia pela contagem obtida no monitor.

O método é de medida relativa, ou seja, a determina ção da quantidade de urânio na amostra a ser analisada é ob tida comparando-se as contagens normalizadas de nêutrons a trasados para a amostra desconhecida com as contagens norma lizadas obtidas em medidas similares, para uma amostra padrão de massa e composição conhecidas.

### 2.1 - Base teórica

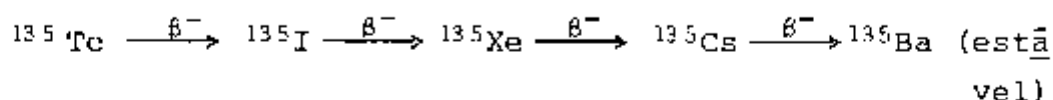
Um átomo ao se fissionar divide-se em dois átomos mais leves (produtos de fissão), sendo que nesse processo, nêutrons

raios gama e beta são emitidos tanto no instante da fissão, quanto pelo decaimento radioativo dos produtos de fissão a p<sub>ós</sub> a mesma.

A distribuição dos produtos de fissão é função do isótopo fissionado e da energia dos nêutrons interrogadores. Essa distribuição é apresentada na figura 2.1, para o caso de <sup>235</sup>U, onde é mostrada /23/ a probabilidade de formação dos isótopos em função de seus números de massa, para fissão induzida por nêutrons de 14 MeV e por nêutrons térmicos.

Ao serem formados, a maioria dos produtos de fissão são "ricos" em nêutrons e estão em estado nuclear excitado, o que os tornam instáveis. Eles podem decair radioativamente pela emissão de raios beta negativo, raios gama e nêutrons.

O produto de fissão pode decair emitindo raios beta negativo ( $\beta^-$ ), para isótopos em estado de menor energia, que por sua vez também decaem, formando uma cadeia de decaimento que termina quando chega em um isótopo estável. O decaimento radioativo do <sup>135</sup>Te (produto de fissão) é um exemplo desse fato.



Outra maneira desses isótopos perderem energia é pela emissão de raios gama. Esses isótopos tem uma meia vida longa, de 1 segundo a anos, em comparação com o tempo para emissão das radiações no processo da fissão, que é de  $10^{-17}$  s para a emissão de nêutrons prontos.

Uma pequena fração, da ordem de 0,7%, dos produtos de fissão ao decairem por emissão de raios  $\beta^-$  deixam seus descendentes num estado excitado o suficiente para emitir nêutrons. Como esses nêutrons são emitidos em um tempo curto

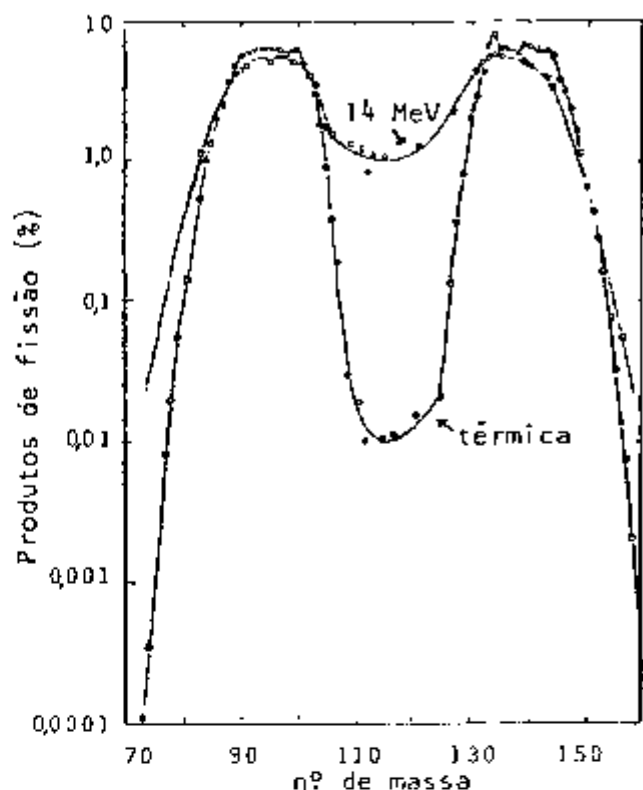


FIGURA 2.1 - Distribuição dos produtos de fissão para fissão produzida por nêutrons térmicos e de 14 MeV

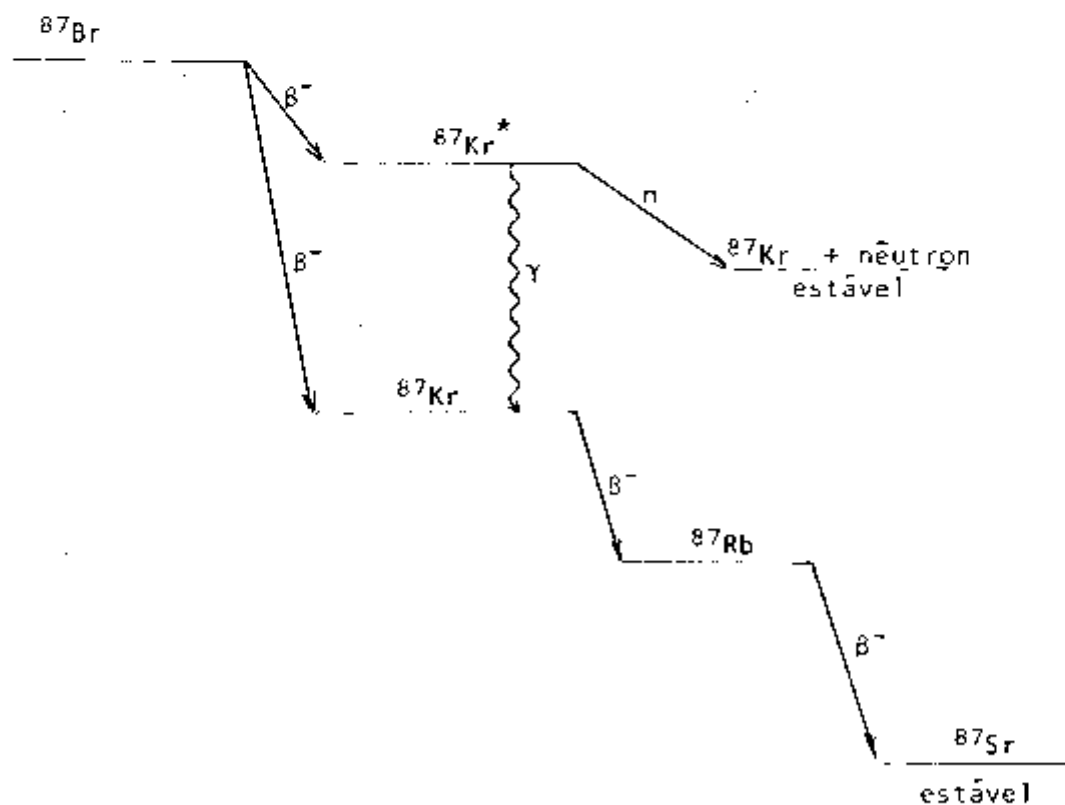


FIGURA 2.2 - Esquema de decaimento do  $^{87}\text{Br}$

( $10^{-3}$  s) quando comparado com a meia vida do emissor  $\beta^-$  ( $10^{-1}$  a  $10^2$  s), as meias vidas dos nêutrons atrasados são, então, aproximadamente as do emissor  $\beta^-$ , que é chamado de precursor de nêutrons atrasados. Um exemplo de precursor de nêutrons atrasados é o  $^{87}\text{Br}$ , cujo esquema de decaimento é apresentado na figura 2.2.

Atualmente são conhecidos mais de 50 precursores de nêutrons atrasados /34/, que os emitem com várias meias vidas diferentes mas, para efeito de cálculo, eles são usualmente tratados como seis grupos de nêutrons atrasados, indicados na Tabela 2.1. Cada grupo, para efeito de cálculo, é tratado como o decaimento radioativo de um mesmo precursor, decaindo exponencialmente com uma constante média de decaimento ( $\lambda_n$ ) no grupo n, obtida através da relação:

$$\lambda_n = \frac{\text{Ln}2}{T_{1/2}(n)}$$

A fração média de nêutrons por fissão que é emitida como nêutron atrasado do grupo n é representado por  $\beta_n$ .

Temos que a distribuição de produtos de fissão e, portanto dos precursores dos nêutrons atrasados, é uma característica que depende apenas do isótopo fissionado e da energia dos nêutrons que induzem a fissão. Conseqüentemente,  $\beta_n$  para cada grupo e a fração total de nêutrons atrasados emitidos por fissão ( $\beta$ ) são constantes que dependem apenas dessas duas variáveis.

A produção de nêutrons atrasados é proporcional ao número de fissões ocorridas que, por sua vez, é proporcional à quantidade de isótopo fissionável presente, desde que a multiplicação (m) (\*) e a auto-absorção de nêutrons na amostra

(\*)  $n = \frac{n^{\circ} \text{ de nêutrons interrogadores} + n^{\circ} \text{ de nêutrons produzidos em fissões}}{n^{\circ} \text{ de nêutrons interrogadores}}$

TABELA 2.1 - Características dos grupos de nêutrons atrasados para fissão rápida (\*) /2/

ISÓTOPO	nº de nêutrons atrasados por fissão	Índice do grupo	meia vida $T_{1/2}$ (segundos)	fração $\beta_n$
$^{235}\text{U}$	$0,0165 \pm 0,0005$	1	$54,51 \pm 0,94$	0,000243
		2	$21,84 \pm 0,54$	0,001363
		3	$6,00 \pm 0,17$	0,001203
		4	$2,23 \pm 0,06$	0,002605
		5	$0,496 \pm 0,029$	0,000819
		6	$0,179 \pm 0,017$	0,000166
$^{238}\text{U}$	$0,0412 \pm 0,0017$	1	$52,38 \pm 1,29$	0,000192
		2	$21,58 \pm 0,39$	0,002028
		3	$5,00 \pm 0,19$	0,002398
		4	$1,93 \pm 0,07$	0,005742
		5	$0,490 \pm 0,023$	0,003330
		6	$0,172 \pm 0,009$	0,001110

(\*) Os valores  $T_{1/2}$  e  $\beta_n$  apresentados acima são os referentes à energia dos nêutrons de fissão, que é a energia mais próxima de 14 MeV cujos valores são encontrados tabelados na literatura.

sejam insignificantes. Assim sendo, a produção de nêutrons a tr as a d o s é p r o p r o r c i o n a l á m a s s a d e m a t e r i a l i s s i o n á v e l p r e s e n t e n a a m o s t r a i r r a d i a d a c o m o s n ê u t r o n s i n t e r r o g a d o r e s.

Quando na amostra estão presentes dois ou mais i s ó t o p o s f i s s i o n á v e l s, a produção total (P) de nêutrons atrasados é dada pela relação:

$$P(E) = \sum_{l=1}^z A_l m_l \quad (2.1)$$

onde:

E = energia dos nêutrons interrogadores

z = número de isótopos fissionáveis

$m_l$  = massa do l<sup>ésimo</sup> isótopo

O coeficiente  $A_l$  é função da energia e do fluxo de nêutrons interrogadores, da seção de choque de fissão e da fração  $\beta_n$  de nêutrons atrasados. Essa equação linear só é válida quando o fator de multiplicação e o de absorção são desprezíveis. Os coeficientes  $A_l$  são obtidos através da irradiação de massa conhecida  $m_l$ , com nêutrons de energia E.

Dentro do campo de validade da equação (2.1), a produção de nêutrons atrasados é proporcional à quantidade de material fissionável presente na amostra. Assim, a comparação de medidas realizadas em uma amostra desconhecida, com medidas similares de um padrão de composição conhecida, permite determinar a quantidade de material fissionável presente na amostra desconhecida.

É difícil a detecção de nêutrons atrasados na presença de nêutrons prontos e de nêutrons interrogadores. Para contornar este obstáculo e possibilitar a utilização de equipa

mentos de contagem simples, é necessário usar uma fonte pul-  
sada de nêutrons rápidos (interrogadores) e contar os nêu-  
trons atrasados no tempo entre esses pulsos.

A figura 2.3 mostra a seqüência temporal necessária  
para essa técnica de fonte pulsada.

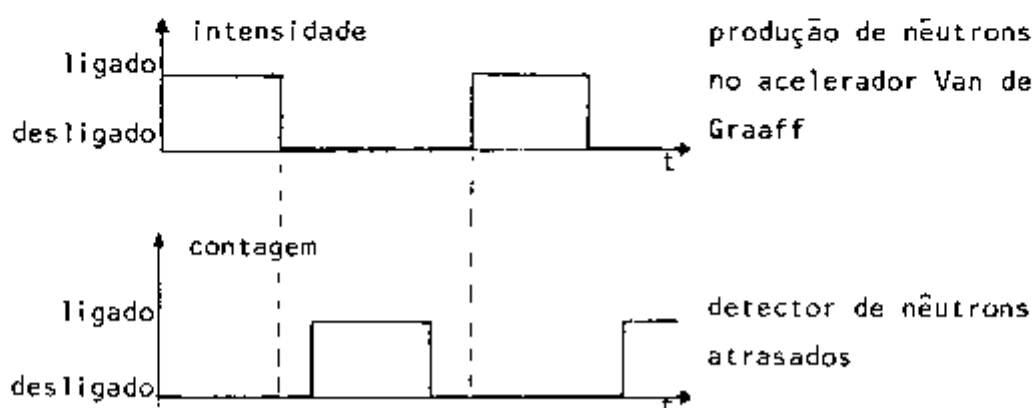


FIGURA 2.3 - Sequência temporal do funcionamento da fonte pul-  
sada de nêutrons e do detector fatia

## 2.2 - Contagem no detector fatia

O detector fatia e os equipamentos eletrônicos a ele  
associados, cujas características estão expostas no capítulo  
3, foram utilizados para a contagem dos nêutrons atrasados e  
emitidos entre os pulsos de nêutrons interrogadores, durante  
vários ciclos de irradiação-contagem.

Quando a absorção de nêutrons for desprezível, a con-  
tagem integrada para os vários ciclos é proporcional à inte-  
gral (no tempo) da produção de nêutrons atrasados e à quanti-



dade de material fissionável presente na amostra.

A seguir, será demonstrado que, para uma dada amostra, a produção de precursores e, conseqüentemente, a contagem de nêutrons atrasados por ciclo de irradiação e contagem, após um número relativamente grande desses ciclos, mantêm-se constante. Será também demonstrado como é calculado o valor dessa constante.

Para calcular a integral, no tempo, da produção de nêutrons atrasados é preciso entender o que se passa em cada ciclo.

O cálculo da variação na concentração de precursores de nêutrons atrasados em cada ciclo deve ser feito em duas etapas: durante a irradiação e durante a contagem.

Para efeito de cálculo, assumiu-se que os nêutrons atrasados são emitidos por seis grupos de precursores. Assumiu-se também que o fator de auto-multiplicação de nêutrons na amostra não seja significativo, o que implica na simultaneidade temporal das fissões com o feixe pulsado do acelerador.

Durante sua produção, o número de precursores é dado por:

$$\frac{d \sum_{n=1}^6 N_{nj}(t)}{dt} = \sum_{n=1}^6 \{R a_n - \lambda_n N_{nj}(t)\} \quad (2.2)$$

onde:

$N_{nj}(t)$  = número de átomos precursores do n<sup>ésimo</sup> grupo de nêutrons atrasados do j<sup>ésimo</sup> ciclo de irradiação

$\lambda_n$  = constante de decaimento do n<sup>ésimo</sup> grupo de nêutrons atrasados

R = razão de fissões na amostra quando o acelera  
dor está ligado

$a_n$  = fração de precursores do n<sup>ésimo</sup> grupo de nêu,  
trons atrasados produzidos por fissão

A equação (2.2) pode ser resolvida diretamente, multi-  
plicando-se cada termo pelo fator de integração  $e^{\lambda_n t}$ . Então:

$$\sum_{n=1}^6 N_{nj}(t) = \sum_{n=1}^6 \left[ \frac{K_{nj}}{e^{\lambda_n t}} + \frac{1}{e^{\lambda_n t}} \int_0^t e^{\lambda_n t'} R a_n dt' \right] \quad (2.3)$$

onde  $K_{nj}$  é número de precursores do n<sup>ésimo</sup> grupo no início  
do j<sup>ésimo</sup> ciclo de irradiação.

Resolvendo-se a integral que restou no 2º termo, ob  
têm-se a equação abaixo, válida durante a irradiação.

$$\sum_{n=1}^6 N_{nj}(t) = \sum_{n=1}^6 \left[ K_{nj} e^{-\lambda_n t} + \frac{R a_n}{\lambda_n} \frac{(e^{\lambda_n t} - 1)}{e^{\lambda_n t}} \right] \quad (2.4)$$

Ao final dessa irradiação, que dura o tempo  $t_i$  (indi-  
cado na figura 2.4), o número de precursores é dado por:

$$\sum_{n=1}^6 N_{nj}(t_i) = \sum_{n=1}^6 \left[ K_{nj} e^{-\lambda_n t_i} + \frac{R a_n}{\lambda_n} \frac{(e^{\lambda_n t_i} - 1)}{e^{\lambda_n t_i}} \right]$$

Durante o tempo de contagem, há apenas o decaimento  
 $e^{-\lambda_n(t-t_i)}$  dos precursores existentes no instante  $t_i$ . O ci-  
clo de irradiação-contagem tem o período  $t_p$  (indicado na fi-  
gura 2.4) e, o comportamento temporal do número de precurso  
res presentes na amostra entre as irradiações é dado por:

$$\sum_{n=1}^6 N_{nj}(t) = \sum_{n=1}^6 \left\{ \left[ K_{nj} e^{-\lambda_n t_i} + \frac{R a_n}{\lambda_n} \frac{(e^{\lambda_n t_i} - 1)}{e^{\lambda_n t_i}} \right] e^{-\lambda_n (t-t_i)} \right\} \quad (2.5)$$

As equações (2.4) e (2.5) são válidas para qualquer ciclo, desde que sejam utilizados os valores apropriados para  $K_{nj}$ .

Foi admitido que ao iniciar-se o primeiro ciclo não há via precursores na amostra. Assim sendo, através da equação (2.4) verifica-se que para o primeiro ciclo  $K_{n1} = 0$  e, utilizando a equação (2.5) conclui-se que ao final desse ciclo o número de precursores é:

$$\sum_{n=1}^6 N_{n1}(t_p) = \sum_{n=1}^6 \frac{R a_n}{\lambda_n} (e^{\lambda_n t_i} - 1) e^{-\lambda_n t_p}$$

Para o segundo ciclo da equação (2.4), temos que  $K_{n2} = \sum_{n=1}^6 N_{n1}(t_p)$  e, através da equação (2.5), obtêm-se:

$$\sum_{n=1}^6 N_{n2}(2t_p) = \sum_{n=1}^6 \left[ \frac{R a_n}{\lambda_n} (e^{\lambda_n t_i} - 1) e^{-\lambda_n t_p} \cdot e^{-\lambda_n t_i} + \frac{R a_n (e^{\lambda_n t_i} - 1)}{\lambda_n e^{\lambda_n t_i}} \right] \cdot e^{-\lambda_n (t_p - t_i)}$$

Portanto:

$$\sum_{n=1}^6 N_{n2}(2t_p) = \sum_{n=1}^6 \left[ \frac{R a_n}{\lambda_n} (e^{\lambda_n t_i} - 1) e^{-2\lambda_n t_p} + \frac{R a_n}{\lambda_n} (e^{\lambda_n t_i} - 1) e^{-\lambda_n t_p} \right]$$

Por raciocínio análogo, pode-se obter o número de átomos de precursores de nêutrons atrasados ao final de muitos ciclos consecutivos, podendo ser representado pela soma de uma progressão geométrica (P.G.) com os parâmetros:

a. 1º termo ( $P_0$ ) dessa P.G.:

$$P_0 = \sum_{n=1}^6 N_{n1}(t_p)$$

b. razão ( $q$ ) da P.G. ( $q < 1$ ):

$$q = e^{-\lambda_n t_p}$$

Constata-se também que, à medida que aumenta o número de ciclos, diminui o acréscimo no número de precursores por ciclo em relação ao ciclo anterior, sendo que a concentração aproxima-se de um valor limite que é o limite da soma da progressão geométrica de razão menor do que 1, calculável pela fórmula:

$$S = \frac{P_0}{1 - q}$$

Dessa forma, após grande número de ciclos, o número de precursores aproxima-se do valor:

$$N = \sum_{n=1}^6 N_n = \sum_{n=1}^6 \frac{R a_n}{\lambda_n} \frac{(e^{\lambda_n t_i} - 1) e^{-\lambda_n t_p}}{(1 - e^{-\lambda_n t_p})}$$

Desenvolvimento análogo a esse, feito para os precursores de nêutrons atrasados, foi realizado para a contagem de nêutrons atrasados no detector fatia. Isso baseia-se no fato de que a produção de nêutrons atrasados em um intervalo de tempo é proporcional à variação do número de precursores

nesse intervalo, e de que os nêutrons atrasados detectados são apenas uma fração dos produzidos, fração essa que é a eficiência do detector.

Na figura 2.4 está indicado o intervalo de contagem de nêutrons atrasados em função dos pulsos de nêutrons interrogadores.

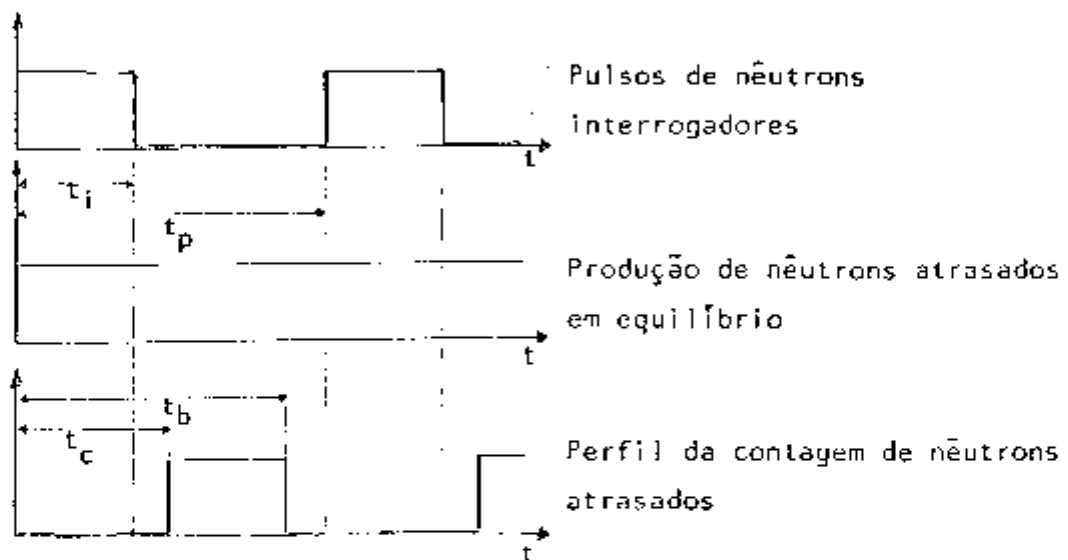


FIGURA 2.4 - Tempos envolvidos no ciclo de irradiação e contagem

A contagem inicia certo tempo após o final da irradiação (no tempo  $t_c$ ), para que o detector possa se recuperar dos efeitos devido aos nêutrons interrogadores. A contagem termina, ou seja, o detector é bloqueado para novas contagens, no tempo  $t_b$ , antes do final do ciclo ( $t_p$ ) para evitar que ele detecte nêutrons interrogadores do início do ciclo de irradiação seguinte.

A contagem de nêutrons atrasados no detector fatia, em um dado ciclo ( $C_{DFj}$ ), é obtido aplicando na equação (2.5) os

tempos  $t_c$  e  $t_b$ , como se segue:

$$C_{DFj} = \sum_{n=1}^6 \left[ E_{DF} \frac{\nu \beta_n}{a_n} N_{nj}(t_c) - \sum_{n=1}^6 E_{DF} \frac{\nu \beta_n}{a_n} N_{nj}(t_b) \right]$$

Portanto:

$$C_{DFj} = E_{DF} \nu \sum_{n=1}^6 \left\{ \beta_n \left[ \frac{R_{nj}}{a_n} + \frac{R}{\lambda_n} (e^{\lambda_n t_i} - 1) \right] (e^{-\lambda_n t_c} - e^{-\lambda_n t_b}) \right\}$$

onde:

$E_{DF}$  = eficiência total do detector = eficiência geométrica x eficiência intrínseca

$\nu$  = número médio de nêutrons emitidos por fissão

$\beta_n$  = fração de nêutrons de fissão emitidos como nêutrons atrasados do grupo n

$\frac{\nu \beta_n}{a_n}$  = número médio de nêutrons atrasados emitidos por precursor do grupo n

Por analogia ao cálculo da concentração de precursores, tem-se que, após grande número de ciclos, a contagem de nêutrons atrasados por ciclo permanece constante igual a:

$$C_{DF} = E_{DF} \nu \sum_{n=1}^6 \beta_n \frac{R (e^{\lambda_n t_i} - 1)}{\lambda_n (1 - e^{-\lambda_n t_p})} (e^{-\lambda_n t_c} - e^{-\lambda_n t_b}) \quad (2.6)$$

Visto que  $t_p$  é o maior dos tempos considerados na equação (2.6), tomando-se  $t_p$ , tal que  $\lambda_n t_p \ll 1$ , pode-se expandir em série todas as exponenciais dessa equação, obten

do-se:

$$C_{DF} = E_{DF} \nu \sum_{n=1}^6 \beta_n \frac{R}{\lambda_n} \frac{(1 + \lambda_n t_i - 1)(1 - \lambda_n t_c - 1 + \lambda_n t_b)}{(1 - 1 + \lambda_n t_p)}$$

Substituindo  $\sum_{n=1}^6 \beta_n = \beta$ , obtêm-se:

$$C_{DF} = E_{DF} \nu \beta R t_i \frac{(t_b - t_c)}{t_p} \quad (2.7)$$

Conclui-se que, por ciclo, a contagem de nêutrons a trasados é constante, cujo valor depende apenas da eficiência do detector ( $E_{DF}$ ), da produção de nêutrons atrasados por fissão ( $\nu\beta$ ), do número de fissões que ocorrem na amostra durante a irradiação ( $R t_i$ ) e da razão de trabalho no ciclo ( $(t_b - t_c)/t_p$ ). Observe-se que, na equação (2.7),  $C_{DF}$  independe dos coeficientes  $a_n$ ,  $\lambda_n$ ,  $\beta_n$  que são característicos de cada grupo de nêutrons atrasados.

Em vista desses cálculos, conclui-se que o acelerador deve ser modulado com um período menor do que a meia vida de qualquer precursor de nêutrons atrasados (devido à escolha de  $\lambda_n t_p \ll 1$ ) e que esse processo de irradiação deve se prolongar por um tempo muito maior do que a meia vida de qualquer um desses precursores, para que a produção de nêutrons atrasados, resposta aos pulsos do acelerador, alcance um valor de equilíbrio (para intensidade constante de nêutrons interrogadores). Só após ter sido alcançada essa situação de equilíbrio é que deve ser iniciada a contagem de nêutrons a trasados.

Através de cálculo computacional, foram otimizados os tempos de irradiação e contagem, tendo-se em vista a maior a cumulação de dados, em menor tempo, com a consequente minimização de erros estatísticos. Esses cálculos foram feitos com o auxílio de uma calculadora de mesa (HP 9 100 B), a partir da equação (2.7), onde  $t_b$  foi substituído por  $t_p$ , visto que a diferença entre esses dois valores é pequena e se desejava determinar o valor ( $t_p$ ) do período do pulso de nêutrons interrogadores.

Inicialmente, para o valor de  $t_p$  fixo, obtivemos que essa maior acumulação de dados ocorre para o caso  $t_c = t_i = t_p/2$ . Em conformidade com esses valores, o valor ótimo calculado para  $t_p$  é de 120 ms. Dessa forma, o acelerador Van de Graaff deve fornecer pulsos de nêutrons interrogadores com os seguintes parâmetros:

período dos pulsos ( $t_p$ ) = 120 ms

largura do pulso de irradiação ( $t_i$ ) = 60 ms

Os valores de  $t_c$  e  $t_b$  devem ser determinados experimentalmente.

A razão de fissão (R) em uma amostra onde estejam presentes n isótopos fissionáveis e a auto-multiplicação e a auto-absorção de nêutrons sejam insignificantes, é dada por:

$$R = I \sum_{i=1}^n \frac{m_i}{M_i} N_0 \sigma_{fi} \quad (2.8)$$

onde:

I = fluxo de nêutrons interrogadores



- $m_1$  = massa do  $l^{\text{ésimo}}$  isótopo presente na amostra  
 $M_1$  = massa atômica do  $l^{\text{ésimo}}$  isótopo  
 $N_0$  = número de Avogadro  
 $\sigma_{f1}$  = seção de choque microscópica de fissão do  $l^{\text{ésimo}}$  isótopo, para a energia dos nêutrons interrogadores

Substituindo a equação (2.8) na equação (2.7), obtêm-se:

$$C_{DF} = \sum_{i=1}^n E_{DF} t_i \frac{(t_b - t_c)}{t_b} I \nu_1 \beta_1 \frac{m_1}{M_1} N_0 \sigma_{f1} \quad (2.9)$$

onde o índice  $l$  refere-se ao  $l^{\text{ésimo}}$  isótopo fissionável presente na amostra.

Para intensidade constante de nêutrons interrogadores, a contagem integrada sobre um número  $X$  de ciclos é  $X$  vezes a contagem para cada ciclo (desde que a produção de nêutrons atrasados esteja numa situação de equilíbrio) e, da análise da equação (2.9) conclui-se que ela é proporcional à quantidade de material fissionável presente na amostra. Se a abundância isotópica do material fissionável é conhecida, como no caso da amostra ser uma mistura de urânio natural com outros materiais não fissionáveis, a partir da contagem integrada de nêutrons atrasados pode-se determinar a massa total de material fissionável e, conseqüentemente, a de cada isótopo fissionável presente na amostra.

A equação da contagem de nêutrons atrasados no detector fatia, equação (2.9), só é válida se a absorção e o fator de auto-multiplicação de nêutrons na amostra forem insignificante; caso isso não ocorra, é preciso corrigir o valor da

intensidade de nêutrons interrogadores para cada ponto da amostra ou seja, a intensidade passa a ser uma função  $I(x,y,z)$  de cada posição  $(x,y,z)$  considerada na amostra.

### 2.3 - Contagem no monitor

O monitor tem por função fornecer uma contagem integrada proporcional ao número de nêutrons de 14 MeV produzidos pelo acelerador Van de Graaff, durante os ciclos em que é feita a contagem de nêutrons atrasados.

O monitor é operado em sincronismo com o acelerador, ou seja, só funciona quando o acelerador está produzindo nêutrons interrogadores.

Como a intensidade de nêutrons produzidos pelo acelerador Van de Graaff é da ordem de  $10^3$  vezes maior do que a intensidade de nêutrons prontos e atrasados produzidos através de fissões na amostra (\*), assumiu-se que a contagem no monitor deve-se unicamente aos nêutrons produzidos pelo acelerador.

A contagem no monitor ( $C_M$ ), após X ciclos de irradiações, é dada por:

$$C_M = X \epsilon_M t_i I \quad (2.10)$$

onde:

$I$  = intensidade de nêutrons produzidos pelo acelera

---

(\*) O fator  $10^3$  foi calculado considerando-se uma amostra de urânio natural de 1 000 g colocada na posição de análise ( $X=60$  cm,  $Y=37$  cm) e, apenas a produção de nêutrons através de fissões no  $^{238}\text{U}$  induzidas pelos nêutrons de 14 MeV, uma vez que essas fissões são numericamente as mais significativas.

dor Van de Graaff

$t_i$  = tempo de irradiação

$\epsilon_M$  = eficiência do monitor definida como a razão entre o número de nêutrons produzidos pelo acelerador e o número de nêutrons contados

#### 2.4 - Normalização

Durante os ciclos consecutivos de irradiação ocorrem variações na intensidade de nêutrons produzidos pelo acelerador Van de Graaff, ocorrendo o mesmo entre irradiações feitas para analisar a amostra desconhecida e a amostra padrão. Essas variações, como pode ser visto na equação (2.9), provocam contagens integradas diferentes para uma mesma quantidade de material fissionável presente na amostra.

Para a normalização dos resultados, a produção total de nêutrons ( $\int I dt$ ) da fonte  $T(d,n)^4He$  é medida usando-se um monitor.

Como a intensidade de nêutrons interrogadores é significativamente maior do que a de nêutrons prontos e atrasados produzidos através de fissões na amostra, a intensidade de nêutrons medida com o monitor é proporcional a que irradia a amostra. Portanto, as contagens integradas do detector fatia e do monitor são proporcionais, devido à variações no fluxo de nêutrons do acelerador durante os X ciclos de medida. Assim sendo, tem-se que a razão entre a contagem no detector fatia ( $C_{DF}$ ) e a contagem no monitor ( $C_M$ ) não é afetada por variações na intensidade de nêutrons interrogadores. O valor dessa razão (C) é chamada de contagem normalizada e é obtida utilizando as equações (2.9) e (2.10), donde:

$$C = \frac{C_{DF}}{C_M} = \frac{E_{DF}}{E_M} \frac{(t_b - t_c)}{t_b} \prod_{i=1}^n v_i \beta_i \frac{m_1}{M_1} N_0 \sigma_{f1} \quad (2.11)$$

A equação (2.11) é a equação de normalização das con tagens.

### 2.5 - Equação de calibração

Como já foi citado anteriormente, o método empregado no presente trabalho é de medida relativa; portanto, a massa de material fissionável é obtida pela comparação entre medi das realizadas com a amostra desconhecida e medidas simila res realizadas com uma amostra padrão de massa conhecida. Is to equivale a comparar os resultados da aplicação da equação (2.11) numa amostra desconhecida (índice a) e numa amostra padrão (índice p). Assim sendo:

$$\frac{C_a}{C_p} = \frac{\frac{E_{DF}}{E_{DM}} \frac{(t_b - t_c)}{t_b} \prod_{i=1}^n v_i \beta_i \frac{m_{1a}}{M_1} N_0 \sigma_{f1}}{\frac{E_{DF}}{E_{DM}} \frac{(t_b - t_c)}{t_b} \prod_{i=1}^n v_i \beta_i \frac{m_{1p}}{M_1} N_0 \sigma_{f1}}$$

Portanto:

$$\frac{C_a}{C_p} = \frac{\prod_{i=1}^n v_i \beta_i \frac{m_{1a}}{M_1} \sigma_{f1}}{\prod_{i=1}^n v_i \beta_i \frac{m_{1p}}{M_1} \sigma_{f1}} \quad (2.12)$$

Nessa equação, as grandezas  $v_i, \beta_i, \sigma_{f1}$  são funções a

penas do isótopo fissionável (1) e da energia dos nêutrons in-  
terrogadores; a grandeza  $M_1$  é uma constante. Assim sendo, po-  
de-se substituí-las, na equação (2.12), pelos coeficientes  
 $K_1 = \frac{v_1 \beta_1 \sigma f_1}{M_1}$ , obtendo-se:

$$\frac{C_a}{C_p} = \frac{\sum_{l=1}^n K_l m_{1a}}{\sum_{l=1}^n K_l m_{1p}} \quad (2.13)$$

Em todas as análises realizadas no decorrer deste tra-  
balho, as amostras utilizadas eram constituídas unicamente  
de urânio natural, como material fissionável; assim sendo, a  
abundância relativa ( $f_1$ ) de cada um dos isótopos (1) de urâ-  
nio é uma constante para todas as amostras, tanto as desco-  
nhecidas como a padrão, e a massa ( $m_1$ ) de cada um desses isó-  
topos pode ser escrita como:

$$m_1 = f_1 m \quad (2.14)$$

onde:

$m$  = massa de urânio presente na amostra

Das equações (2.13) e (2.14), conclui-se que:

$$\frac{C_a}{C_p} = \frac{\sum_{l=1}^n K_l f_1 m_a}{\sum_{l=1}^n K_l f_1 m_p}$$

Portanto:

$$m_a = \frac{C_a}{C_p} m_p \quad (2.15)$$

Quando é feita uma medida, junto com as contagens de nêutrons atrasados faz-se também a contagem de fundo (CF); assim sendo, a contagem feita ( $C^*$ ) no detector é dada por:

$$C^* = C + CF \quad (2.16)$$

A contagem de fundo (CF) é toda contagem que não seja devida aos nêutrons atrasados emitidos pelo urânio. Ela é facilmente obtida repetindo-se a análise sem a amostra que contém urânio.

Das equações (2.15) e (2.16), obtêm-se:

$$m_a = \frac{(C_a^* - CF)}{(C_p^* - CF)} m_p \quad (2.17)$$

que é a equação de calibração do sistema.

### III. ARRANJO EXPERIMENTAL

#### 3.1 - Descrição do sistema

Basicamente, o sistema de análise implantado consiste de um acelerador tipo Van de Graaff, operando em modo pulsado, utilizado como fonte de nêutrons de 14 MeV, um monitor da intensidade de nêutrons produzidos pelo acelerador, um detector de nêutrons tipo fatia para detectar os nêutrons atrasados emitidos pela amostra analisada e o equipamento eletrônico de análise de pulsos, associado ao monitor e ao detector fatia. Dispõe-se também de um analisador multicanal (TMC de 1 024 canais) e de um computador de 16 k memória (Hewlett Packard 2116 C) para auxiliar a calibração do sistema e a análise dos dados.

O acelerador Van de Graaff, o detector fatia e o monitor, para as medidas realizadas, foram dispostos em uma sala conforme as distâncias especificadas nas figuras 3.1 e 3.2, sendo que a amostra a ser analisada deve ser colocada entre o alvo do acelerador e o detector fatia.

O esquema simplificado do equipamento eletrônico utilizado está apresentado na figura 3.4. O equipamento de controle do acelerador Van de Graaff e a maior parte dos equipamentos eletrônicos associados ao monitor e ao detector fatia estão em outra sala (sala de controle) que dista aproximadamente 30 m da sala do acelerador.

#### 3.2 - Fonte de nêutrons

No decorrer desse trabalho, foram utilizados dois tipos de fonte de nêutrons, que serão descritas a seguir.

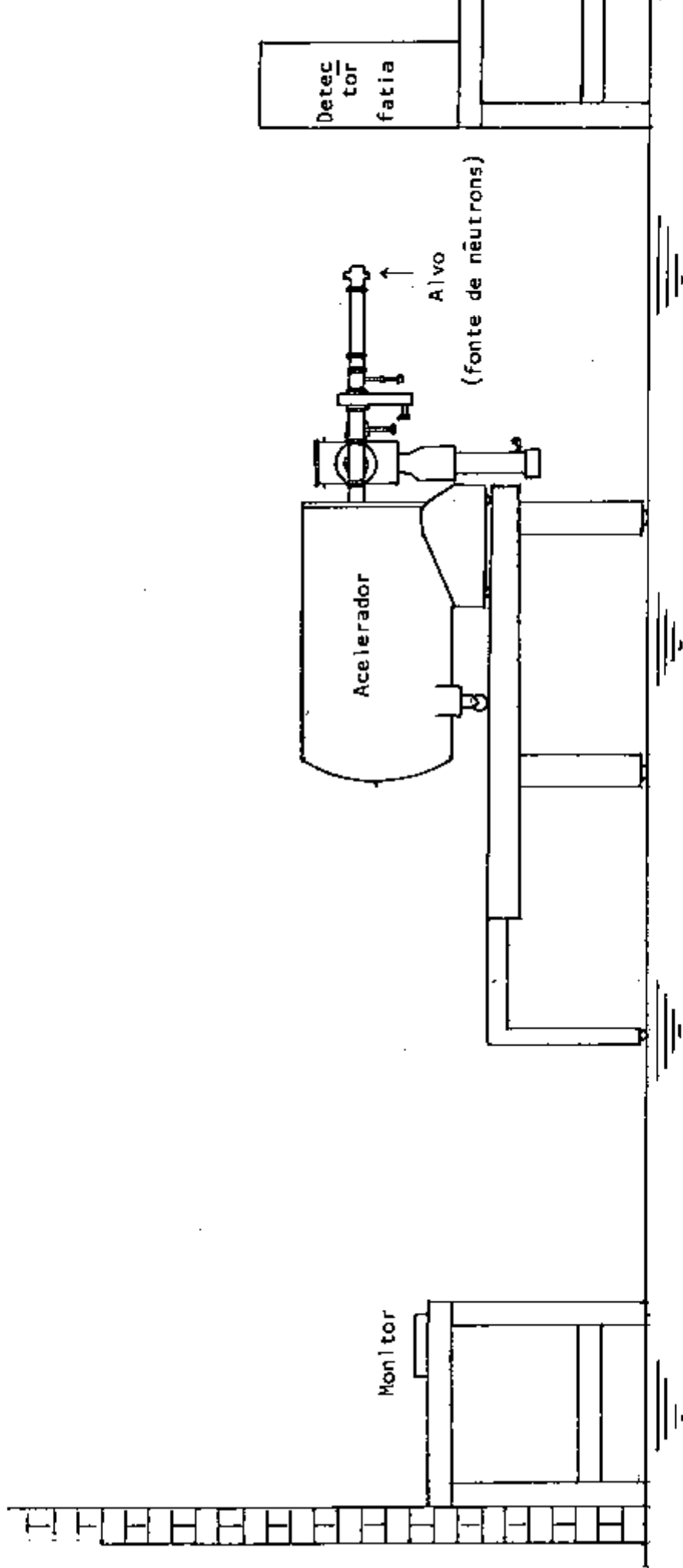


FIGURA 3.1 - Disposição dos equipamentos na sala do acelerador

Obs: Nesta figura são mostrados o "corpo do acelerador junto com seu tubo de vácuo e o sistema de vácuo.



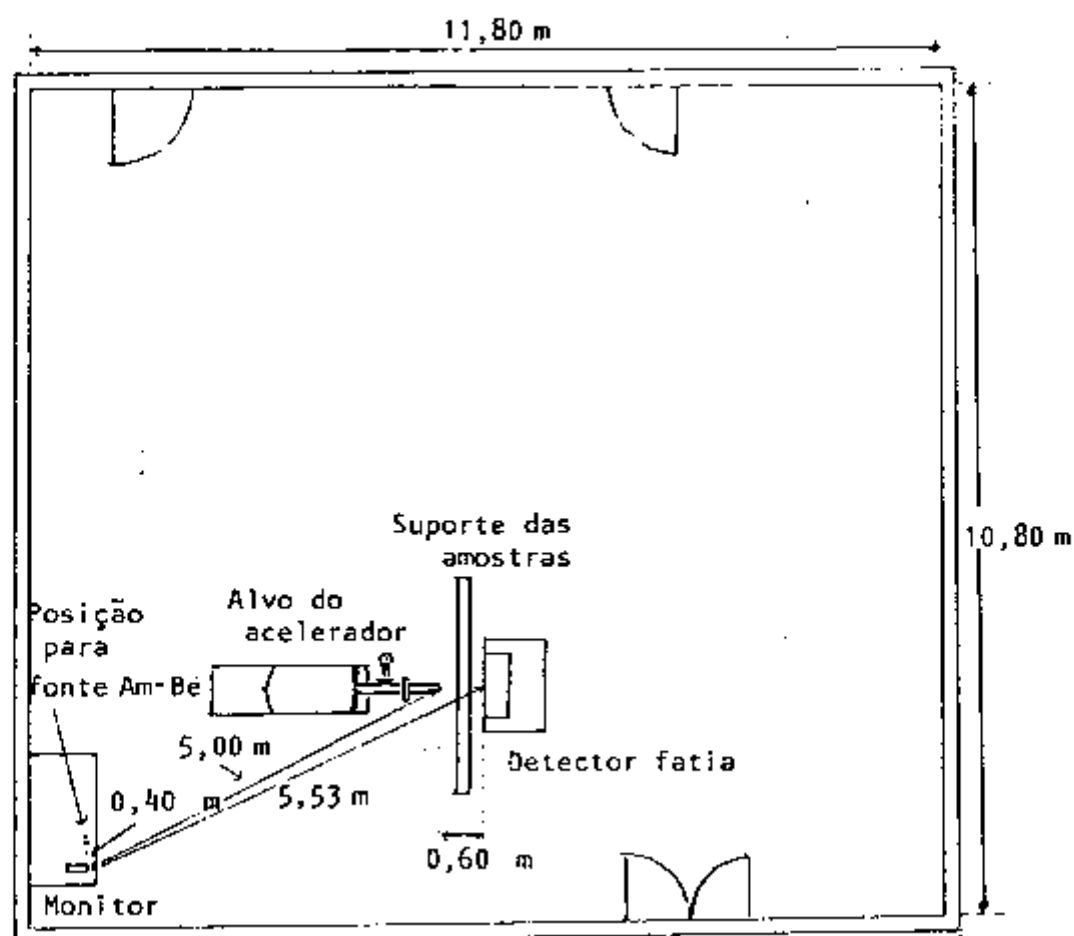


FIGURA 3.2 - Disposição dos equipamentos na sala do acelerador

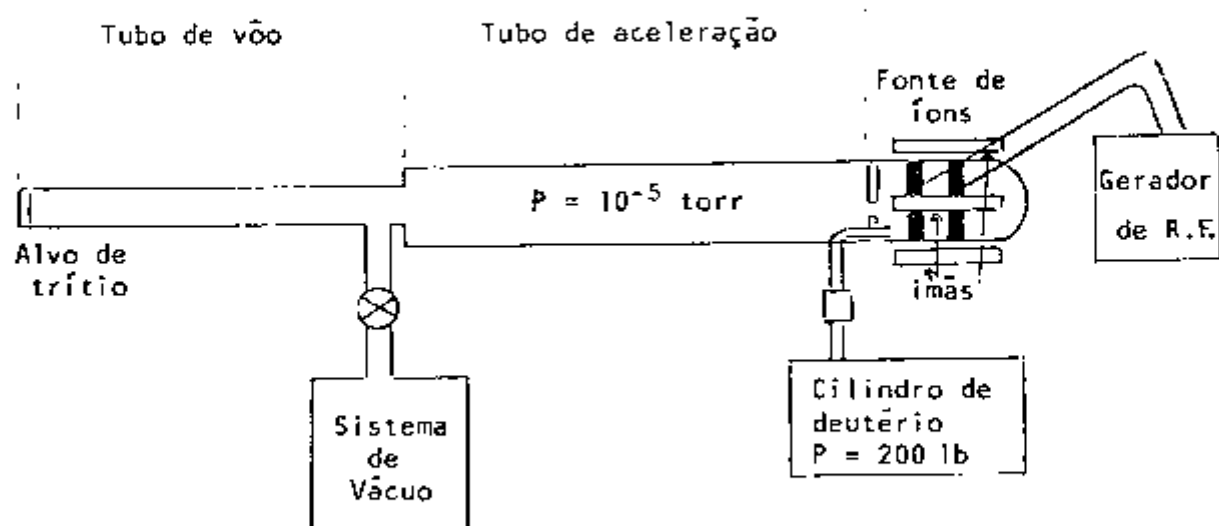


FIGURA 3.3 - Esquema de algumas partes do acelerador Van de Graaff

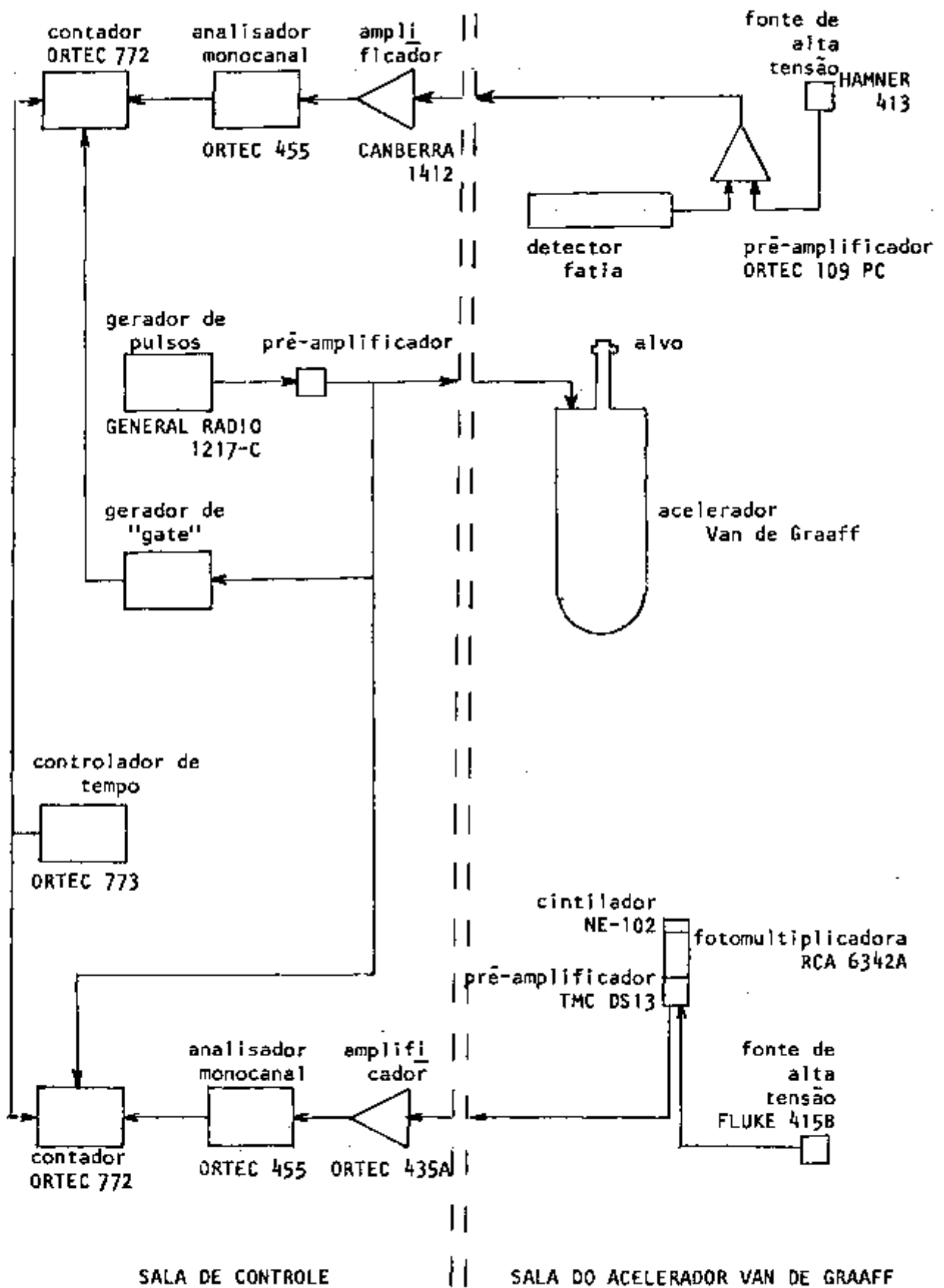


FIGURA 3.4 - Esquema do equipamento eletrônico utilizado

### 3.2.1 - Fonte Am-Be

Uma fonte de Am-Be foi utilizada para as medidas rotineiras de estabilidade de contagem do detector fatia e do monitor e para auxiliar no processo de calibração dos equipamentos eletrônicos desses sistemas.

Nêutrons são produzidos através da reação  ${}^9\text{Be}(\alpha, n){}^{12}\text{C}$ , na qual as partículas alfa são produzidas por decaimento de  ${}^{241}\text{Am}$  com meia vida de 433 anos.

Uma fonte Am-Be da Amersham foi usada. Detalhes da fonte são: Modelo MN 1 000, número 2 162, atividade nominal = 1 Curie, intensidade =  $2,4 \times 10^6$  nêutrons/s.

Para as finalidades das experiências feitas, a intensidade da fonte é constante.

### 3.2.2 - Acelerador Van de Graaff

A fonte de nêutrons interrogadores utilizada foi um acelerador Van de Graaff modelo PN-400 da High Voltage Engineering Corp. operando em modo pulsado, sendo que os nêutrons são produzidos através da reação  ${}^3\text{H}(d, n){}^4\text{He}$ . Os nêutrons são emitidos com energia aproximadamente igual a 14 MeV, de forma praticamente isotrópica.

No acelerador Van de Graaff, a carapaça de alta tensão é suportada por uma coluna isolante e é continuamente carregada por uma correia sem fim. O potencial do terminal de alta tensão é dependente da quantidade de carga depositada na correia e da capacidade de isolamento elétrica entre o terminal e o terra.

Na figura 3.3 são apresentadas, de forma esquemática, algumas partes do acelerador Van de Graaff, citadas a seguir:

Os dêuterons são fornecidos por uma fonte de íons, na qual o gás deutério que está num cilindro é lentamente introduzido através de uma válvula termo-mecânica. Na fonte de íons, o deutério é ionizado por um oscilador de rádio-freqüência de aproximadamente  $100 \text{ MHz}$ , acoplado capacitivamente à garrafa de ionização, operando em regime pulsado, combinado com um campo magnético fornecido por 4 imãs. Os íons positivos (dêuterons) são extraídos da fonte de íons para o tubo de aceleração por meio de uma tensão positiva, em relação ao canal de extração. O controle da corrente de feixe de íons é feito pelo ajuste dessa tensão. Nesse tubo, os dêuterons são acelerados por uma diferença de potencial, entre o terminal de alta tensão e o terra, que é regulável para até  $400 \text{ kV}$ , indo se chocar com um alvo de trítio ( $^3\text{H}$ ), colocado na extremidade do tubo de voo, provocando a emissão de nêutrons. Para que os dêuterons tenham um livre caminho médio maior do que o comprimento do conjunto do tubo acelerador + tubo de voo, este é mantido sob vácuo aproximadamente  $10^{-5} \text{ mmHg}$  por meio de um sistema de vácuo apropriado.

Para a execução desse trabalho foi necessário modificar o sistema de pulsação do acelerador Van de Graaff, para obterem-se pulsos de nêutrons de largura e período adequados ao tipo de medida realizada.

O novo sistema de pulsação desenvolvido e implantado consiste em pulsar a rádio-freqüência da fonte de íons através de um gerador de pulsos elétricos instalado externamente ao acelerador. Um esquema do funcionamento desse sistema é encontrado na figura 3.5.

O gerador de pulsos fornece pulsos elétricos de largura e período iguais aos que se deseja para os pulsos de nêutrons interrogadores. O gerador de pulsos está acoplado ao

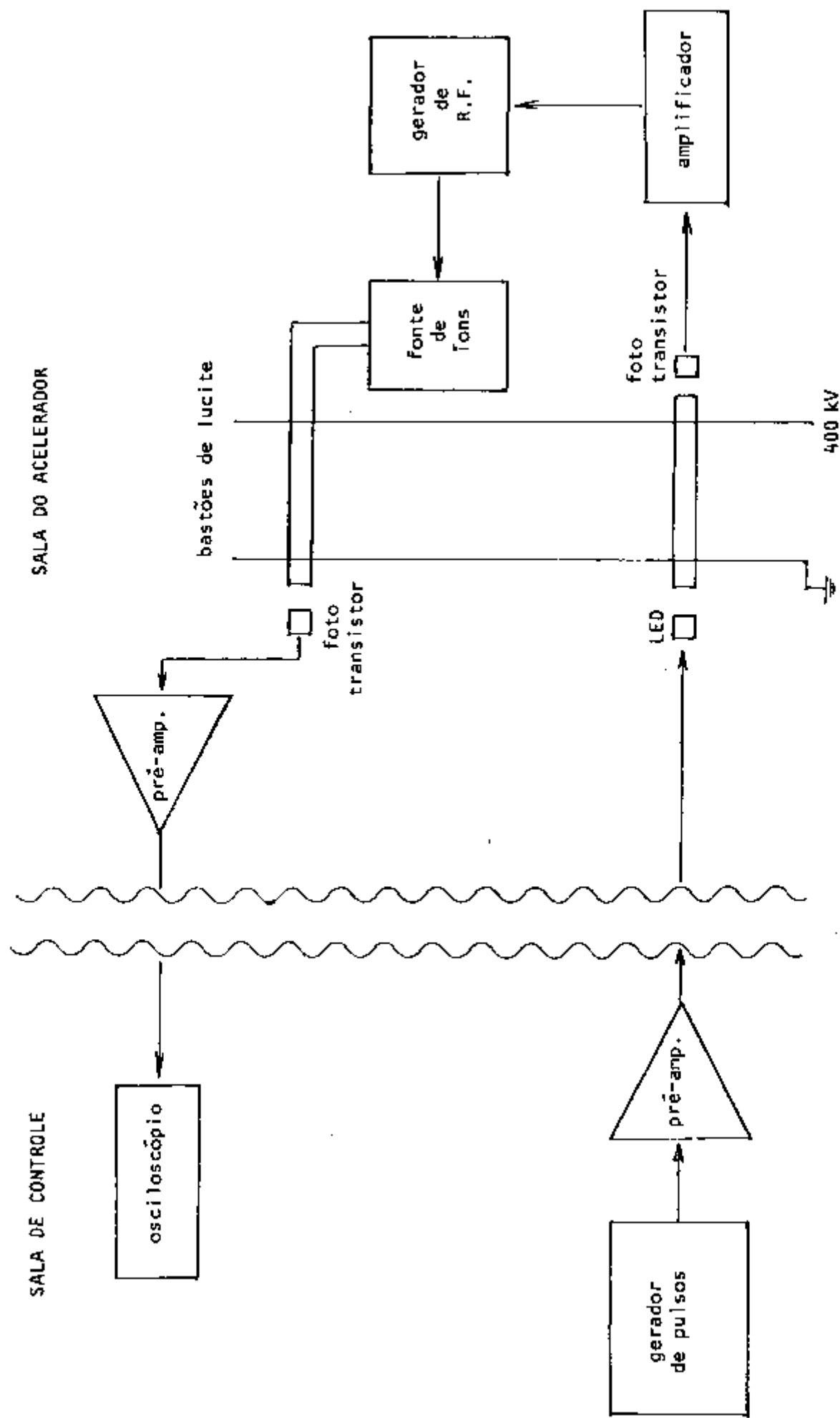


FIGURA 3.5 - Esquema de funcionamento do sistema de pulsação do acelerador Van de Graaff

gerador de rádio-frequência (RF), localizado no terminal de alta tensão do acelerador, através de um pré-amplificador ligado a um diodo emissor de luz (LED) e a um fototransistor no terminal de alta tensão. O LED, fixado no terminal terra do acelerador, é acoplado ao fototransistor através de um guia de luz (bastão de lucite) (Vide figura 3.5).

O fototransistor é acoplado a um amplificador de sinal que fornece pulsos quadrados, de amplitude (níveis) +120 volts e -60 volts, e é ligado às grades das válvulas osciladoras da RF, sendo que essas tensões (+120 V, -60 V) são necessárias para operar essas válvulas de modo a respectivamente permitir ou não a oscilação e, dessa forma, pulsar a RF na fonte de íons e, conseqüentemente, pulsar a produção de nêutrons.

Muitas vezes, apesar do LED estar pulsando, a fonte de íons não pulsa ou, então, não pulsa de forma regular. Isso pode ser defeito no sistema de pulsação ou por não haver pressão apropriada de gás deutério na fonte de íons. Para verificar o funcionamento da fonte de íons, foi construído um sistema indicador de ionização.

O princípio do funcionamento desse equipamento é o mesmo do sistema de controle da pulsação da RF. Como o sinal tem que atravessar a região de alta tensão, foi necessário utilizar outro bastão de lucite. No lugar do LED, utiliza-se a luz avermelhada que é emitida pela fonte de íons quando o gás deutério é ionizado. Essa luz serve para excitar o fototransistor cujo sinal é amplificado e transmitido, através de aproximadamente 30 m de cabo coaxial, para a sala de controle, onde com um osciloscópio, pode-se monitorar a pulsação da fonte de íons.

### 3.3 - Detector fatia

Com o objetivo de obter alta eficiência na detecção dos nêutrons atrasados, foi construído um detector tipo fatia que é similar a um largamente utilizado no programa de salvaguarda do laboratório de Los Álamos /17/. Uma vista em corte desse detector é apresentada na figura 3.6.

A resposta do detector é plana dentro da variação de 3%, no intervalo de energia de 25 keV a aproximadamente 3 MeV. Nessa região de energia, a eficiência intrínseca do detector, definida como a probabilidade de detectar nêutrons entrando na face frontal do detector de área ativa de  $3100\text{cm}^2$ , é de 18% /17/.

O detector consiste de treze detectores proporcionais de 2,5 cm de diâmetro, 50 cm de comprimento e 4 atm de  $^3\text{He}$  montados em dois blocos de parafina com as dimensões de 61 x 51 x 9 cm cada. Ele é blindado (com exceção da face frontal) por uma camada de 16 cm de parafina misturada com ácido bórico (na razão de 45% de parafina em peso). O detector é envolto por uma camada de 1 mm de cádmio, que o blindava contra nêutrons térmicos (transmissão de nêutrons térmicos para 1 mm de cádmio é  $10^{-6}$ ) /9/. O bloco frontal do detector possui 7 furos cilíndricos, para que se consiga resposta plana em função da energia dos nêutrons /1/.

A construção desse detector de alta eficiência fêz-se necessária devido a ser baixa a produção de nêutrons atrasados. Precisava-se também que a eficiência (E) de contagem fôsse constante no intervalo de energia em que são emitidos os nêutrons atrasados, para poder utilizar a equação de calibração (equação 2.17) sem aumentar o erro na medida. Finalmente, desejava-se que o detector fôsse pouco sensível a raios gama,

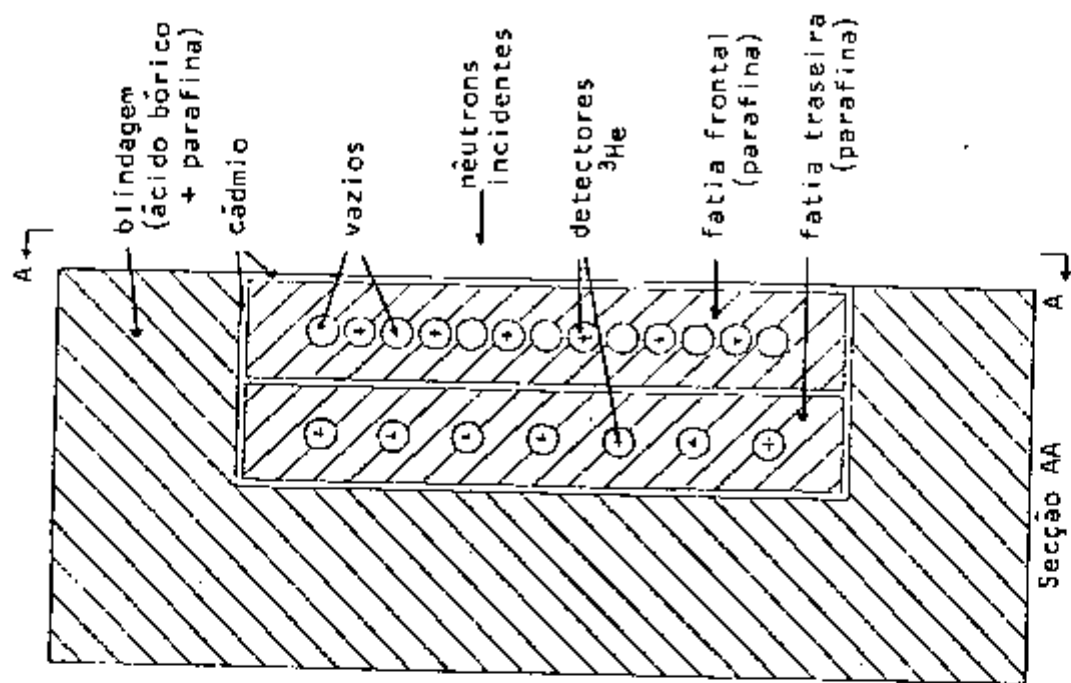
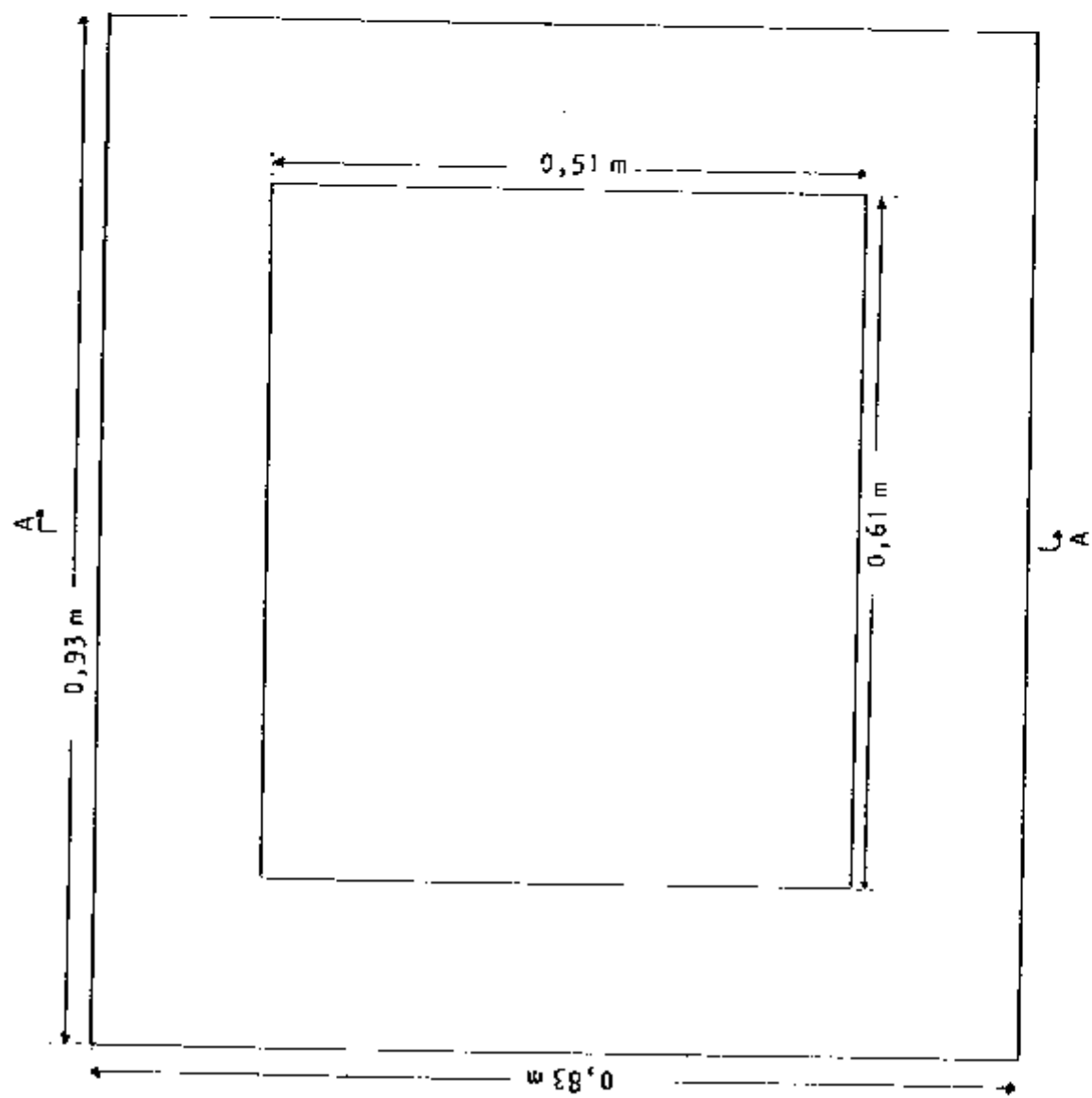


FIGURA 3.6 - Vista em corte do detector fatia



para que a presença de raios gama produzidos na amostra não interferissem significativamente na medida de nêutrons atrasados. Essas três qualidades: alta eficiência, resposta plana em função da energia e pouca sensibilidade a raios gama estão aproximadamente combinadas no detector fatia.

A diferença entre o detector de Los Álamos e o construído consiste em:

- a. ter sido utilizada parafina como moderador de nêutrons em lugar de polietileno e ter usado ácido bórico como absorvedor de nêutrons térmicos em lugar de carbeto de boro. Essas substituições empregadas devem-se ao alto preço de venda de polietileno e à dificuldade de se comprar carbeto de boro. Não há variação significativa nas características do detector fatia devido a essa troca de materiais constituintes.
- b. ter utilizado detectores de 4 atm de  $^3\text{He}$  em lugar de 6 atm de  $^3\text{He}$ . Essa modificação implicará na perda, em termos da eficiência do detector, de poucos por cento em relação ao detector de Los Álamos.

Os detectores utilizados são da Reuter-stokes, modelo RS-P1-0820-204, com resolução de 5,1 a 6,0% e patamar de operação de 2 700 V a 3 700 V (inclinação de 0,005% em cada 100V). Esses detectores são todos ligados em paralelo e acoplados a um mesmo pré-amplificador.

### 3.4 - Sistema de contagem do detector fatia e do monitor

Um esquema simplificado de funcionamento desses siste

mas está na figura 3.4.

Em linhas gerais, os dois sistemas são muito parecidos e consistem em pré-amplificar os sinais gerados nos detectores que estão na sala do acelerador, transmiti-los para a sala de controle a aproximadamente 30 m de distância, onde eles são amplificados, passam por um discriminador que rejeita pulsos de altura menor do que o nível de discriminação e posteriormente são contados nos intervalos de tempo de contagem de nêutrons atrasados ou de nêutrons interrogadores, caso os pulsos sejam oriundos do detector fatia ou do monitor, respectivamente.

Devido à dificuldade existente em se conseguir chegar a alta tensão e obter um curto tempo de estabilização da mesma, da ordem de ms (ordem de grandeza dos tempos de irradiação e contagem), foi necessário deixar o detector fatia e o monitor com suas fontes de alta tensão ligadas durante todo o tempo de análise; conseqüentemente, o detector fatia e o monitor funcionam continuamente, sendo que os contadores que são ligados e desligados, ficando disponíveis para contar nos intervalos de tempo apropriados.

Os equipamentos eletrônicos utilizados em cada um dos sistemas de contagem são apresentados na figura 3.4.

A seguir, far-se-ão comentários sobre a operação de alguns desses equipamentos.

Durante a irradiação, ocorre uma taxa de detecção de nêutrons muito alta no detector fatia e, em consequência, o pré-amplificador fica saturado ao final da irradiação. Isto implica na necessidade de ter de se esperar um tempo relativamente grande para que ele volte a funcionar normalmente e possa ser iniciada a contagem dos nêutrons atrasados emitidos.

dos pela amostra analisada.

Foi diminuída a resistência de realimentação desse pré-amplificador (de 400 M $\Omega$  passou para 25 M $\Omega$ ), conseguindo-se após essa mudança aumentar um fator maior do que 6 a razão máxima de contagem que o pré-amplificador aceita sem ser saturado. Essa alteração provocou uma diminuição de um fator 2 no ganho do sinal de saída do pré-amplificador, diminuição esta facilmente compensada aumentando o ganho do amplificador. O aumento do ruído devido a essa modificação não foi significativo, em comparação com a altura de pulsos devido aos nêutrons.

As condições de operação dos equipamentos eletrônicos foram escolhidas a partir das experiências descritas no item 5.1.

Para maior estabilidade nas tensões de alimentação desses equipamentos e diminuição do ruído devido à falta de um bom "terra" no laboratório, todos os equipamentos foram alimentados a partir de uma mesma linha de tensão (tomada), tendo sido utilizado um estabilizador de tensão para os equipamentos que estão na sala de controle e outro para os que estão na sala do acelerador.

### 3.5 - Controle dos tempos de contagem dos nêutrons interrogadores e dos nêutrons atrasados

O "gate" do contador do sistema do monitor é acionado pelos mesmos pulsos que controlam o sistema de pulsação do acelerador Van de Graaff; assim sendo, esse contador opera em sincronismo com a produção de nêutrons interrogadores.

Para acionar o "gate" do contador do sistema do detec

tor fatia foi necessário projetar e construir um gerador de "gate" com as seguintes características:

- 19) é acionado por um pulso externo
- 29) tem um atraso ajustável do pulso de saída em relação ao pulso externo
- 39) a largura do pulso de saída é ajustável

Essas características são necessárias para que, os pulsos que acionam o contador, tenham a duração da ordem de 50 ms ( $t_b - t_c$ ) e sejam gerados com um atraso da ordem de 65 ms ( $t_c$ ) em relação ao início do pulso que controla o sistema de pulsação. Os nêutrons atrasados são contados durante o intervalo de tempo correspondente à largura desse pulso do gerador de "gate" (figura 2.4).

O intervalo de contagem dos dois contadores é definido por uma lógica "AND" na qual as duas entradas de "gate" são o tempo total, definido por um controlador de tempo (ORTEC 773), e os tempos de contagem definidos pelos pulsos de "gate" descritos acima.

### 3.6 - Amostras utilizadas

As análises foram realizadas com três tipos de amostras, a saber:

#### a. Discos de urânio metálico

Foram usados de 1 a 4 discos de 8,3 cm de diâmetro e de 1,0 cm a 1,4 cm de espessura. A massa desses discos é:

## Discos

número	massa
1	892,9 ± 0,05 g
2	1 109,3 ± 0,05 g
3	798,2 ± 0,05 g
4	1 127,1 ± 0,05 g

b. Pastilhas de  $U_3O_8$ 

Foram utilizadas pastilhas sinterizadas de ôxido de urânio natural, de forma cilíndrica com 1,2 cm de diâmetro e 1,7 cm de altura. O número de pastilhas usadas dependeu da análise realizada, chegando a usar o máximo de 328 dessas pastilhas.

A massa de cada uma dessas pastilhas é de aproximadamente 14,7 g. A massa de cada conjunto de pastilhas foi medida como um todo, de modo a sempre obter-se um erro de apenas 0,05 g na medida da massa de cada conjunto.

## c. Placas de "elemento combustível"

Foram utilizadas placas simulando as de elemento combustível de reator tipo "Material Testing Reactor" (MTR), como o reator IEA-R1. Elas são constituídas de um núcleo de liga urânio e alumínio (17,9 a 18,0% de U em peso) de área ativa de 383 cm<sup>2</sup>, envolto por duas outras placas de alumínio.

A massa do núcleo é de 60 ± 1 g e as dimensões da placa são 62,5 x 7,11 x 0,165 cm.

Estavam disponíveis 18 dessas placas de "elementos combustíveis".

As placas dos elementos combustíveis atualmente usa

das no IEA-R1 têm a região ativa de liga U-Al, com urânio enriquecido a 93% em  $^{235}\text{U}$ , diferindo nessa característica das placas utilizadas para a execução do presente trabalho (tem urânio natural).

#### IV. ANÁLISE DOS ERROS

A massa de urânio foi determinada pela equação (2.17) aqui reproduzida:

$$m_a = \frac{(C_a^* - CF)}{(C_p^* - CF)} m_p \quad (4.1)$$

O desvio-padrão nessa medida é obtido aplicando a fórmula de propagação de erro à equação (4.1) que consiste em derivá-la em relação a cada um dos parâmetros, obtendo-se:

$$\frac{\sigma^2(m_a)}{m_a^2} = \frac{\sigma^2(C_a^* - CF)}{(C_a^* - CF)^2} + \frac{\sigma^2(C_p^* - CF)}{(C_p^* - CF)^2} + \frac{\sigma^2(m_p)}{m_p^2} \quad (4.2)$$

Nessa equação os dois primeiros termos do segundo membro são erros devido a estatísticas de contagem enquanto o terceiro termo é o erro associado a determinação das massas.

Neste capítulo também é feita a análise do erro devido ao posicionamento da amostra e do erro associado a variações nos tempos de irradiação e contagem.

##### 4.1- Erro associado à estatísticas de contagem

Inicialmente será analisado o erro associado à estatística de contagem na amostra desconhecida, que corresponde ao primeiro termo do segundo membro da equação (4.2).

$$\text{Como } \sigma^2(C_a^* - CF) = \sigma^2(C_a^*) + \sigma^2(CF)$$

obtem-se:

$$\frac{\sigma^2(C_a^* - CF)}{(C_a^* - CF)^2} = \frac{\sigma^2(C_a^*) + \sigma^2(CF)}{(C_a^* - CF)^2} \quad (4.3)$$

Lembrando que todas as contagens feitas são contagens normalizadas, ou seja:

$$C_a^* = \frac{C_{DFa}^*}{C_{Ma}^*} \quad e \quad CF = \frac{C_{DFCF}}{C_{MCF}}$$

onde:

$C_{DFa}^*$  = contagem obtida no detector fatia, da irradiação da amostra

$C_{Ma}^*$  = contagem obtida no monitor nessa irradiação

$C_{DFCF}$  = contagem de fundo obtida no detector fatia, da irradiação sem a amostra

$C_{MCF}$  = contagem obtida no monitor nessa irradiação

Aplicando-se a equação de propagação de erro a essas relações, obtêm-se:

$$\frac{\sigma^2(C_a^*)}{C_a^{*2}} = \frac{\sigma^2(C_{DFa}^*)}{(C_{DFa}^*)^2} + \frac{\sigma^2(C_{Ma}^*)}{(C_{Ma}^*)^2} \quad (4.4)$$

$$\frac{\sigma^2(CF)}{(CF)^2} = \frac{\sigma^2(C_{DFCF})}{(C_{DFCF})^2} + \frac{\sigma^2(C_{MCF})}{(C_{MCF})^2} \quad (4.5)$$

Da substituição das equações (4.4) e (4.5) na equação (4.3), obtêm-se:



$$\frac{\sigma^2 (C_a^* - CF)}{(C_a^* - CF)^2} = \frac{\left[ \frac{\sigma^2 (C_{DFa}^*)}{(C_{DFa}^*)^2} + \frac{\sigma^2 (C_{Ma}^*)}{(C_{Ma}^*)^2} \right] C_a^{*2} + \left[ \frac{\sigma^2 (C_{DFCF})}{(C_{DFCF})^2} + \frac{\sigma^2 (C_{MCF})}{(C_{MCF})^2} \right] CF^2}{(C_a^* - CF)^2} \quad (4.6)$$

O desvio-padrão numa medida devido a flutuações estatísticas da desintegração radioativa é dado /32/ pela raiz quadrada do número de contagens, ou seja:

$$\sigma = \sqrt{C}$$

Baseado nesse fato, a equação (4.6) pode ser reescrita como:

$$\frac{\sigma^2 (C_a^* - CF)}{(C_a^* - CF)^2} = \frac{\left[ \frac{C_{DFa}^*}{(C_{DFa}^*)^2} + \frac{C_{Ma}^*}{(C_{Ma}^*)^2} \right] C_a^{*2} + \left[ \frac{C_{DFCF}}{(C_{DFCF})^2} + \frac{C_{MCF}}{(C_{MCF})^2} \right] CF^2}{(C_a^* - CF)^2}$$

Ou numa forma mais conveniente:

$$\frac{\sigma^2 (C_a^* - CF)}{(C_a^* - CF)^2} = \frac{\left( \frac{1}{C_{DFa}^*} + \frac{1}{C_{Ma}^*} \right) C_a^{*2} + \left( \frac{1}{C_{DFCF}} + \frac{1}{C_{MCF}} \right) CF^2}{(C_a^* - CF)^2} \quad (4.7)$$

Analogamente, o erro associado à estatística de contagem na amostra padrão (índice p) é dado por:

$$\frac{\sigma^2 (C_p^* - CF)}{(C_p^* - CF)^2} = \frac{\left( \frac{1}{C_{DFp}^*} + \frac{1}{C_{Mp}^*} \right) C_p^{*2} + \left( \frac{1}{C_{DFCF}} + \frac{1}{C_{MCF}} \right) CF^2}{(C_p^* - CF)^2} \quad (4.8)$$

Nas condições utilizadas, com 1000 segundos de tempo to

tal de medida, os erros associados à estatística de contagem na medida de 11 placas de combustível utilizando como massa padrão 17 dessas placas foram:

$$\frac{\sigma^2 (C_a^* - CF)}{(C_a^* - CF)^2} = 6,82 \times 10^{-4}$$

$$\frac{\sigma^2 (C_p^* - CF)}{(C_p^* - CF)^2} = 4,05 \times 10^{-4}$$

Que somados dão um erro total associado à estatística de contagem de 3,3%.

#### 4.2 - Erro associado à determinação das massas

As amostras com urânio utilizadas (pastilhas de óxido de urânio, discos de urânio metálico e placas de combustível da liga urânio-alumínio) foram confeccionadas pela Coordenação de Metalurgia Nuclear do IPEN.

As massas de urânio de cada placa de combustível foram fornecidas com uma precisão de 1,7%, valor esse que foi adotado como o erro na determinação da massa nas medidas feitas com essas placas.

Admitiu-se que os discos de urânio metálico e as pastilhas de óxido de urânio sejam constituídas apenas de urânio e de oxigênio e urânio respectivamente, uma vez que foram fabricadas com urânio e óxido de urânio de pureza nuclear usada na fabricação de combustível nuclear. Assim sendo, a massa de urânio no disco de urânio metálico é a massa do disco e, nas pastilhas de óxido de urânio pode ser calculada a partir da massa total da pastilha.

As massas foram determinadas com uma balança Mettler, modelo P11N que tem sensibilidade de décimo de grama. O erro adotado nessas medidas foi a metade da menor divisão, ou seja, 0,05 g. Para o caso em que foi utilizada a menor quantidade de urânio (pastilhas de óxido de urânio num total de 771,0 g) esse erro na medida da massa acarretou um erro de 0,0065% que é desprezível frente ao erro na estatística de contagem.

#### 4.3 - Erro relacionado com o posicionamento da amostra

Para comparar a contagem normalizada na amostra ( $C_a$ ) com a contagem normalizada no padrão, é necessário que ambas (amostra e padrão) sejam posicionadas no mesmo lugar em relação ao alvo do acelerador e ao detector tipo fatia.

Diferentes posicionamentos da amostra em relação ao alvo e ao detector fatia implicam em diferentes contagens de nêutrons atrasados, devido à variação na intensidade de nêutrons interrogadores que incidem na amostra e à variação na eficiência total ( $E_{DF}$ ) do detector fatia (variações no fator geométrico).

Foi realizado um estudo experimental para escolher a posição da amostra a ser analisada (veja item 5.3), tendo-se chegado às seguintes conclusões:

a. O erro relacionado com o posicionamento da amostra, no caso das análises com os discos de urânio metálico e das pastilhas de óxido de urânio, foi de 0,1%. Medidas experimentais confirmaram essa previsão (veja item 5.4.3).

b. O erro relacionado ao posicionamento das placas de combus

tível foi de 1,2%.

4.4 - Erro devido a não simultaneidade do início do tempo de análise com o início de um pulso de nêutrons interrogadores

O início do tempo de análise não foi sincronizado com os pulsos de nêutrons interrogadores. Como o tempo de análise não corresponde a um número inteiro de ciclos de irradiação e contagem no total da análise, pode-se ter contado um pulso de nêutrons ou um intervalo de contagem de nêutrons atrasados a mais ou a menos, quando comparada a análise da amostra desconhecida com a amostra padrão. Devido a esse fato, considera-se que possam ter sido contados dois ciclos a mais quando se comparam as duas análises (da amostra e da padrão), o que corresponde a um erro no resultado das análises de, no máximo, 0,12% (para 200 segundos de tempo de análise, que corresponde a 1666 ciclos).

4.5 - Erro relacionado com flutuações nos tempos de irradiação e contagem

Verificou-se, utilizando um osciloscópio, pequenas oscilações no início da subida e final da descida tanto do pulso de nêutrons interrogadores como do pulso de gatilhamento do contador associado ao detector fatia. Não foi possível observar se essas oscilações eram deslocamentos dos pulsos como um todo ou oscilação no tempo de duração deles.

Em termos de erro no resultado da análise, o pior caso é o de estar havendo oscilação simultânea nesses dois pulsos, implicando, nesse caso, num erro de, no máximo, 0,67%

no resultado da análise que tenha apenas um ciclo de irradiação e contagem.

O comportamento dessas oscilações durante os vários ciclos é difícil de ser determinado. Como o número de ciclos de cada análise é grande e as oscilações ocorrem de forma aleatória, o erro associado a essas oscilações para vários ciclos tenderá a se anular. Assim sendo, pode-se afirmar que o erro devido as flutuações nos tempos de irradiação e contagem é muito menor do que 0,67%.

#### 4.6 - Erro total na determinação da massa

O erro total no resultado da análise é dado pela raiz quadrada da soma dos quadrados do erro associado a cada parâmetro da análise, os quais são apresentados na Tabela 4.1.

O erro total no resultado da análise decresce com o aumento da contagem de nêutrons atrasados, conforme pode ser visto nas equações (4.7) e (4.8), ou seja, decresce com o aumento da massa de urânio presente na amostra, com o aumento da produção de nêutrons interrogadores e com o aumento do tempo de contagem (esse erro é inversamente proporcional à raiz quadrada do tempo total de análise). Esse erro também é sempre maior do que o erro associado à determinação da massa padrão, conforme pode ser visto na equação (4.2).

Os erros associados aos parâmetros da análise, apresentados na Tabela 4.1, foram calculados para as análises em que eles eram maiores; assim sendo, nas outras análises, o erro total é sempre menor do que o aqui apresentado.

Através de medidas experimentais, verificamos que o erro total na determinação da massa de urânio em 11 placas de combustível foi de 3,9%. O erro percentual nas análises com

TABELA 4.1 - Fonte de erro na determinação da massa de urânio

Parâmetro	erro percentual	
	11 placas de combustível	4 discos de urânio
estatística de contagem	3,3	1,6
determinação da massa padrão	1,7	0,0013
posicionamento da amostra	1,2	0,1
não simultaneidade do início do tempo de análise com o início do pulso de nêutrons interrogadores	0,12	0,12
flutuação nos tempos de irradiação e contagem	<< 0,67	<< 0,67
Erro total na análise (raiz quadrada da soma dos quadrados)	3,9	1,6

discos de urânio metálico foi de 1,6% e, com pastilhas de ôxido de urânio, o erro foi de 1,7%.

Nas análises com placas de combustível, o erro associado aos três últimos parâmetros da Tabela 4.1, por serem pequenos, podem ser desprezados devido a contribuírem pouco para o erro total. Em todas as outras análises, uma vez que o erro na determinação das massas é desprezível (0,0065%), o erro total é basicamente o erro associado à estatísticas de contagem visto que o erro associado a todos os outros parâmetros é desprezível frente a este.

## V. MEDIDAS E ANÁLISE DOS DADOS

A seguir serão discutidas as medidas mais significativas e mais representativas dentre as realizadas na execução deste trabalho.

### 5.1 - Calibração dos equipamentos utilizados

Essa calibração envolve o ajuste dos equipamentos eletrônicos para obter a maior discriminação entre os pulsos devido aos nêutrons e os pulsos devido aos raios gama e ao ruído.

O equipamento utilizado está descrito no capítulo III.

#### 5.1.1 - Calibração do sistema de contagem de nêutrons atrasados

Todos os 13 detectores proporcionais de  $^3\text{He}$  do detector fatia foram alimentados por uma única fonte de tensão, com a tensão de 3 400 V, que é recomendada pelo fabricante.

Com uma fonte de nêutrons (Am-Be, 1 c) posicionada a 25 cm do centro da face do detector fatia e usando um analisador multicanal acoplado à saída do amplificador (vide figura 3.3), obteve-se a curva da razão de contagem em função da altura de pulso mostrada na figura 5.1.

Retirando-se a fonte de nêutrons e colocando, no mesmo lugar, simultaneamente duas fontes de raios gama, uma de  $^{60}\text{Co}$  ( $\approx 2,5 \times 10^5$  gamas/s) e outra de  $^{137}\text{Cs}$  ( $\approx 40 \times 10^5$  gamas/s) obtém-se o espectro de altura de pulsos devido a esses gamas, o qual, para melhor visualização, está mostrado na figura 5.1 já citada.



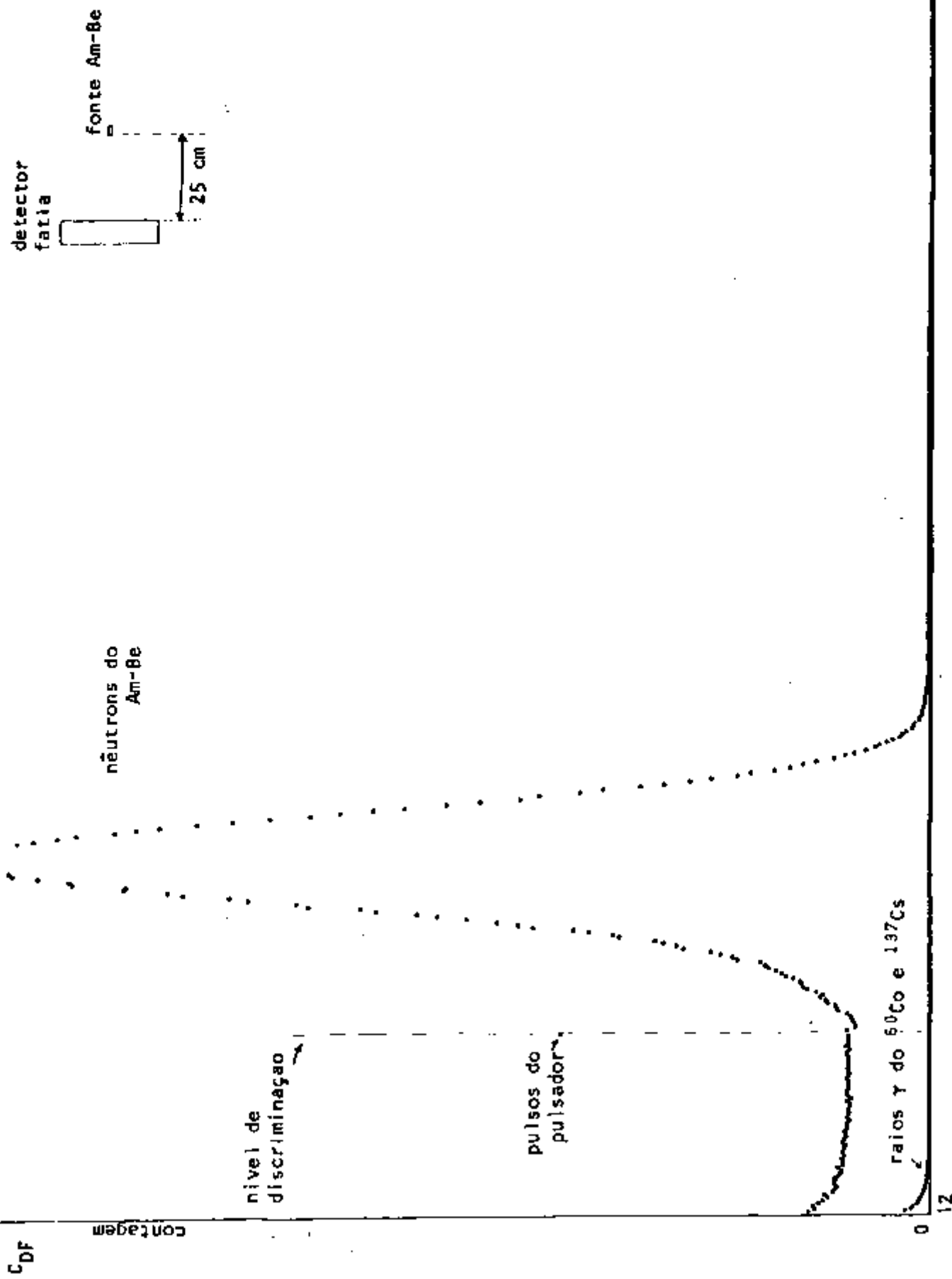


FIGURA 5.1 - Espectro de altura de pulso do detector fatia  
 (tempo de contagem = 5 minutos)

A atividade dessas fontes de raios gama é da ordem de grandeza da atividade gama dos produtos de fissão formados ao se irradiar a amostra.

É importante que o sistema de contagem seja capaz de distinguir entre contagens devido aos raios gama, emitidos pelos produtos de fissão do urânio presente na amostra, e as de nêutrons, para que se tenha contagens devido principalmente aos nêutrons atrasados emitidos pela amostra analisada.

Os nêutrons provocam maior ionização no gás  $^3\text{He}$  e, conseqüentemente, produzem maiores pulsos do que os raios gama.

Usando esse fato, os pulsos devido aos nêutrons foram contados e os devido aos raios gama foram rejeitados, através de discriminação de altura de pulso.

Com o uso de um gerador de pulsos (Canberra - modelo 2010) acoplado à entrada do amplificador foram gerados pulsos com altura fixa maior do que a dos gamas e menor do que a dos nêutrons. Esses pulsos estão apresentados na figura 5.1 e foram utilizados para ajustar o nível de discriminação do analisador monocanal (ORTEC modelo 455).

As fontes de raios gama foram colocadas aproximadamente no mesmo lugar onde é colocada a amostra a ser irradiada. Para o nível de discriminação utilizado não foi possível distinguir as contagens devido aos gamas emitidos por essas fontes das contagens devido à radiação de fundo, donde concluiu-se que a contagem devido aos raios gama emitidos pelos produtos de fissão foi insignificante.

#### 5.1.2 - Escolha da alta tensão aplicada ao monitor

Na fotomultiplicadora acoplada ao cintilador NE-102, quanto maior a alta tensão aplicada maior é o ganho, o que im

plica em maior corrente e conseqüente maior desgaste dos di nodos. No caso de alto fluxo de partículas incidentes pode haver variações no ganho e, portanto, instabilidade no sistema de contagem do monitor. Assim sendo, é aconselhável, para o presente trabalho, reduzir a alta tensão para conseguir aumentar a estabilidade do sistema.

Foram tirados espectros de altura de pulso devido aos nêutrons da fonte Am-Be colocada a 25 cm do NE-102 para vários valores de alta tensão (700 V, 800 V, 900 V, 1000 V, 1100V e 1200 V) aplicada à fotomultiplicadora, para estudar o comportamento da mesma.

Dos espectros concluiu-se que entre 800 V e 1200 V não há variação sensível no comportamento da fotomultiplicadora, sendo que a perda de ganho na fotomultiplicadora foi perfeitamente compensada pelo aumento do ganho do amplificador, mas em 700 V já foi possível observar variação na forma do espectro obtido.

Para determinar dentre as tensões possíveis qual a mais indicada para o presente trabalho, mediu-se, para cada tensão, a relação (sinal n/sinal  $\gamma$ ) entre os pulsos devido aos nêutrons e os pulsos devido aos raios gama, tendo em vista a discriminação entre pulsos devido a essas duas radiações. Para tanto, foram feitas medidas com a fonte de nêutrons do Am-Be a 25 cm do cintilador NE-102 e medidas com as fontes de gamas  $^{60}\text{Co}$  e  $^{137}\text{Cs}$  encostadas na face do NE-102. Dessas medidas verificou-se que a melhor tensão a ser aplicada é 900 V pois possibilita a maior relação sinal n/sinal  $\gamma$  (essa relação variou de 2,3 a 5,6).

Foi escolhida a aplicação da tensão de 900 V à fotomultiplicadora do monitor, para as análises realizadas no decorrer desse trabalho.

### 5.1.3 - Calibração do sistema de contagem no monitor

Foi utilizado o analisador multicanal e o gerador de pulsos citados no item anterior.

Com a fonte de nêutrons Am-Be a 40 cm da face do cintilador NE-102 (posição indicada na figura 3.1) foi obtido o espectro de altura de pulso do monitor para os nêutrons dessa fonte, apresentado na figura 5.2, para um tempo de contagem de 11 minutos.

Afastando a fonte Am-Be, à aproximadamente 30 m do detector, e ligando o acelerador Van de Graaff por 1 minuto de tempo de contagem, obteve-se o espectro de altura de pulso correspondente, também apresentado na figura 5.2.

Os pulsos gerados pelo pulsador e utilizados para ajustar o nível de discriminação do analisador monocanal associado ao monitor (vide figura 3.3) estão indicados na figura 5.2.

Com as fontes  $^{60}\text{Co}$  e  $^{137}\text{Cs}$  encostadas na face do cintilador NE-102, foi obtido o espectro de altura de pulso do monitor para os raios gama dessas fontes, também apresentado na figura 5.2, para um tempo de contagem de 11 minutos. Como pode ser visto nessa figura, os pulsos devido aos raios gama dessas fontes são de altura menor do que o nível de discriminação adotado.

A razão de contagem, no monitor, devido aos raios gama emitidos pelos produtos de fissão da amostra, colocada na posição de análise, é da ordem de  $10^5$  vezes menor do que a obtida na medida citada acima, na qual as fontes de raios gama foram posicionadas encostadas na face do NE-102. Esse fato deve-se à diferença de ângulo sólido subtendido pelo monitor, entre a amostra estar em uma dessas duas posições.

Como para o nível de discriminação adotado não foi pos

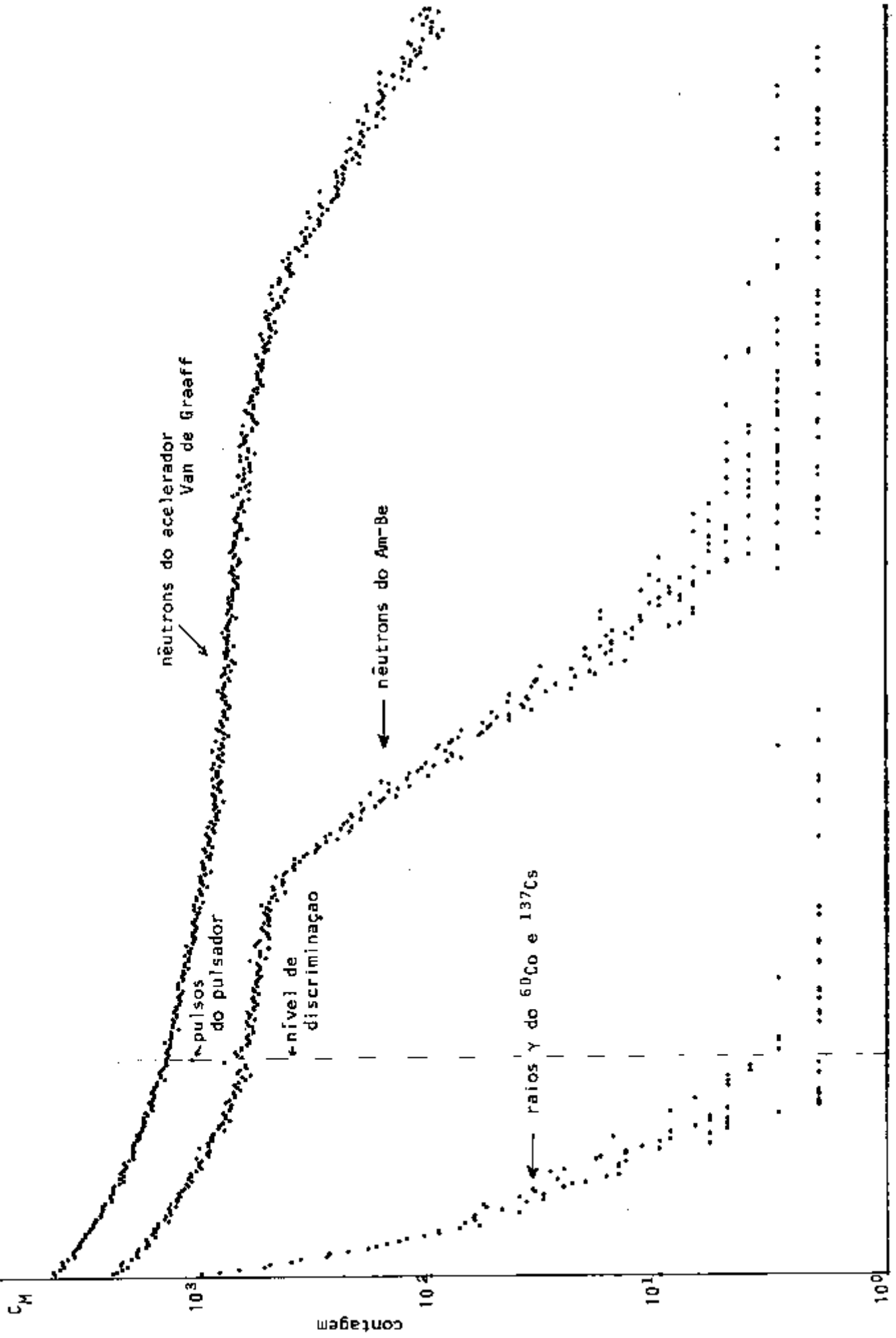


FIGURA 5.2 - Espectro de altura de pulso do monitor.

sível distinguir a contagem devido aos raios gama da proveniente da radiação de fundo, concluiu-se também que a contagem no monitor devido aos raios gama produzidos por fissão foi insignificante.

Os nêutrons de 14 MeV produzem, no cintilador NE-102, pulsos de altura maior do que os devido aos nêutrons emitidos pela fonte Am-Be (vide figura 5.2); assim sendo, pode-se utilizar um nível de discriminação alto e, para condições em que o sistema estiver contando de forma estável os nêutrons provenientes da fonte Am-Be, o mesmo acontecerá com a contagem dos nêutrons interrogadores.

#### 5.1.4 - Testes de verificação do funcionamento dos dois sistemas de contagem

Para verificar a consistência nas medidas feitas com os dois sistemas de contagem, o teste de  $\chi^2 / 36 /$  foi aplicado a uma série de 50 medidas feitas para cada um desses sistemas. Os resultados da aplicação desse teste são:

$P(\chi^2, \nu) = 0,60$  - para o sistema de contagem do detector

$P(\chi^2, \nu) = 0,78$  - para o sistema de contagem do cintilador NE-102

Esses valores indicam que os dois sistemas de contagem estão funcionando bem.

Para verificar a estabilidade da contagem nos dois sistemas, foi fixada uma posição na qual rotineiramente era colocada a fonte de nêutrons Am-Be e feitas medidas de teste com os dois sistemas. Verificou-se que a razão de contagem

era constante dentro de um erro de 1% (erro associado à estatística de contagem).

#### 5.1.5 - Estudo do tempo morto dos dois sistemas de contagem

O monitor e o detector fatia foram testados para efeito de tempo morto. Para tanto, eles foram submetidos a razões de contagem menores, iguais e maiores do que a razão de contagem a que eles foram submetidos durante as análises.

Colocando, sequencialmente, de 1 a 4 fontes de Am-Be (1 curie cada), na mesma distância do centro da face do monitor (figura 5.3), foram obtidas as respectivas razões de contagem no monitor. Esses dados estão apresentados na figura 5.3. Nessa figura, está indicado um erro de  $0,2 \times 10^6$  nêutrons/s no valor da atividade relativa devido à uma incerteza de 10% no valor da intensidade das fontes ( $2,4 \times 10^6$  nêutrons/s a  $2,6 \times 10^6$  nêutrons/s).

Da análise dos dados apresentados na figura 5.3, conclui-se que, dentro das razões de contagem utilizadas, o efeito de tempo morto no monitor é insignificante.

Foram colocadas de 1 a 4 fontes Am-Be de 100 milicurie ( $3,1 \times 10^5$  n/s) a 60 cm do centro da face do detector fatia e obtidas as respectivas contagens que são apresentadas na figura 5.4.

Da análise dos dados apresentados na figura 5.4, conclui-se que, também com o detector fatia, o efeito de tempo morto é insignificante nas razões de contagem utilizadas.

#### 5.2 - Medida das características do sistema pulsado do acelerador Van de Graaff conjuntamente com os sistemas de contagem

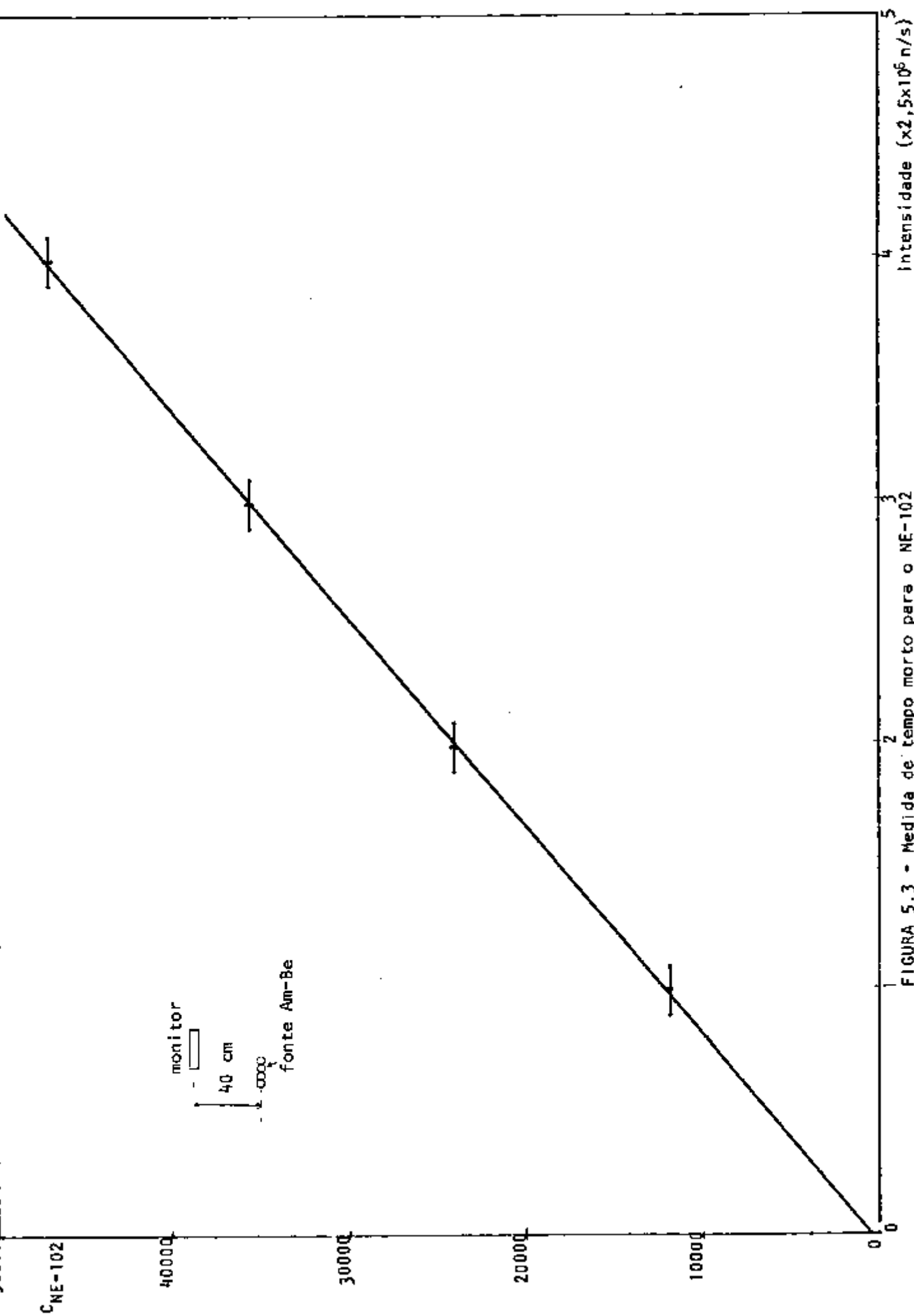


FIGURA 5.3 - Medida de tempo morto para o NE-102



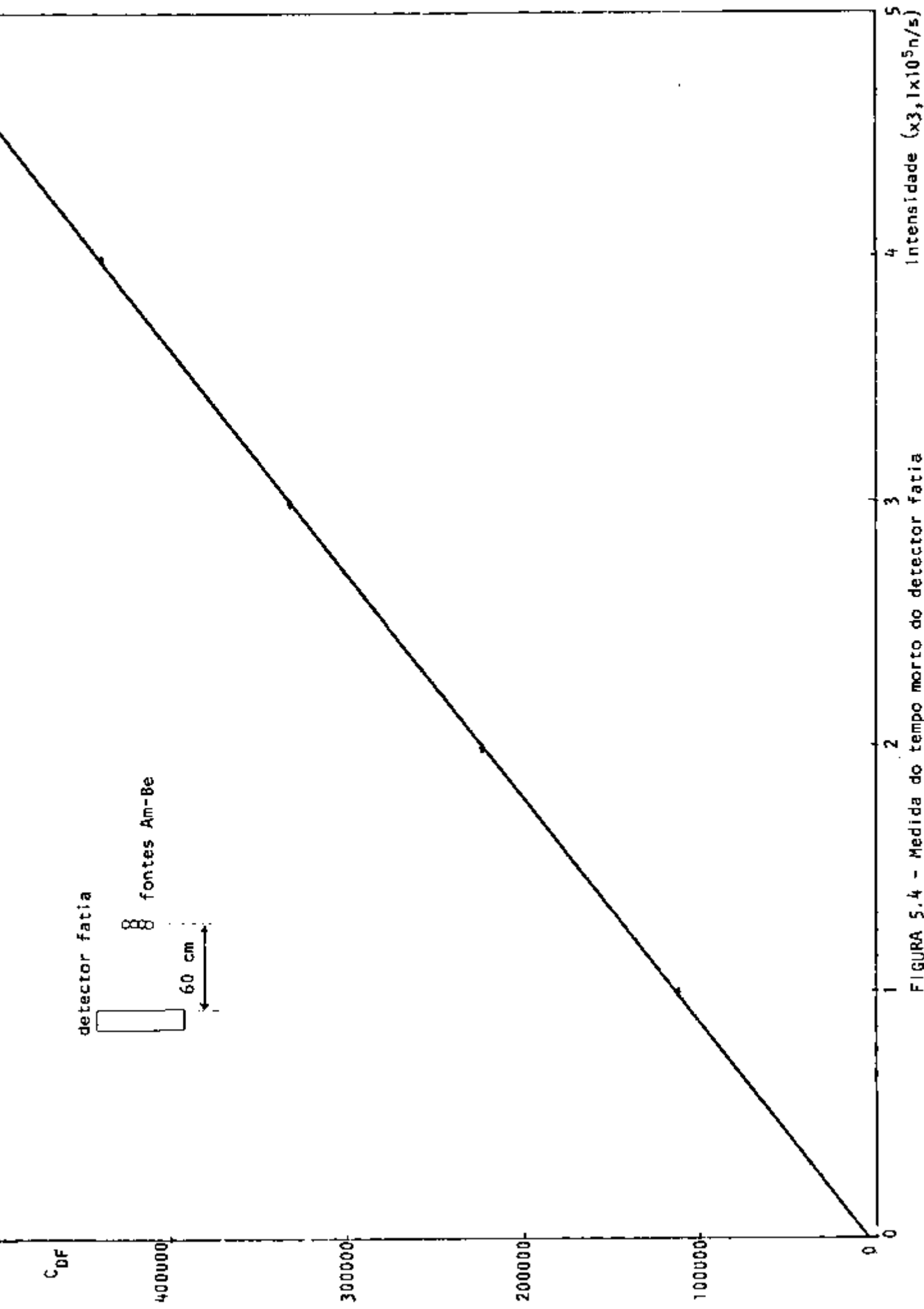


FIGURA 5.4 - Medida do tempo morto do detector fatia

Com os sistemas de contagem e o acelerador Van de Graaff, nas condições em que foram utilizados durante as análises realizadas, foram feitas as seguintes medidas:

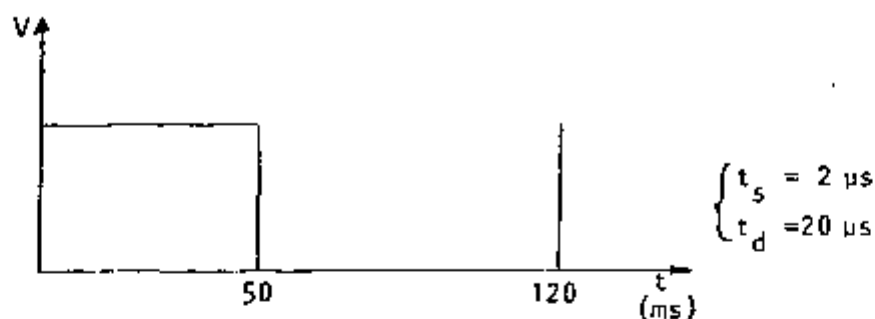
- a. Características do pulso que controla o sistema de pulsação do acelerador
- b. Pulso do detector de ionização da fonte de íons do acelerador
- c. Pulso da corrente no alvo do acelerador
- d. Pulso de gatilhamento para o contador do sistema do detector fatia
- e. Perfil no tempo das contagens com o detector fatia
- f. Perfil no tempo das contagens com o monitor

Essas medidas foram feitas com o auxílio de um osciloscópio Tektronix - modelo 5111 - e do analisador multicanal operando em "multi-scaler". Para possibilitar comparações entre características obtidas nessas medidas, esses dois aparelhos eram gatilhados pelo pulso que controla o sistema de pulsação do acelerador.

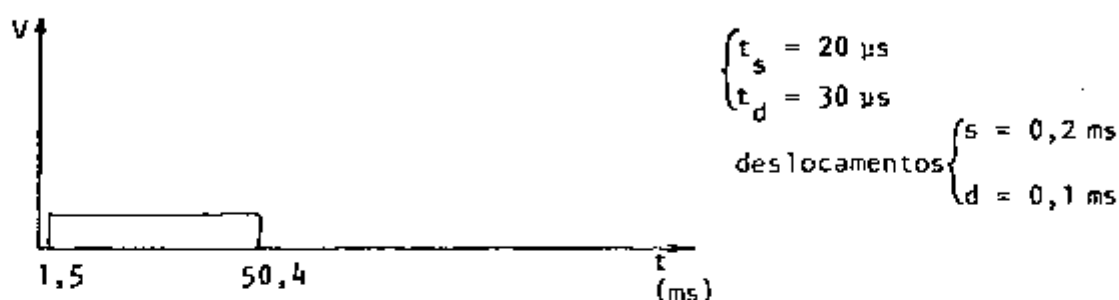
Os resultados das medidas a, b, d, f são apresentados de forma esquemática na figura 5.5.

A medida c apresentou as mesmas características que a medida b. A medida e coincide com a d uma vez que o contador do sistema do detector fatia é controlado pelo pulso da medida d.

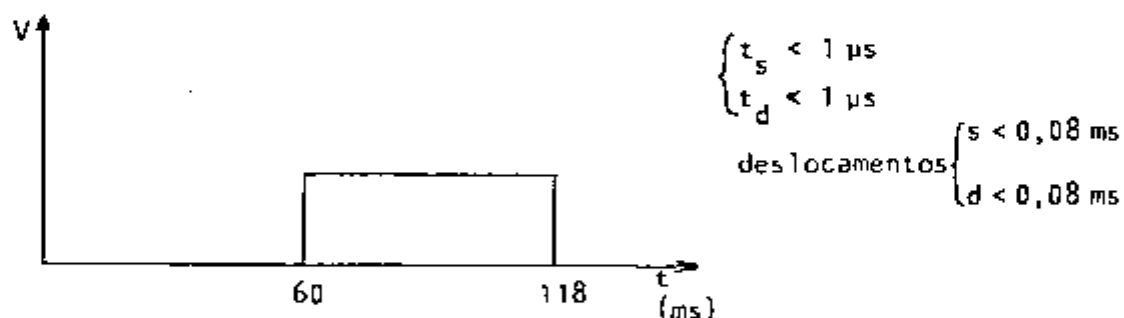
Os deslocamentos mostrados na figura 5.5 são os deslocamentos observados no início da subida (s) ou final da descida (d) dos pulsos, medidos com o osciloscópio citado. Devido à razão de contagem no monitor não ser alta o suficiente para que a medida f pudesse ser realizada utilizando o os



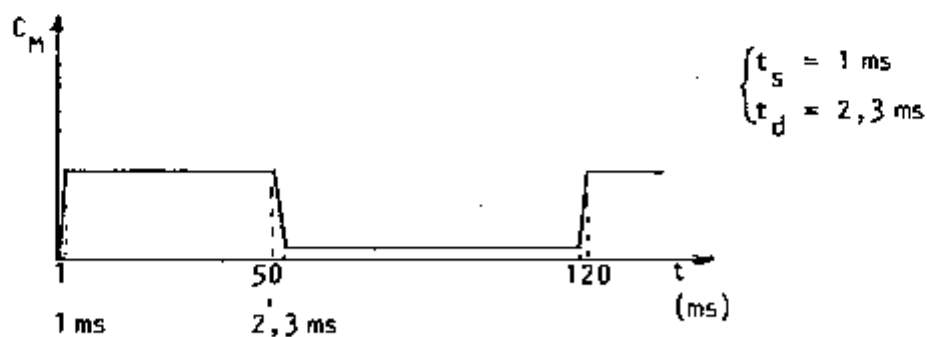
a. Pulso que controla o sistema de pulsação do acelerador



b. Pulso do detector de ionização da fonte de íons do acelerador



c. Pulso de gatilhamento para o contador do sistema do detector fatia



d. Perfil no tempo das contagens com o monitor

FIGURA 5.5 - Características do sistema pulsado do acelerador Van de Graaff conjuntamente com os sistemas de contagem

$t_s$  = tempo de subida                       $t_d$  = tempo de descida  
 $s$  = deslocamentos no início da subida       $d$  = deslocamentos no final da descida

ciloscópio, ela teve que ser feita usando o analisador multi canal; assim sendo, não foi possível determinar os deslocamentos nessa medida.

Foram feitos testes para estudar o tempo de recuperação do pré-amplificador do sistema de contagem do detector fatia após os pulsos de nêutrons interrogadores. Nesses testes, foram injetados na entrada de teste desse pré-amplificador pulsos gerados pelo pulsador e medidos os perfis no tempo das contagens com o detector fatia, para várias intensidades da fonte  ${}^3\text{H}(\text{d},\text{n}){}^4\text{He}$ .

Constatou-se que o pré-amplificador ficava saturado por um tempo relativamente longo ao final da irradiação apesar da modificação feita para possibilitar operá-lo com razão de contagem mais alta (veja ítem 3.4). As medidas realizadas no decorrer desse trabalho somente puderam ser feitas com a intensidade de, no máximo, aproximadamente  $10^9$  n/s ( $I_{\text{alvo}} = 10 \mu\text{A}$ ; tensão de aceleração de 200 kV), que corresponde a 20% da intensidade média máxima da fonte  ${}^3\text{H}(\text{d},\text{n}){}^4\text{He}$ .

Para as intensidades de nêutrons interrogadores em que não houve saturação do pré-amplificador, não foi possível observar variação sensível na posição de início da subida ou final da descida, bem como nos tempos de subida e descida da razão de contagem.

### 5.3 - Escolha da posição da amostra a ser analisada

A amostra a ser analisada é colocada entre o alvo do acelerador Van de Graaff e o centro do detector fatia (conforme figura 3.2). O posicionamento da amostra é definido pela distância (X) do alvo ao detector e da distância (Y) da amostra ao alvo.

A escolha do melhor par (X,Y) é feita baseada na de terminação da posição em que o erro devido à estatística de contagem somado ao erro devido ao posicionamento fôr mínimo. Para tanto, uma mesma análise foi repetida várias vezes mantendo-se a distância X e variando a distância Y; isto para 3 distâncias X (120, 60 e 40 cm) .

Para estas medidas foi usada uma quantidade de urânio relativamente grande (3 927,5 g) com o objetivo de diminuir o erro associado à estatística de contagem e reduzir o tempo de análise. O tempo de análise de 500 até 1000 s, para análise de 700 g, foi reduzido para 200 s .

O erro associado à estatística de contagem pode ser reduzido, desde que seja aumentado o tempo total de análise. O erro devido ao posicionamento tem um valor mínimo, determinado pelas características do arranjo experimental montado e, portanto, será uma das possíveis fontes de erro a fixar o limite mínimo de erro na análise, para o arranjo utilizado. Assim sendo, o erro devido ao posicionamento tem caráter de maior importância nos casos em que esses erros são da mesma ordem de grandeza.

As distâncias X e Y são medidas com régua, sendo admitido que sejam cometidos erros de 2 mm na determinação dessas distâncias. O erro devido ao posicionamento foi estimado a partir dos dados obtidos, calculando a variação percentual nos resultados da análise, considerando-se essa variação de 2 mm no posicionamento da amostra.

Das medidas realizadas, conclui-se que não é interessante trabalhar com distâncias X grandes, pois estas acarretam grande erro devido à estatística de contagem. Para X igual a 120 cm, o erro associado à estatística de contagem é da ordem de 3,4% para as posições em que o erro devido ao po

sicionamento é pequeno (da ordem de 0,1%).

O resultado das medidas X igual a 40 ou 60 cm estão apresentados na figura 5.6, em função da distância Y.

Para a distância X igual a 40 cm, o menor erro observado, devido ao posicionamento, foi da ordem de 0,5% para uma posição em que o erro devido à estatística de contagem é de 0,86%, sendo que esses erros somados implicam num erro de 1% no resultado da análise.

Para a distância X igual a 60 cm, os menores erros observados, devido ao posicionamento, foram da ordem de 0,1% para posições em que o erro associado à estatística de contagem era da ordem de 1,3%. Juntos eles provocam um erro de 1,3% no resultado da amostra.

A distância X igual a 60 cm foi escolhida para as análises a serem realizadas, uma vez que, aumentando o tempo de análise, essa é a distância que implicará em menor erro no resultado da análise, para os equipamentos utilizados.

Foi realizada nova série de análises para X igual a 60 cm, com mais valores de Y na faixa de 27 a 47 cm, utilizando maior intensidade de nêutrons interrogadores e com a distância entre o monitor e o alvo aumentada de 2,5 m para 5,0 m. Na figura 5.7 são apresentados os resultados dessas medidas.

Um polinômio de 4a. ordem foi ajustado, por mínimos quadrados, aos pontos experimentais, obtendo-se:

$$C_a = 1,939 - 0,1845 y + 0,00767 y^2 - 0,000144 y^3 + \\ + 0,000001 y^4$$

Utilizando esse polinômio ajustado, foram calculados os erros devido ao posicionamento (conforme já citado no iní

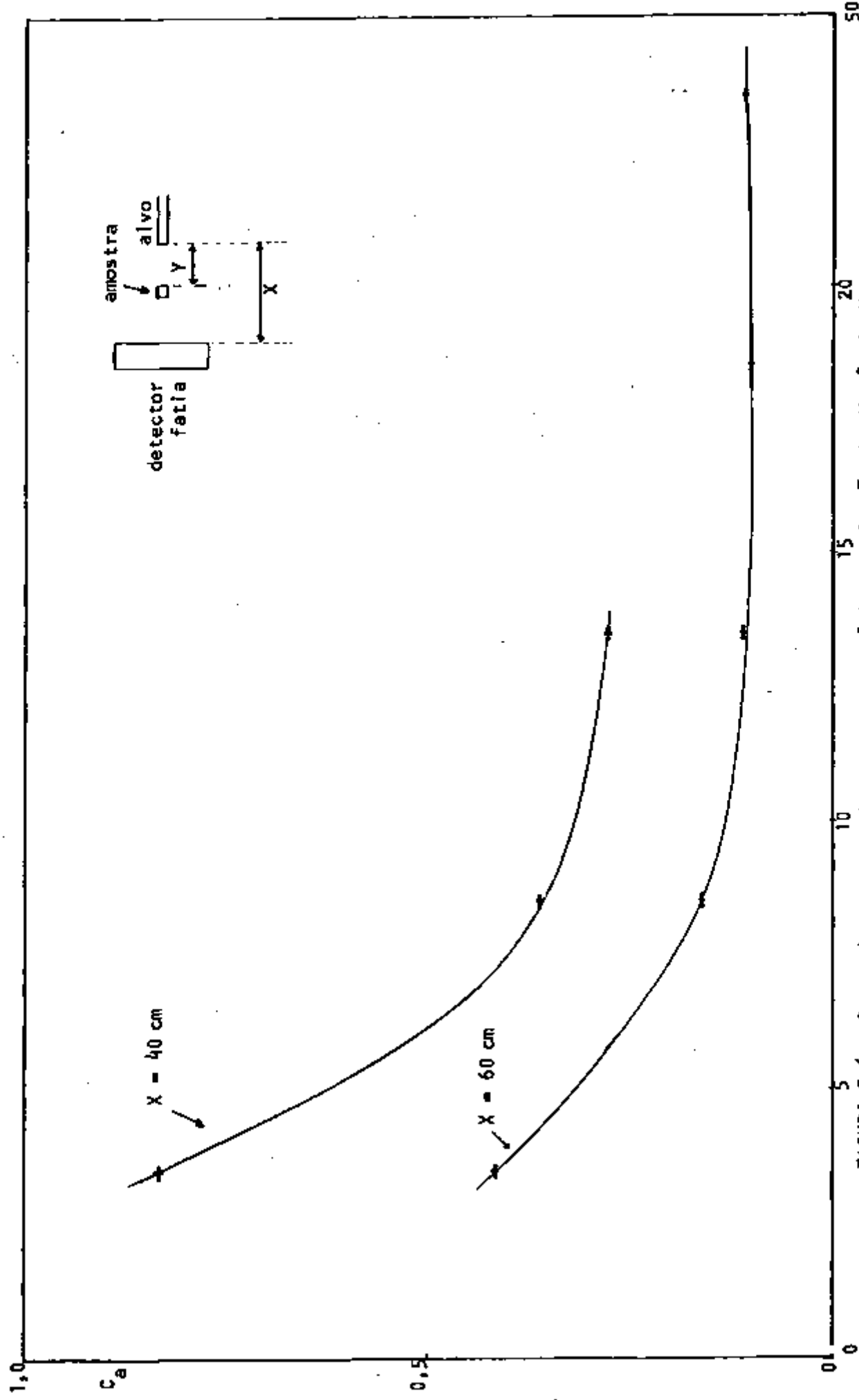


FIGURA 5.6 - Curva de resposta do sistema de análise em função da distância  $Y$ , para  $X = 40$  cm e  $X = 60$  cm

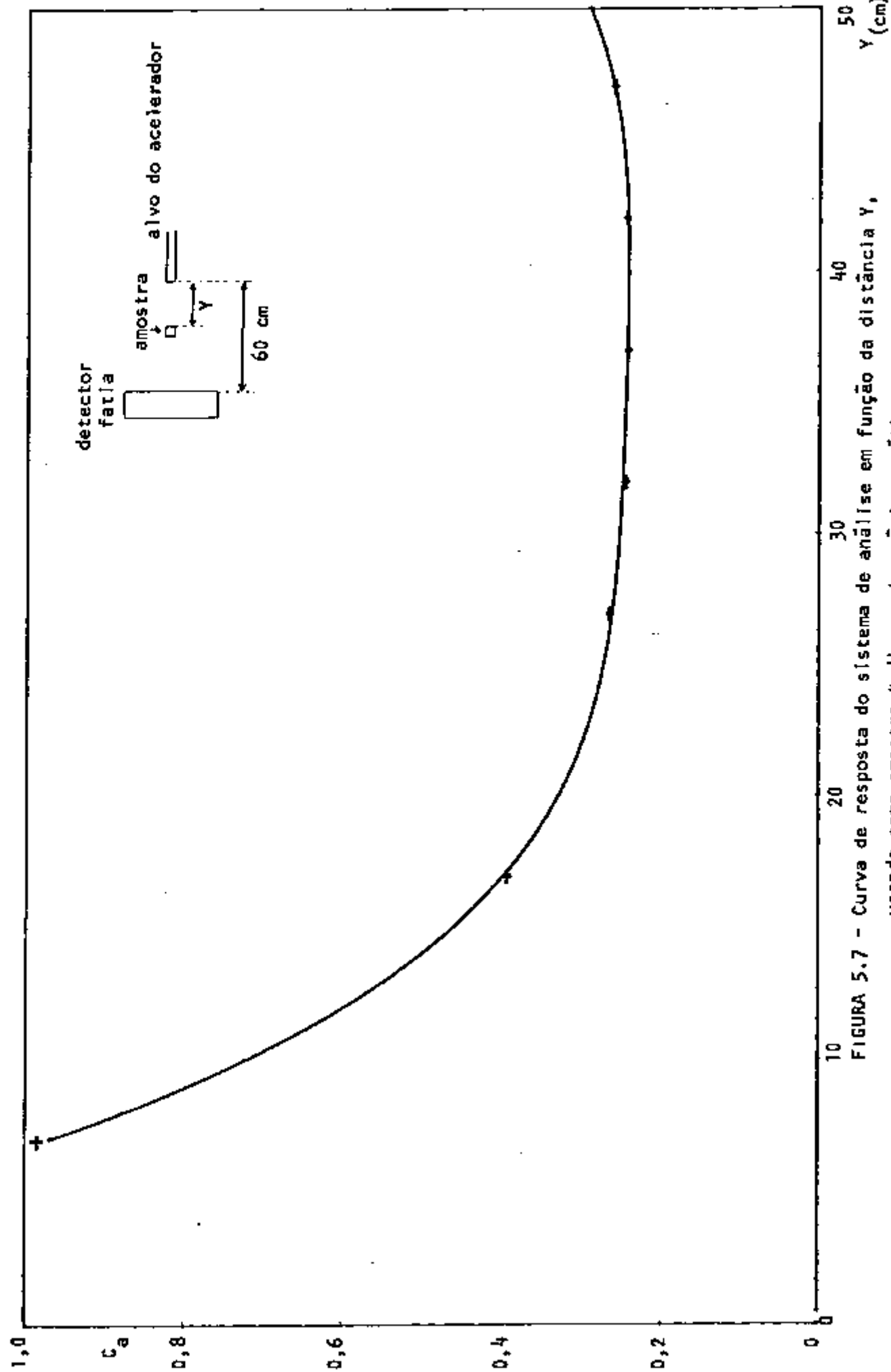


FIGURA 5.7 - Curva de resposta do sistema de análise em função da distância  $Y$ , usando como amostra 4 discos de urânio metálico



cio do item 5.3). Com os valores calculados, foi traçada a curva de erro devido ao posicionamento em função da distância  $Y$ , apresentada na figura 5.8.

Para os dados obtidos nas análises, apresentados na figura 5.7, foram calculados os erros percentuais associados à estatística de contagem, apresentados na figura 5.8, juntamente com a curva ajustada a esses valores por mínimo quadrado.

Da análise da figura 5.8, conclui-se que o melhor valor para a distância  $Y$  é de 37 cm, para a qual o erro devido ao posicionamento foi da ordem de 0,1%. Dessa forma, obteve-se o par  $(X,Y)$  utilizado nas análises, ou seja, o par (60 cm, 37 cm).

No presente trabalho, foram feitas análises com "placas de combustível" (liga U-Al) (vide item 3.6), que são amostras que além de apresentarem o urânio mais disperso, contêm menor quantidade de urânio. Isto implica em mudança na forma da curva da figura 5.7, bem como maior erro inerente associado à estatística de contagem.

Os dados obtidos para análises feitas com 17 placas de combustível como amostra, mantendo a distância  $X$  igual a 60 cm e variando a distância  $Y$ , estão apresentados na figura 5.9, juntamente com a curva ajustada a esses dados por mínimo quadrado. O tempo total de cada análise foi de 1 000 s.

Como nas análises com as placas de combustível a estatística de contagem é pobre, essas análises foram realizadas na posição (60 cm ; 12,5 cm), na qual o erro devido ao posicionamento é grande (1,3%), mas possibilita um erro associado à estatística de contagem da ordem de 2,6%.

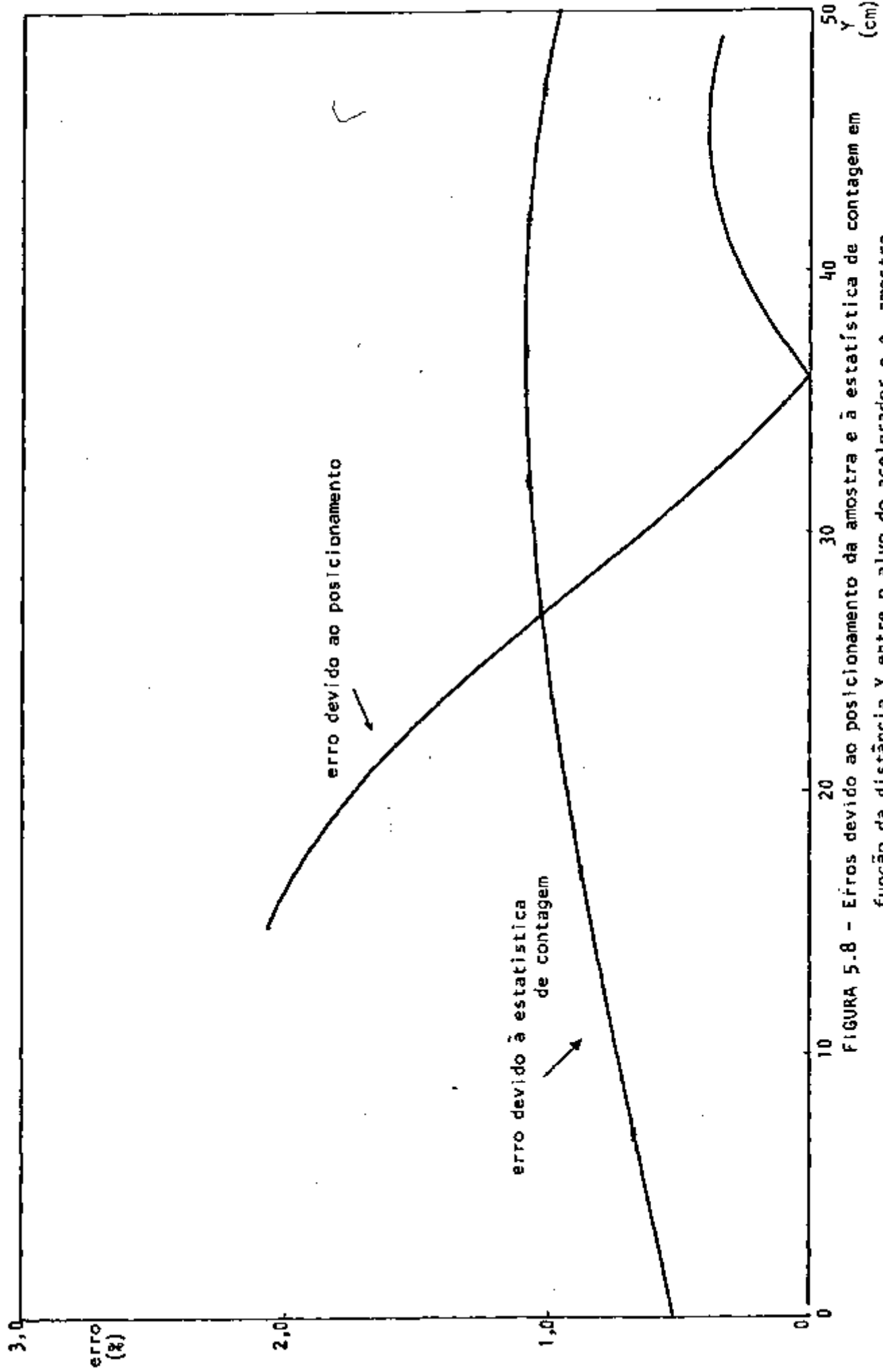


FIGURA 5.8 - Erros devido ao posicionamento da amostra e à estatística de contagem em função da distância Y entre o alvo do acelerador e a amostra

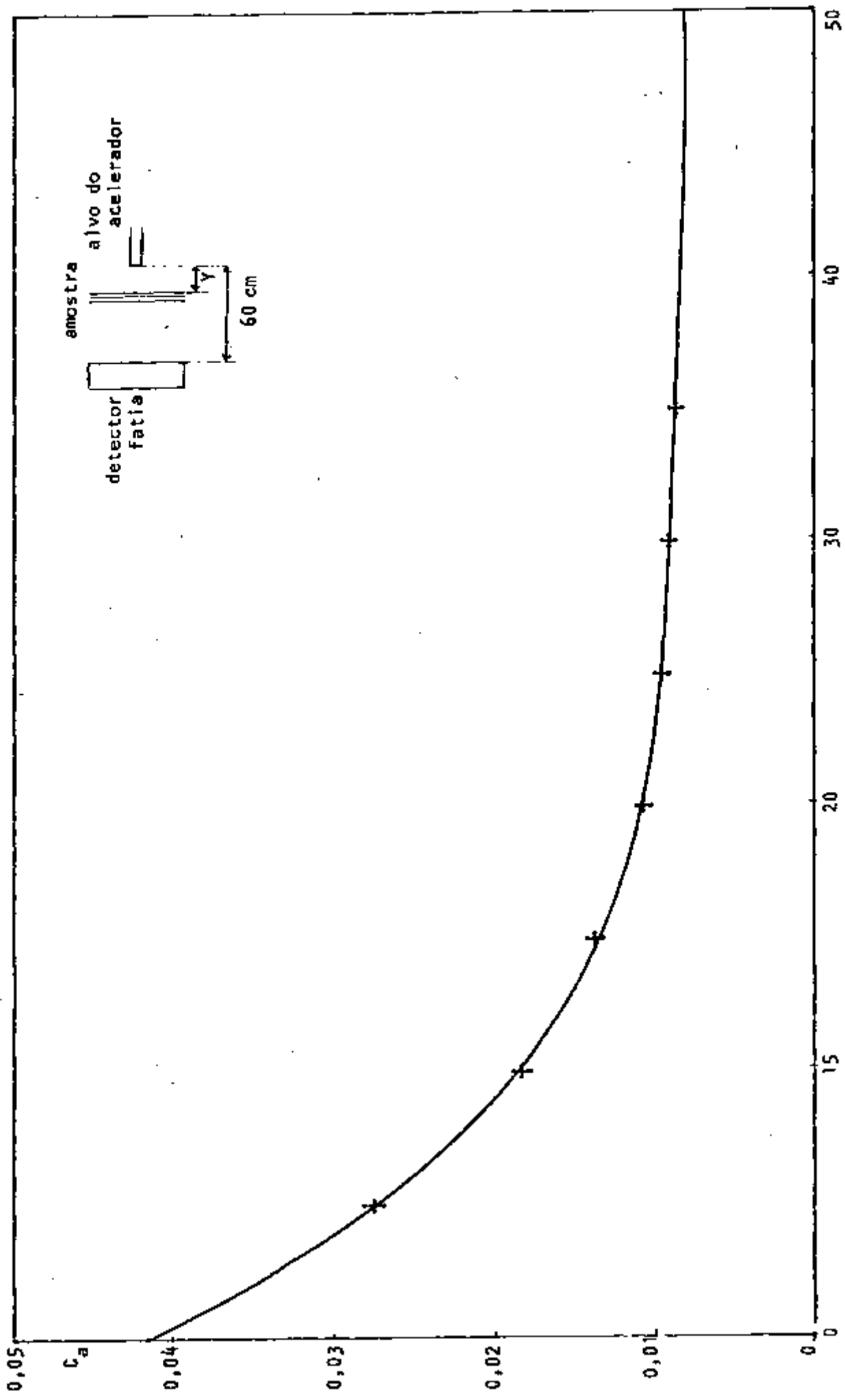


FIGURA 5.9 - Curva de resposta do sistema de análise em função da distância  $Y$ , usando como amostra 17 placas de "elemento combustivel"

Foram aplicados três testes para verificar a reprodutibilidade das análises.

#### 5.4.1 - Teste de estabilidade do sistema de análise

Para verificar se existe erro sistemático de contagem, a mesma análise foi repetida 13 vezes para uma mesma amostra (4 discos de urânio metálico), sem tirá-la do lugar. Foi aplicado o teste de  $\chi^2$  aos resultados dessas análises, obtendo-se um valor  $P(\chi^2, \nu) = 0,39$ , o que indica que o equipamento está funcionando bem e que os resultados estão dentro da estatística de contagem (erro de 0,9%).

#### 5.4.2 - Teste de eficiência do monitor na normalização da intensidade de nêutrons

Foram realizadas 22 análises utilizando-se a mesma amostra e variando-se, de uma análise para outra, a intensidade de nêutrons interrogadores. A amostra (4 discos de urânio metálico) foi colocada numa posição fixa ( $X = 60$  cm,  $Y = 37$  cm) para não introduzir erro devido ao posicionamento da amostra. Foram usados valores de intensidade de nêutrons interrogadores de 100 a 25% do valor utilizado nas análises realizadas nesse trabalho.

As contagens normalizadas estão apresentadas na figura 5.10 em função da contagem no monitor. A esses dados foi ajustada, por mínimos quadrados, uma reta ( $C_a = A + BX$ ), também apresentada nessa figura.

A intensidade de nêutrons interrogadores variou pouco durante as irradiações, sendo que as variações máximas observadas sempre corresponderam a menos do que 10% da intensida

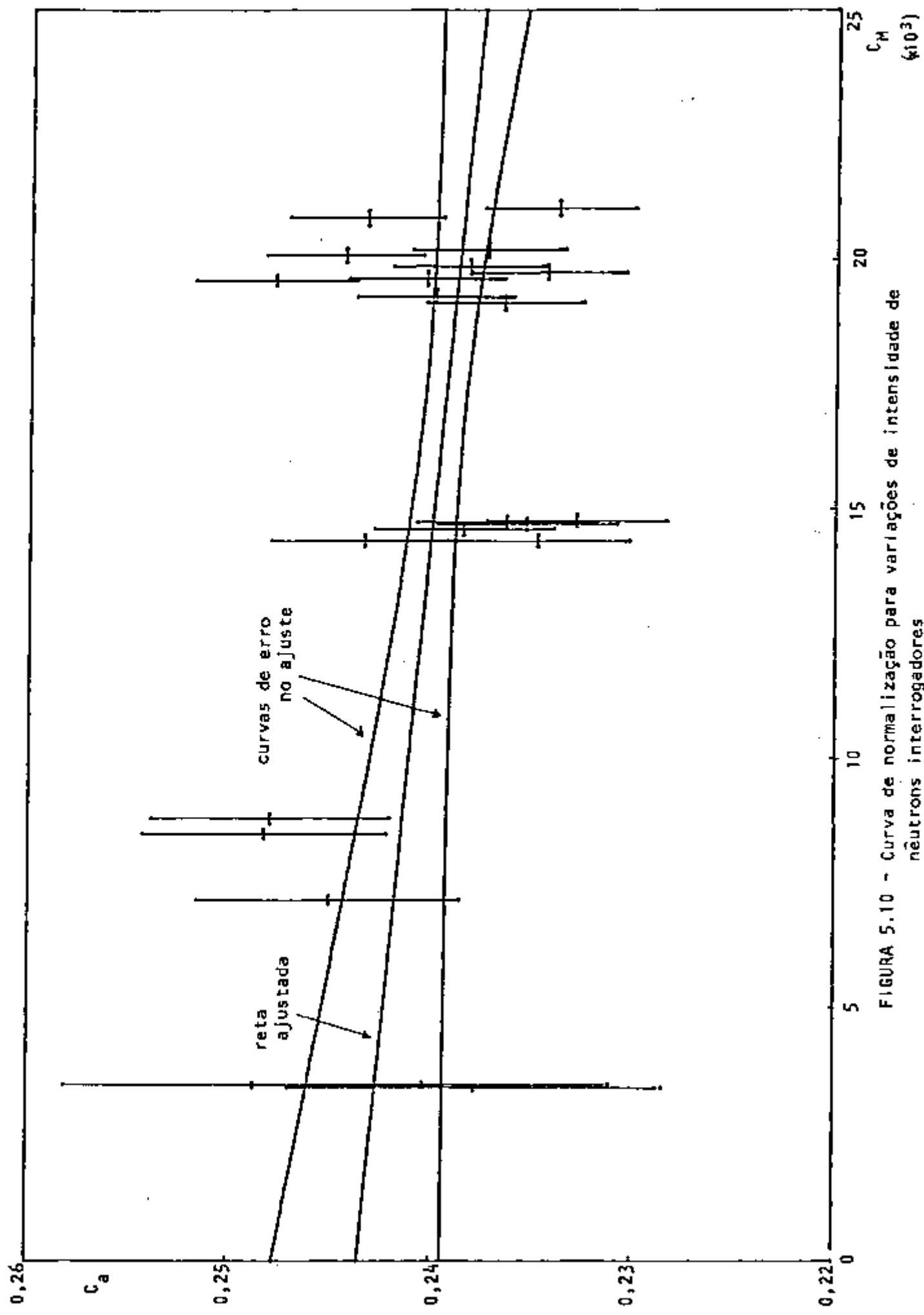


FIGURA 5.10 - Curva de normalização para variações de intensidade de nêutrons interrogadores

de fixada. Baseando-se na reta ajustada (vide figura 5.10) e no fato das variações terem ocorrido de forma aleatória em torno da intensidade média, conclui-se que o efeito de cada variação será pequeno e, no total de variações ocorridas durante uma análise, haverá cancelamento do efeito das variações na normalização da intensidade de nêutrons interrogadores.

Baseado no exposto, pode-se afirmar que, se houver erro devido à normalização, será desprezível frente ao erro de 1,7% associado à estatística de contagem nessas medidas. Assim sendo, pode-se afirmar que o monitor está normalizando os resultados de forma satisfatória.

#### 5.4.3 - Medida da reprodutibilidade no posicionamento da amostra

A reprodutibilidade no posicionamento de uma dada amostra foi avaliada através de 5 análises em que a amostra foi tirada e recolocada na posição de irradiação, entre análises consecutivas. As análises tiveram um tempo de duração oito vezes maior do que as do ítem anterior, de modo a se ter um erro pequeno (0,60%) devido à estatística de contagem.

O erro observado nessas medidas foi 0,61%, o que corresponde a um erro devido ao posicionamento de 0,1%, valor este que é idêntico ao valor estimado no ítem 4.3.

A reprodutibilidade no posicionamento é boa, sendo que o erro a ela associado (0,1%) pode ser desprezado, visto contribuir muito pouco para o erro total na medida.

#### 5.5 - Investigação do efeito da presença de alumínio na medida de nêutrons atrasados

Essa investigação foi realizada tendo-se em vista a a

plicação desse método a elementos combustíveis do reator IEA-R1, os quais são constituídos de 19 placas de liga urânio-alumínio, envoltas cada uma delas por uma camada de alumínio. A espessura total (de todas as placas juntas) de alumínio em um elemento combustível é de 15 mm.

Foi investigado o efeito da colocação de discos de alumínio, do mesmo diâmetro dos discos de urânio metálico, em duas posições:

- a. entre o alvo do acelerador Van de Graaff e 4 discos de urânio
- b. entre 4 discos de urânio e o detector tipo fatia

As medidas foram repetidas para um disco de urânio.

A série de medidas correspondentes ao item a foi repetida utilizando discos de alumínio com o dobro de diâmetro dos anteriores e usando como amostra um disco de urânio.

Os resultados das medidas em que foram usados 4 discos de urânio (ítem a e b) e das medidas correspondentes ao ítem a, para um disco de urânio e utilizando discos de alumínio de diâmetro igual e maior do que o disco de urânio, são apresentados respectivamente nas figuras 5.11, 5.12, 5.13 e 5.14.

Teoricamente, espera-se que a influência da presença de alumínio seja a atenuação da intensidade de nêutrons interrogadores ou de nêutrons atrasados, conforme o alumínio esteja respectivamente entre o alvo e a amostra ou a amostra e o detector fatia. Assim sendo, espera-se uma atenuação exponencial da contagem normalizada. Devido a isto, nas figuras 5.11 a 5.14 é apresentado o logarítmo natural da contagem normalizada em função da espessura do alumínio.

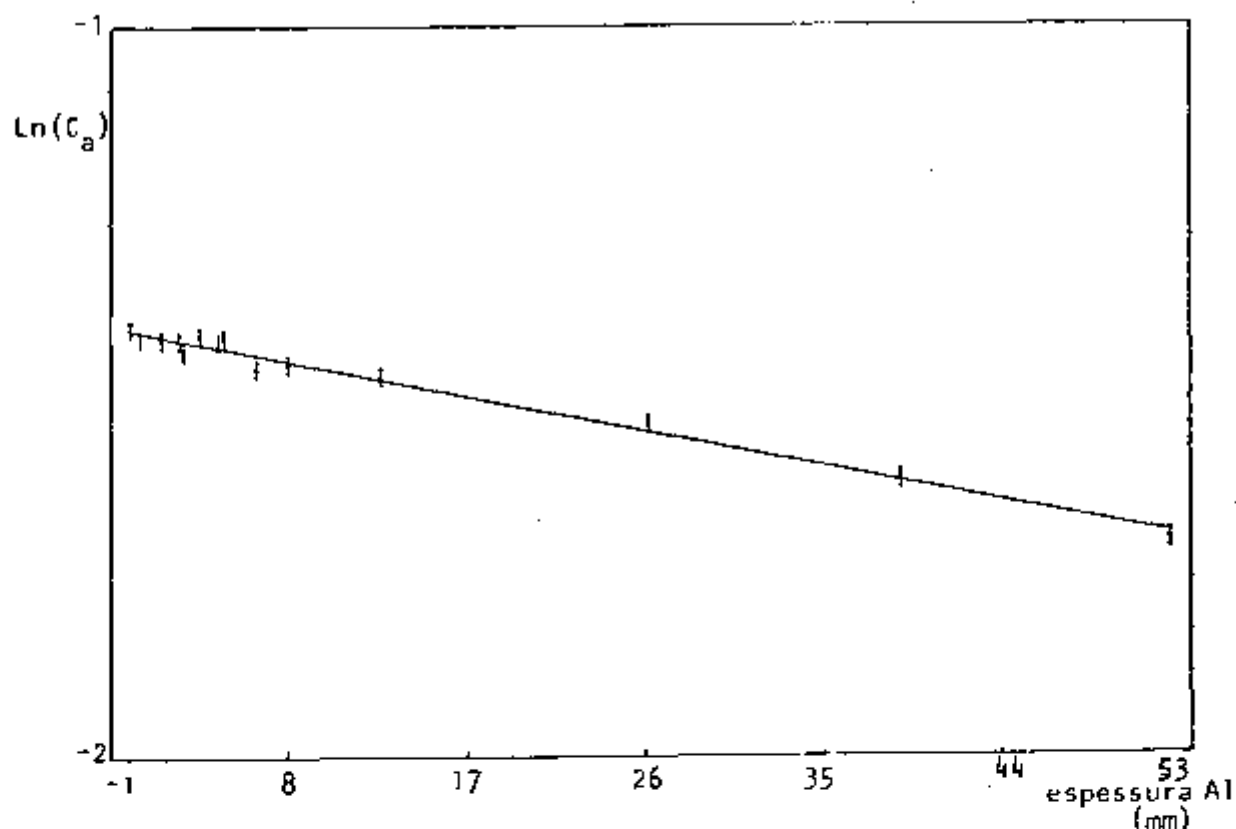


FIGURA 5.11 - Logarítmo da contagem ( $C_a$ ) em função da espessura de Al entre o alvo e a amostra (4 discos de U)

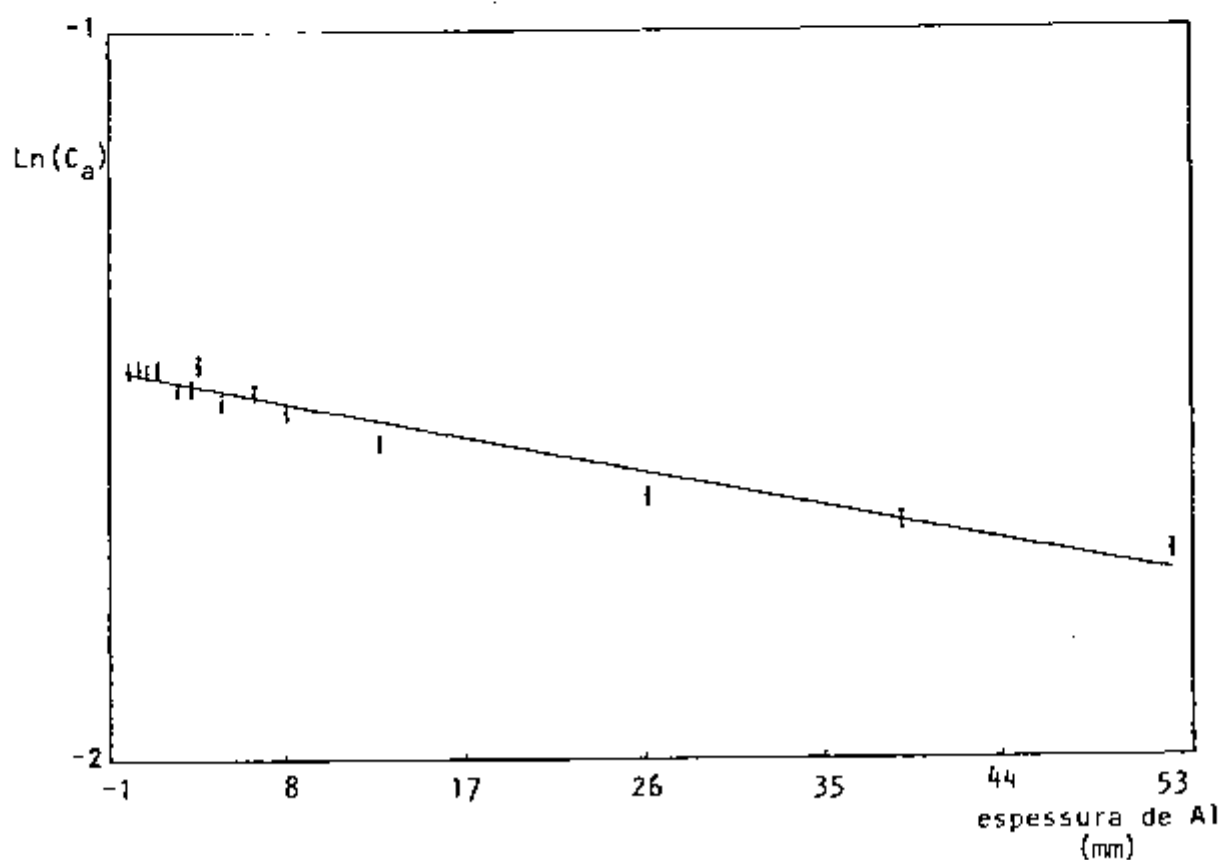


FIGURA 5.12 - Logarítmo da contagem ( $C_a$ ) em função da espessura de Al entre a amostra (4 discos de U) e o detector fatia



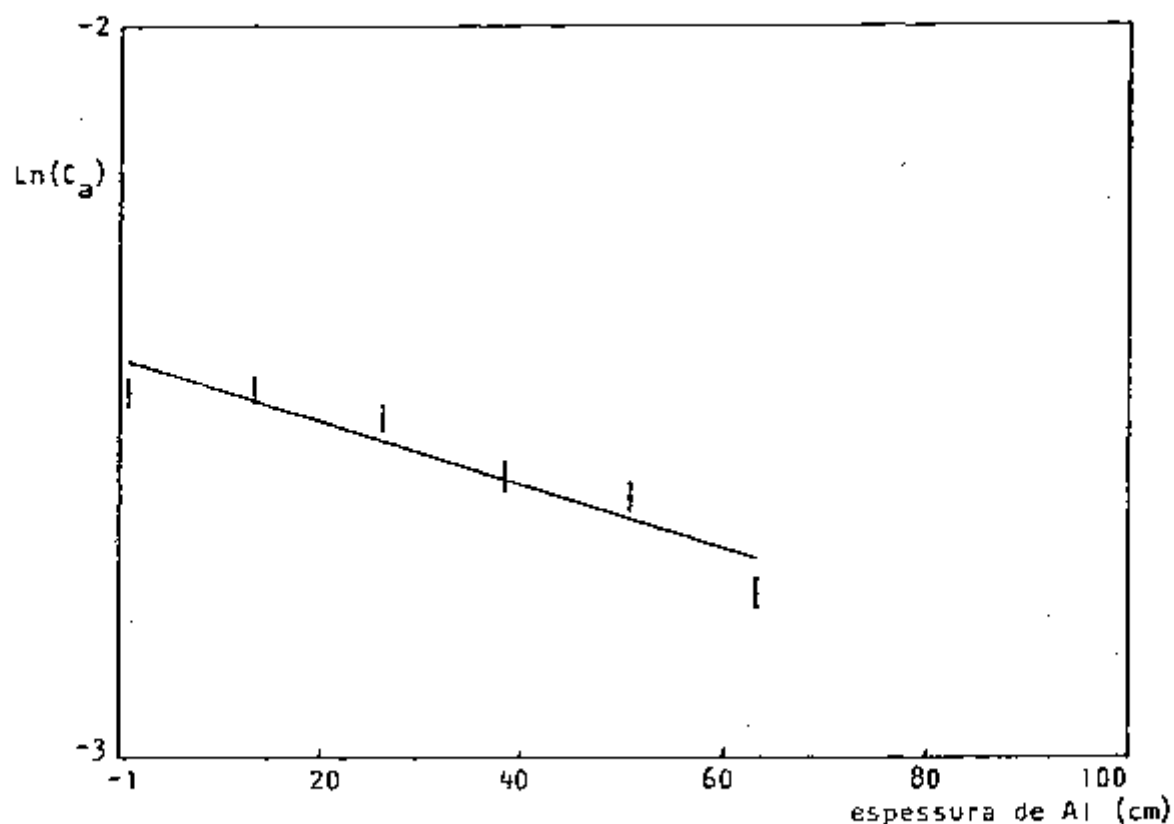


FIGURA 5.13 - Logaritmo da contagem ( $C_a$ ) em função da espessura de Al na forma de discos pequenos de Al ( $\phi=8,3$  cm) colocados entre o alvo e a amostra (1 disco de U)

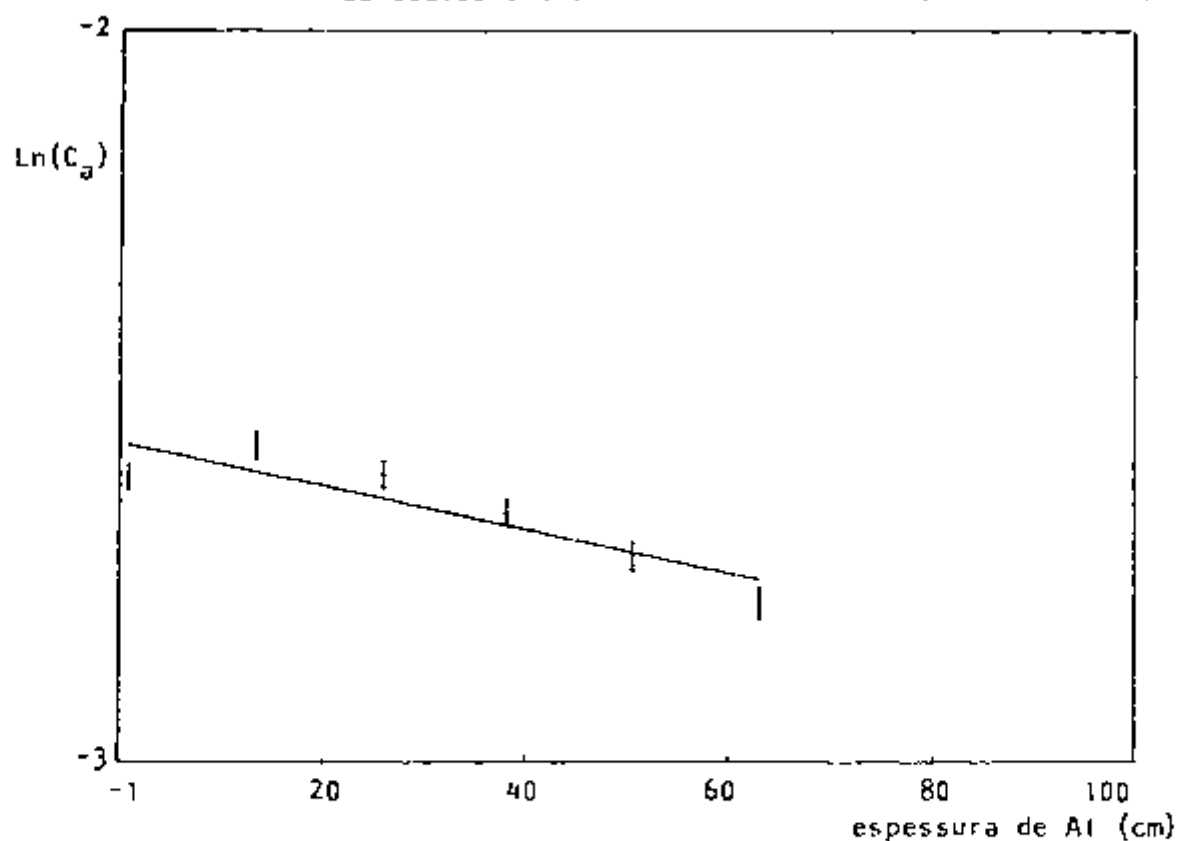


FIGURA 5.14 - Logaritmo da contagem ( $C_a$ ) em função da espessura de Al na forma de discos grandes de Al ( $\phi=26,5$  cm) colocados entre o alvo do acelerador e a amostra (1 disco de U).

Observação: dentro dos erros dos ajustes, as retas apresentadas nas figuras 5.13 e 5.14 são indistinguíveis.

Aos dados de cada série de medidas, foi ajustada, por mínimos quadrados, uma reta do logaritmo da contagem normalizada em função da espessura de alumínio. Nas figuras 5.11 a 5.14 são apresentadas essas retas.

A partir das várias séries de medidas realizadas, conclui-se que:

- 19) A influência do alumínio é explicável em termos da atenuação da intensidade de nêutrons interrogados ou atrasados;
- 29) O fato do alumínio estar de um lado ou de outro do disco de urânio não interfere no resultado da análise;
- 39) Conhecendo-se a quantidade de alumínio presente na amostra padrão e/ou na amostra desconhecida, é possível calcular o fator para correção do resultado da análise.

O coeficiente de inclinação das retas ajustadas é da mesma ordem de grandeza ( $0,05 \text{ cm}^{-1}$ ) da seção de choque de remoção do alumínio para nêutrons de 8 MeV. Não foram feitos estudos com maiores detalhes desse fato, devido a estar além do escopo deste trabalho.

## 5.6 - Estudo da influência da distribuição espacial do urânio

Com essa finalidade foram realizados três tipos de medidas, tendo em vista a distribuição frontal (na direção do alvo do acelerador Van de Graaff ao centro do detector fatia) bem como a distribuição lateral (na direção transversal

ã anterior, no plano horizontal) e a distribuição volumétrica.

#### 5.6.1 - Estudo da influência da distribuição lateral de urânio

Foi levantada a curva de resposta do sistema de análise em função do deslocamento lateral de urânio.

Como amostras foram utilizados conjuntos de 53 pastilhas de  $U_3O_8$  com uma massa de aproximadamente 780 g cada conjunto. As pastilhas foram alojadas de forma ordenada no interior de caixas de alumínio de dimensões 12,5 x 1,7 x 3,6 cm. Vale salientar que em todas as caixas as pastilhas foram ordenadas da mesma maneira.

Nas duas experiências realizadas, descritas a seguir, a direção lateral dista 37 cm do alvo do acelerador, conforme mostrado na figura 5.15. As distâncias empregadas foram medidas da direção alvo-centro do detector fatia ao centro geométrico das caixas (amostras).

Uma dessas amostras foi colocada em 5 posições laterais. O resultado dessas medidas está apresentado na figura 5.15, na qual verifica-se que a resposta do sistema de análise é simétrica em relação à posição central.

Depois, foram feitas medidas colocando massas de aproximadamente 780 g de  $U_3O_8$  nas posições laterais citadas acima, cada vez em uma delas e, posteriormente, em todas simultaneamente (nas respectivas posições).

Os dados dessas medidas estão apresentados na Tabela 5.1. Em vista dos dados apresentados nessa Tabela, verifica-se que a interferência da presença de um conjunto de pastilhas de  $U_3O_8$  em outro conjunto igual, colocado ao lado do

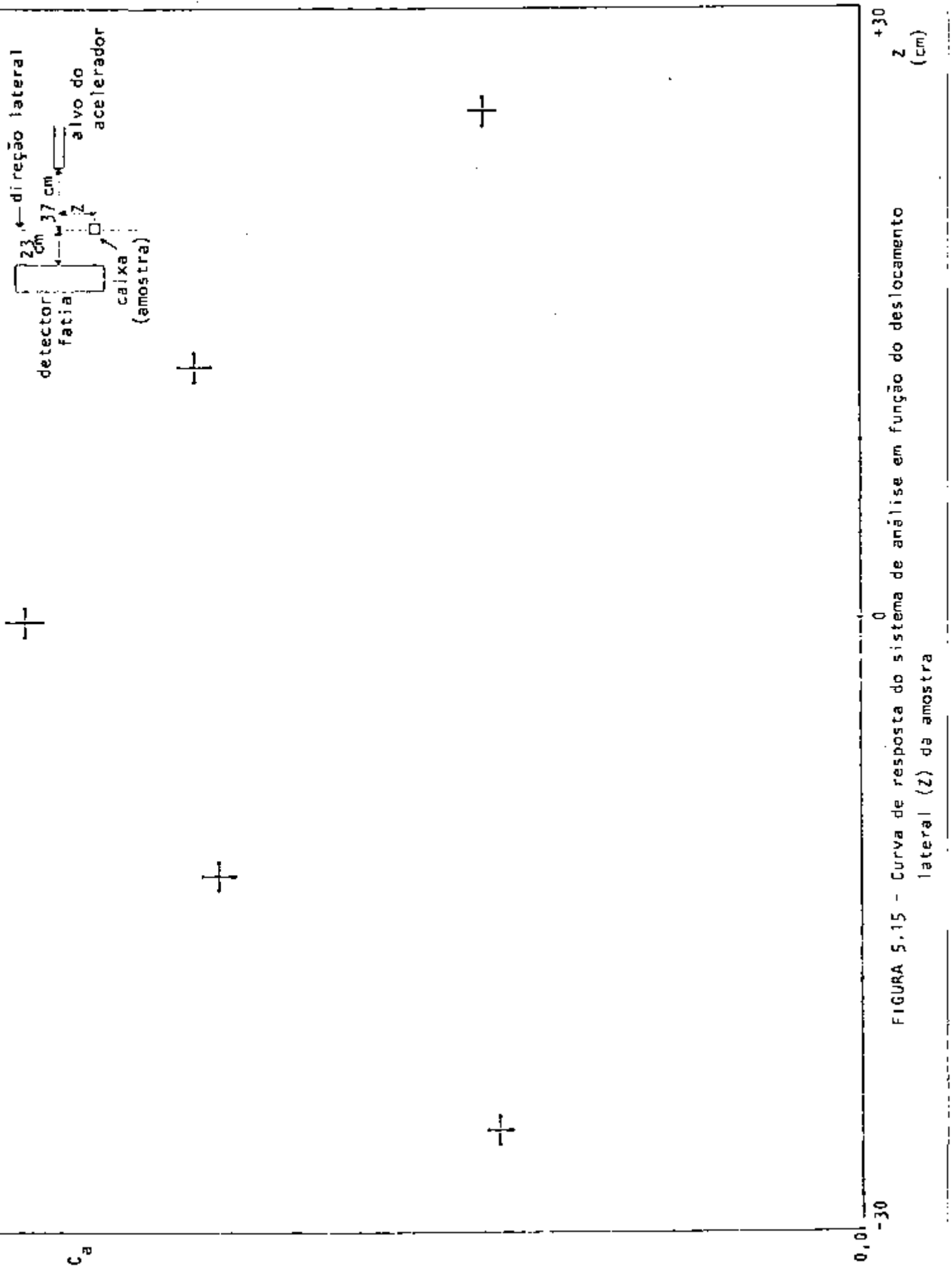


FIGURA 5.15 - Curva de resposta do sistema de análise em função do deslocamento lateral (Z) da amostra

TABELA 5.1 - Medidas para determinação da influência da distribuição lateral de urânio no resultado da análise				
Distância do ponto central (cm)	Massa (g)	Contagem no monitor	Contagem no detector fatia	Contagem normalizada
0	783,6	47126	2876	0,055 ± 0,001
-24,5	783,7	43189	1399	0,026 ± 0,0009
-12,5	781,9	39665	2005	0,044 ± 0,001
+12,5	784,3	44052	2251	0,045 ± 0,001
+24,5	784,6	44791	1513	0,027 ± 0,0009
Soma das parcelas				0,197 ± 0,002
Todas Juntas nas respectivas posições	3918,1	44613	9113	0,198 ± 0,0009

primeiro, é menor do que se pode detectar com o sistema de análise.

#### 5.6.2 - Estudo da influência da distribuição frontal de urânio

Com o objetivo de estudar o efeito da auto-blindagem de nêutrons dentro de uma amostra, foram realizadas medidas colocando sucessivamente os 4 discos de urânio um em frente do outro (na direção do alvo ao centro do detector fatia).

O resultado das medidas realizadas está apresentado na figura 5.16. A esses dados foi ajustada, por mínimos quadrados, uma reta também apresentada nessa figura.

O erro no ajuste, representado pelas curvas de erro, (vide figura 5.16) não é justificável pelo erro experimental (predominantemente erro estatístico de contagem). Por outro lado, para a composição química e massa das amostras e para a energia de nêutrons interrogadores utilizada, o ajuste de reta usado parece o mais razoável, apesar de introduzir um erro de análise como é apresentado nessa figura.

#### 5.6.3 - Estudo da influência da distribuição volumétrica de urânio

Para essas medidas, foram utilizados discos de urânio metálico e pastilhas sinterizadas de  $U_3O_8$ .

Foram feitas medidas para comparar os resultados entre discos de urânio e conjuntos de pastilhas de  $U_3O_8$  de mesmo volume, bem como discos de urânio e conjuntos de pastilhas de  $U_3O_8$  de mesma massa total.

O resultado de todas essas medidas está apresentado

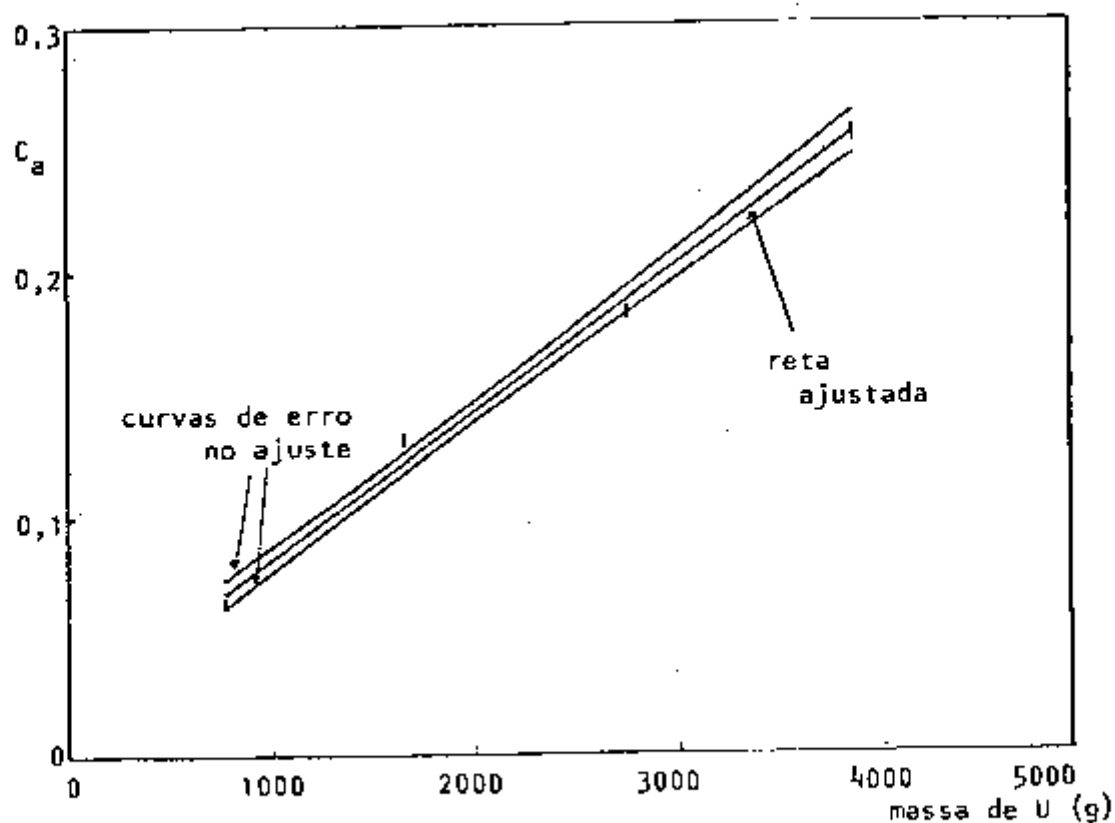


FIGURA 5.16 - Influência da distribuição frontal de urânio no resultado da análise

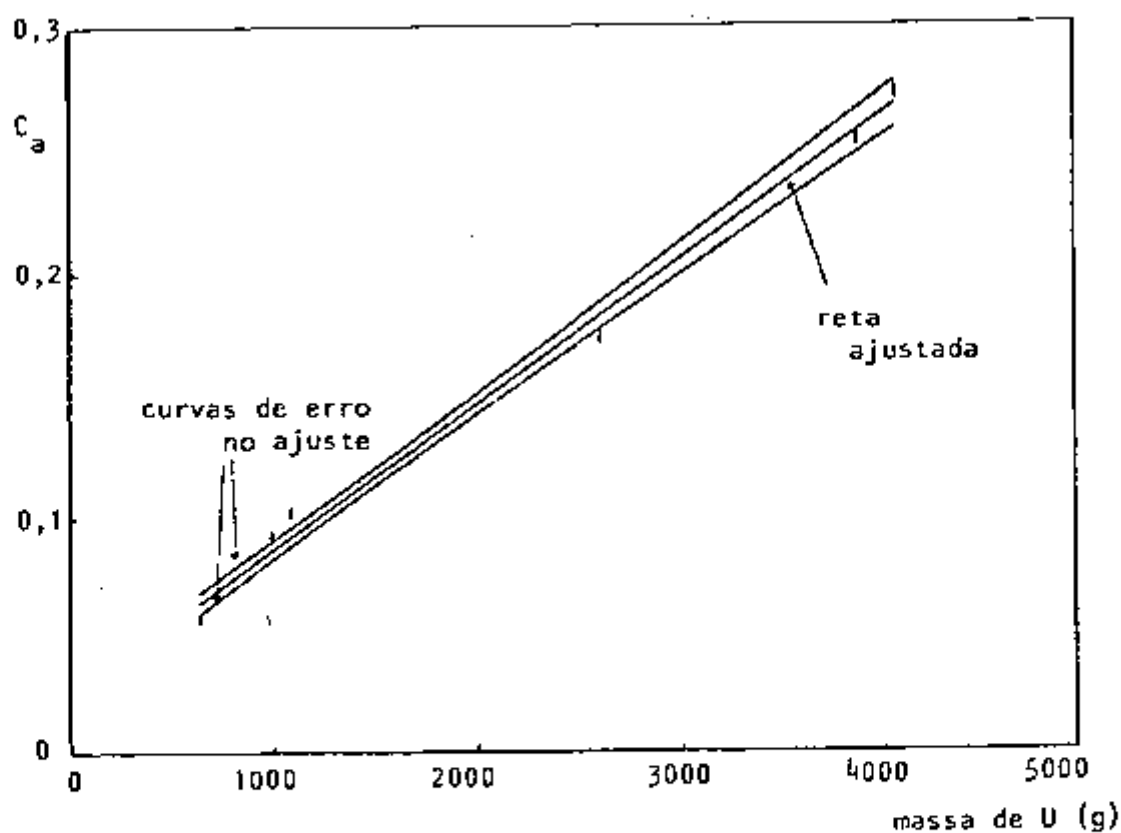


FIGURA 5.17 - Influência da distribuição volumétrica de urânio no resultado da análise

na figura 5.17. O ajuste, por mínimos quadrados, de uma reta também é apresentado nessa figura.

Uma vez que a contagem normalizada variou de modo a proximadamente linear com a massa de urânio presente nas a mostras, conclui-se que, para as pequenas distribuições volumétricas (0 a 716 cm<sup>3</sup>) de urânio, a influência no resultado da análise é pequena. Isto implica em introduzir um erro de análise (representado pelas curvas de erro no ajuste), pela mesma razão exposta no item 5.6.2.

### 5.7 - Estudo com placas de elemento combustível

Foram feitas medidas para verificar a linearidade da resposta do sistema com o aumento do número de placas de "elemento combustível".

Nestas medidas, a massa de urânio utilizada variou de 10 a 184 g (1 a 17 placas). As medidas foram feitas com as placas encostadas uma à outra (face a face), de acordo com a figura 5.18. Para aumentar a razão de contagem, a separação entre o alvo e a placa mais próxima foi reduzida a 12,5 cm (veja item 5.3).

Na figura 5.18, tem-se a curva de resposta do sistema ao aumento do número de placas de urânio que são irradiadas.

Apesar da baixa estatística de contagem, observa-se que a contagem normalizada varia linearmente com o número de placas analisadas.

Usando como amostra 17 placas de "elemento combustível", nas condições da experiência anterior, foram realizadas 4 análises, descritas a seguir:

a. Amostra na posição X = 60 cm e Y = 12,5 cm, com o centro das



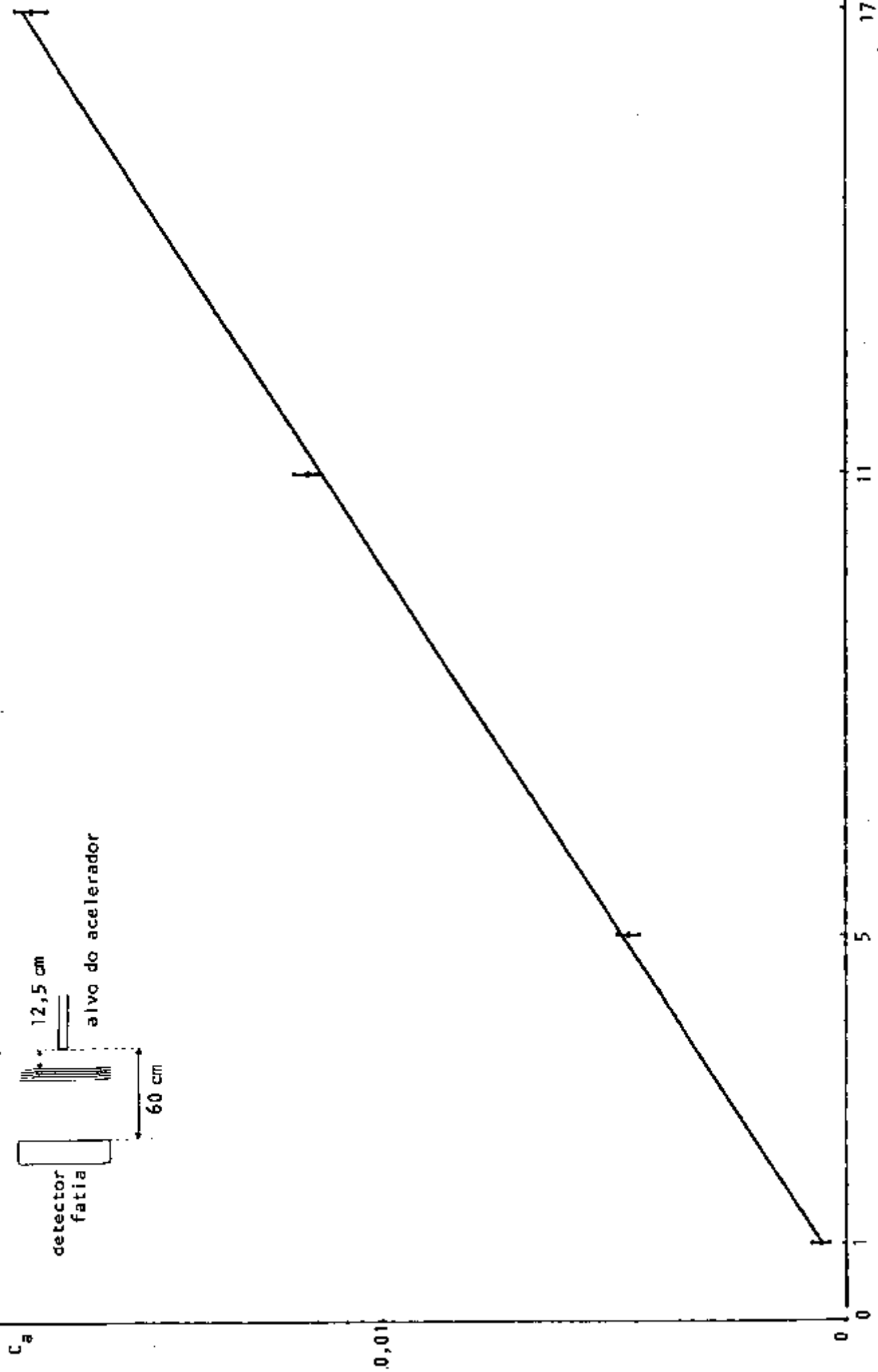
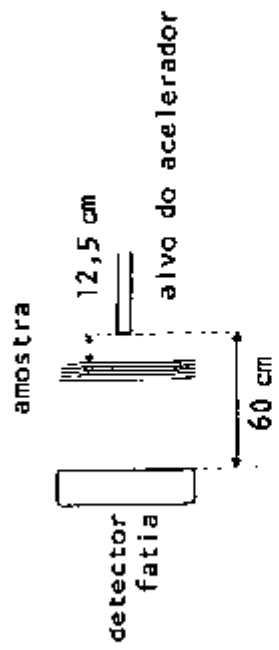


FIGURA 5.18 - Resposta do sistema de análise ao aumento de placas de "elementos combustíveis"

- placas alinhado com o centro do alvo e o centro do detector fatia.
- b. Amostra na posição anterior, sofrendo um deslocamento lateral de 1 cm para a direita de quem olha do alvo para o detector fatia.
  - c. Amostra na condição anterior, girando-se no plano horizontal, no sentido anti-horário de quem olha de cima para baixo, de modo a se ter um deslocamento de 1 cm nos extremos da placa, mas, mantendo-se a posição central da mesma.
  - d. Amostra na posição da análise a, girando de  $90^\circ$  no plano vertical.

Os dados obtidos nessas análises encontram-se na Tabela 5.2.

Da análise dos dados obtidos nas experiências a, b e c, conclui-se que o erro devido aos posicionamentos das placas de "elemento combustível" é menor do que o erro associado à estatística de contagem que foi da ordem de 3% nessas análises.

Comparando os resultados das análises a e d, conclui-se que o sistema de análise fornece resposta idêntica (dentro do erro estatístico), estando as placas de "elemento combustível" na horizontal ou na vertical.

TABELA 5.2 - Medidas para determinação da influência do posicionamento das placas de "elemento combustível" nos resultados das análises

Análise	Contagem no monitor	Contagem no detector fatia	Contagem normalizada
a	82063	1837	$0,0160 \pm 0,0005$
b	82151	1857	$0,0162 \pm 0,0005$
c	84430	1936	$0,0165 \pm 0,0005$
d	82807	1894	$0,0165 \pm 0,0005$

## VI. CONCLUSÕES E SUGESTÕES

O sistema de análise implantado fornece resultados reprodutíveis, dentro do erro de análise que variou de 1,6 a 3,9%, dependendo da forma física e da massa de urânio presente na amostra.

Na análise de um conjunto de 17 placas que simulam as placas de elemento combustível de reator tipo MTR, obteve-se um erro de análise de 2%. Como esse erro é principalmente devido à estatística de contagem (vide ítem 4.6), espera-se que o erro na determinação da massa de urânio num elemento combustível (MTR) seja da ordem da metade desse valor, devido a que essa massa é 4 vezes maior do que nas 17 placas utilizadas.

Para o controle de qualidade na fabricação de elementos de combustível de reator tipo MTR, a massa total de urânio por placa deve ser conhecida com a precisão de 2,5% /26/. Para as análises realizadas com simulações dessas placas, obteve-se uma precisão de 5,2%, em análises de 1 000 s de duração. Com algumas modificações sugeridas a seguir, espera-se reduzir o erro nessa análise para menos do que 2,5%. Da mesma forma, as modificações sugeridas propiciarão uma redução no erro das análises que vierem a ser executadas com esse sistema.

Conforme exposto no capítulo IV, o erro no resultado da análise reduz-se aos erros associados à estatística de contagem e ao posicionamento da amostra. Para reduzir esses erros, sugere-se:

19) Aumentar a intensidade da fonte de nêutrons. Um problema significativo desse sistema de análise foi a neces

cidade de utilizar apenas 20% da intensidade máxima de nêutrons da fonte  ${}^3\text{H}(d,n){}^4\text{He}$ . Pois, com intensidades maiores, o pré-amplificador associado ao detector saturava.

Esse problema será eliminado com a utilização de um pré-amplificador, que está sendo construído, tipo "gated" similar ao utilizado em Los Álamos /17/. Usando maior intensidade de nêutrons interrogadores haverá maior produção de nêutrons atrasados e, conseqüentemente, melhoria na estatística de contagem. Assim sendo, com o uso desse pré-amplificador espera-se reduzir de 5,2% para 2,3% o erro nas análises de uma placa de "elemento combustível".

29) Aumentar o tempo de análise para diminuir o erro associado à estatística de contagem. Esse erro é inversamente proporcional à raiz quadrada do tempo total de análise (vide Ítem 4.6). A utilidade ou não dessa sugestão depende da precisão requerida e da possibilidade ou não de utilizar o tempo total de análise necessário para obter-se essa precisão. No caso de implantar-se esse sistema para medidas de rotina, é importante saber qual será o número de análises que deverão ser realizadas por dia, para que se possa definir o tempo total disponível para cada análise.

39) Melhorar o sistema de posicionamento da amostra, para diminuir o erro a ele associado. Com essa modificação será possível diminuir a distância detector fatia-alvo, em relação à distância utilizada nesse trabalho ( $X = 60$  cm) e, conseqüentemente, reduzir o erro associado à estatística de contagem (vide Ítem 5.3). A redução, no erro total no resultado da análise, obtível com essa modificação dependerá de quanto fôr possível melhorar o sistema de posicionamento da

amostra.

É importante lembrar que melhorias no sistema de análise para a obtenção de erro total no resultado da análise menor do que 0,5% implicarão na necessidade de estudar com maiores detalhes os outros parâmetros (vide Tabela 4.1) que, por se tornarem significativos, passarão a influir no erro total da análise.

O método de análise utilizado nesse trabalho é de medida relativa e, como em todos os desse tipo, faz-se necessário que a amostra padrão tenha características químicas e físicas o mais próximo possível das existentes na amostra a ser analisada. Neste caso, os padrões precisam ter massa e composição muito bem conhecidas. A não obtenção de padrão com essas características implica em aumento no erro da análise, fato esse constatado nas análises referentes aos itens 5.6.1 e 5.6.2. Pretende-se utilizar esse método para analisar barras contendo resíduos radioativos, para os quais haverá dificuldade na obtenção de padrões com as características citadas. Assim sendo, deverão ser estudados meios para a resolução desse problema, tal como fazer análises durante as quais a amostra sofra rotação (contínuamente) para que se tenha "homogeneização" na influência dos materiais distribuídos na amostra.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1.. ALLEN, W.D. Flat response counters. In: MARION, J.B. & FOWLER, J.L.; eds. Fast neutron physics. Part.I: Techniques. New York, N.Y., Interscience, 1960. p.361-86. (Interscience monographs and texts in physics and astronomy, v.4).
2. AMIEL, S. Analytical applications of delayed neutron emission in fissionable elements. Analyt. Chem., 34(13): 1683-92, Dec. 1962.
3. ATWELL, T.L.; MARTIN, E.R.; MENLOVE, H.O. In-plant non destructive assay of HTGR fuel materials. Los Alamos, N.M., Los Alamos Scientific Lab., 1975.(LA-UR-75-1712).
4. AUGUSTSON, R.H.; HENRY, C.N.; WEISBIN, C.R. Measurement of the uranium-235 content in a spent MTR type fuel element using the delayed-neutron yield technique.Nucl. Technol., 14: 197-9, May, 1972.
5. AUGUSTSON, R.H.; MENLOVE, H.O.; WALTON, R.B.; EAST, L.V.; EVANS, A.E.; KRICK, M.S. Development of techniques for active and passive assay of fissionable materials. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguards techniques: proceedings of a symposium on ... held in Karlsruhe, 6-10, July, 1970, v.2. Vienna, 1970. p.53-78. (Proceedings series).
6. BAECKMANN, A.V.; KÜCHLE, M.; WEITKAMP, C.; AVENHAUS, R.; BAUMUNG, K.; BEYRICH, W.; BÖHNEL, K.; KLUNKER, J.; MAINKA, E.; MATUSSEK, P.; MICHAELIS, W.; NEUBER, J.; WERTENBACH, H.; WILHELMI, M.; WODA, H.; HILLE, F.; LINDER, W.; SCHNEIDER, V.W.; STOLL, W.; KOCH, L.; EBERLE, R.; KRAPPEL, W.; STEGEMANN, D.; ZELLER, W.; KRINNINGER, H.; MAUSBECK, H.; RUPPERT, E. Instrumented nuclear material assay for safeguards. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses of atomic energy: proceedings

- of the fourth international conference on ... held in Geneva, 6-16 September, 1971, v.9. New York. N.Y., 1972 p.435-48. (Proceedings series).
7. BAUMUNG, K. & BÖHNEL, K. Assay of fresh fuel elements of boiling water reactors for their U-235 content with an Sb-Bc-source. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., Jun. 1976. (ORNL-tr-4274).
  8. BAUMUNG, K.; BÖHNEL, K.; KLUNKER, J.; KÜCHLE, M.; WOLFF, J. Investigations into non-destructive safeguards techniques. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguards techniques: proceedings of a symposium on... held in Karlsruhe, 6-10 July, 1970, v.2. Vienna, 1970. p.177-93. (Proceedings series).
  9. BECKURTZ, K.H. & WIRTZ, K. Neutron physics. Berlin, Springer, 1964. p. 275.
  10. BRAMBLETT, R.L. Fuel rod scanner for quality control and safeguards. San Diego, Calif., IRT, [s.d.] (IRT-2311 - 004).
  11. BRAMBLETT, R.L.; GINAVEN, R.O.; GOZANI, T.; McMILLAN, J.I.; REYNOLDS, G.M.; RUNDQUIST, D.E. A transportable assay system for small and bulk nuclear materials based on an electron LINAC. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguards techniques: proceedings of a symposium on ... held in Karlsruhe, 6-10 July, 1970, v.1. p.223-38. (Proceedings series).
  12. BROWN, F.; TERREY, D.R.; GOOD, P.T.; ROSS, A.E.; LUMETTI, A.; OTOMO, T.; SULTAN, M.; KERR, E. The application of safeguards techniques to a large zero-energy reactor facility. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguards techniques: proceedings of a symposium on... held in Karlsruhe, 6-10 July 1970, v.1. Vienna, 1970.



p.125-38. (Proceedings series).

13. BROWN, F.; TERREY, D.R.; HORNSBY, J.B.; MONK, R.G.; MORGAN, F.; HERRINGTON, J.; GOOD, P.T.; STEED, K.C.; SINCLAIR, V.M. Application of instrumental methods to the determination of nuclear fuel materials for safeguards. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguards techniques: proceedings of a symposium on... held in Karlsruhe, 6-10 July, 1970, v.2. Vienna, 1970. p.125-42. (Proceedings series).
14. CESAR, M.F. & MAFRA, O.Y. Determinação da porcentagem de enriquecimento de urânio em U-235 pela técnica de espectrometria gama passiva. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, dez. 1974. (IEA-Inf-42).
15. DOUGLAS, H. Uranium availability, resources and costs. Nucl. Engng. Int., 23(278): 35-9, Nov. 1978.
16. DRAGNEV, T.N.; CAROLIS, M. de; KEDDAR, A.; KONNOV, Y.; MARTINEZ-GARCIA, G.; WALIGURA, A.J. Some agency contributions to the development of instrumental techniques in safeguards. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguarding nuclear materials: proceedings of a symposium on ... held in Vienna, 20-24 October, 1975, v.2. Vienna, 1976. p.37-62. (Proceedings series).
17. EAST, L.V. & WALTON, R.B. Polyethylene moderated <sup>3</sup>He neutron detectors. Nucl. Instrum. Meth., 72:161-6, 1969.
18. FORSTER, R.A. & MENLOVE, H.O. Neutron coincidence detector for FBR fuel pins: description and operating procedures manual. Los Alamos Scientific Lab., 1973. (LA-5156-M).
19. GOZANI, T. Non-destructive assay of spent fuel for determination of residual fissile content. Nucl. Mater.

Manage., 5: 514-24, 1976.

20. GOZANI, T.; RUNDQUIST, D.E.; GINAVEN, R.O.; BRAMBLETT, R.L. New developments in nuclear material assay using photo-nuclear reactions. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguards techniques: proceedings of a symposium on ... held in Karlsruhe, 6-10 July, 1970, v.2. Vienna, 1970.p. 143-63. (Proceedings series)
21. HIISSMAKI, P.; PITKANEN, V.; ROSENBERG, R.;SORSA, A. An automatic device for large scale analysis of uranium in rocks and sediments. [s.n.t.]. (NUCLEX-75).
22. JAFFEY, A.H. Statistical tests for counting. Nucleonics, 18(11): 180-4, Nov. 1960.
23. KATCOFF, S. Fission-product yields from neutron-induced fission. Nucleonics, 18(11): 201-8, Nov. 1960.
24. KEEPIN, G.R. & MARAMAN, W.J. Nondestructive assay technology and in-plant dynamic materials control-"DYNAMIC". Los Alamos Scientific Lab., 1975. (LA-UR-75-1817).
25. KEEPIN, G.R.; MENLOVE, H.O.; THORPE, M.M.; AUGUSTSON, R.H.; HENRY, C.N.; SMITH, D.B.; REILLY, T.D. Application areas and results of non-destructive assay measurements. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguards techniques: proceedings of a symposium on... held in Karlsruhe, 6-10 July, 1970, v.2. p.79-112. (Proceedings series).
26. KHOURI, M.T.F.C. Ensaio em material combustível para reatores utilizando técnicas nucleares. São Paulo,1977 (Tese de doutoramento).
27. KRAPPEL, W. & STEGEMANN, D. Non-destructive fertile and

- fissile material assay of the TH-U fuel pebbles. In: AMERICAN NUCLEAR SOCIETY. International conference on nuclear solutions to world energy problems, Washington, Nov. 12-17, 1972. |s.n.t.|.
28. KRINNINGER, H.; WIESNER, S.; FABER, C. Pulsed neutron method for non-destructive and simultaneous determination of the  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$  contents of irradiated and non-irradiated reactor fuel elements. Nucl. Instrum. Meth., 73: 13-33, 1969.
29. MENLOVE, H.O.; AUGUSTSON, R.H.; SMITH, D.B. A multi-spectra neutron irradiation technique for the nondestructive assay of fissionable materials. Nucl. Technol. 10: 366-79, Mar. 1971.
30. MENZEL, J.H.; DENNIS, B.R.; THORPE, M.M.; WALTON, R.B.; SMITH, D.B.; KEEPIN, G.R. A mobile laboratory for nuclear safeguards. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Safeguards techniques: proceedings of a symposium on ... held in Karlsruhe, 6-10 July, 1970, v.1. Vienna, 1970. p.201-21. (Proceedings series).
31. METZ, C.F. & WATERBURY, G.R. The analysis of nuclear fuels: a review. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Analytical methods in the nuclear fuel cycle: proceedings of a symposium on ... held in Vienna, 29 November-3 December, 1971. Vienna, 1972. p.155-74 (Proceedings series).
32. PRICE, W.J. Statistics of detection systems. In: PRICE, W.J. Nuclear radiation detection. New York, N.Y., McGraw-Hill, 1958. p.53-66.
33. REILLY, T.D.; MARTIN, E.R.; PARKER, J.L.; SPEIR, L.G.; WALTON, R.B. A continuous in-line monitor for  $\text{UF}_6$  enrichment. Nucl. Technol., 21: 318-27, Sep. 1974.

34. RUDSTAM, G.; SHALEV, S.; JONSSON, O.C. Delayed neutron emission from separated fission products. Nucl. Instrum. Meth., 120: 333-44, 1974.
35. SOARES, A.J. Determinação da queima de elementos combustíveis do IEAR-1 pelo método não-destrutivo de espectrometria gama. São Paulo, 1977. (Dissertação de mestrado).
36. WALTON, R.B.; AUGUSTSON, R.H.; EAST, L.V.; EVANS, A.E., FOLEY, J.E.; FORSTER, R.A.; KEEPIN, G.R.; MALANIFY, J. J.; MENLOVE, H.O.; MENZEL, J.H.; PARKER, J.L.; REILLY, T.D.; SMITH, D.B.; THORPE, M.M.; WEISBIN, C.R. Non-destructive analytical techniques for materials in the nuclear fuel cycle. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Analytical methods in the nuclear fuel cycle: proceedings of a symposium on ... held in Vienna, 29 November - 3 December, 1971. Vienna, 1972. p.353-72. (Proceedings series).
37. WALTON, R.B.; REILLY, T.D.; PARKER, J.L.; MENZEL, J.H.; MARSHALL, E.D.; FIELDS, L.W. Measurements of  $UF_6$  cylinders with portable instruments. Nucl. Technol., 21: 133-48, Feb. 1974.