

**MEDIDAS DE SECÇÕES DE CHOQUE MÉDIAS NO
ESPECTRO DE FISSÃO DO U-235, PARA
ALGUMAS REAÇÕES DE LIMIAR**

NORA LIA MAIDANA

Dissertação apresentada como parte
dos requisitos para obtenção do
Grau de Mestre em Tecnologia
Nuclear.

Orientador: Dr. Mauro da Silva Dias

**São Paulo
1993**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**MEDIDAS DE SECÇÕES DE CHOQUE MÉDIAS
NO ESPECTRO DE FISSÃO DO U-235, PARA
ALGUMAS REAÇÕES DE LINIAR**

Nora Lía Naidana

Dissertação apresentada como requisito
para obtenção do grau de mestre em
Tecnologia Nuclear

Orientador: Dr. MAURO da SILVA DIAS

São Paulo

1993

AGRADECIMENTOS:

ao Dr. Mauro da Silva Dias, orientador deste trabalho, pelas sugestões, apoio e dedicação durante o desenvolvimento desta dissertação;

à Dra. Marina F. Koskinas, pelas discussões e sugestões durante todo o desenvolvimento do trabalho;

ao Dr. Luiz Paulo Geraldo pelas sugestões e recomendações com respeito ao tratamento de covariâncias no cálculo de erros e a colaboração nos ensaios preliminares de medida de secção de choque pela técnica de traços de fissão;

à Dra. Linda Caldas, pela sua acolhida e oferecimento de estágio no IPEN-CNEN/SP;

ao Ing. Elías Palacios da Comisión Nacional de Energía Atómica, pela oportunidade oferecida para a realização deste trabalho;

à Msc. Janete Cristina Gonçalves Gaburo Carnero pela colaboração na preparação de fontes de tório;

à colega Eliane Pocobi, pela amizade, confecção dos desenhos, pesagem das amostras e ajuda ao longo deste trabalho;

às colegas Katia A. Fonseca, Cláudia C. Braga e Maria do Socorro Nogueira, pela amizade, colaboração e inúmeras correções idiomáticas;

a Ademar Pottiens Jr. e Maria da Penha Albuquerque pelo apoio e amizade;

à Sta. Maria Cristina Santos Ferreira pela colaboração dispensada neste trabalho;

ao pessoal de operação do reator IEA-R1, pela colaboração nas irradiações efetuadas;

a todo o pessoal da biblioteca do IPEN, pela atenção e colaboração;

a todos os colegas e amigos do SPD, que de alguma forma colaboraram na realização deste trabalho;

a meus pais e a Susana e Héctor pelo apoio, carinho e incentivo dedicados nestes dois anos de distância;

a Hernán Ponce Prieto, pela colaboração, apoio e amizade;

à Comisión Nacional de Energía Atómica - CNEA/Argentina;

ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, na pessoa do Superintendente Dr. Spero Penha Morato, pela possibilidade oferecida da realização deste trabalho;

a todos os que direta ou indiretamente colaboraram na execução deste trabalho.

**MEDIDAS DE SECÇÕES DE CHOQUE MÉDIAS NO ESPECTRO DE FISSÃO
DO U-235, PARA ALGUMAS REAÇÕES DE LIMIAR**

MORA LIA MAIDANA

RESUMO

As secções de choque médias no espectro de nêutrons de fissão do ^{235}U foram medidas pela técnica de ativação, para as seguintes reações de limiar: $^{115}\text{In}(n,n')^{115\text{m}}\text{In}$, $^{232}\text{Th}(n,f)\text{P.F.}$, $^{46,47,48}\text{Ti}(n,p)^{46,47,48}\text{Sc}$, $^{55}\text{Mn}(n,2n)^{56}\text{Mn}$, $^{51}\text{V}(n,\alpha)^{48}\text{Sc}$, $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}$, $^{93}\text{Nb}(n,2n)^{92\text{m}}\text{Nb}$, $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$, $^{26}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$, $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$, $^{59}\text{Co}(n,\alpha)^{56}\text{Mn}$ e $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)^{60}\text{Co}$. As folhas de ativação foram irradiadas próximo (≈ 4 mm) ao núcleo do reator de pesquisas IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP. O reator operou a 2 MW de potência, obtendo uma densidade de fluxo de nêutrons rápidos de aproximadamente 5×10^{12} n.cm $^{-2}$.s $^{-1}$. Esta densidade de fluxo foi monitorada por meio de reações que possuem valores de secções de choque médias bem conhecidos e apresentam limiares efetivos acima de 1 MeV. As atividades das folhas foram determinadas por meio de um espectrômetro de HPGe, previamente calibrado. O espectro de nêutrons foi calculado utilizando o sistema de deconvolução SAIPS, aplicado aos dados de ativação. Foi efetuada uma análise de erro detalhada, aplicando a metodologia de matriz de covariância. Os resultados foram comparados com os outros autores.

**AVERAGED CROSS SECTION MEASUREMENTS IN U-235 FISSION
NEUTRON SPECTRUM FOR SOME THRESHOLD REACTIONS**

NORA LÍA MAIDANA

ABSTRACT

The average cross section in the ^{235}U fission spectrum has been measured by the activation technique, for the following threshold reactions: $^{115}\text{In}(n,n')^{115\text{m}}\text{In}$, $^{232}\text{Th}(n,f)\text{P.F.}$, $^{46,47,48}\text{Ti}(n,p)^{46,47,48}\text{Sc}$, $^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$, $^{51}\text{V}(n,\alpha)^{48}\text{Sc}$, $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}$, $^{93}\text{Nb}(n,2n)^{92\text{m}}\text{Nb}$, $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$, $^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$, $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$, $^{59}\text{Co}(n,\alpha)^{56}\text{Mn}$ and $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)^{60}\text{Co}$. The activation foils were irradiated close (≈ 4 mm) to the core of the IEA-R1 research reactor in the IPEN-CNEN/SP. The reactor was operated at 2 MW yielding a fast neutron flux around 5×10^{12} n.cm $^{-2}$.s $^{-1}$. The neutron flux density was monitored by activation reactions with well known averaged cross sections and with effective thresholds above 1 MeV. The foil activities were measured in a calibrated HPGe spectrometer. The neutron spectrum has been calculated using the SAIPS unfolding system applied to the activation data. A detailed error analysis was performed using the covariance matrix methodology. The results were compared with those from other authors.

SUMÁRIO

pág.

| | |
|--|-----------|
| INTRODUÇÃO..... | 1 |
| CAPÍTULO 1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS..... | 6 |
| 1.1 INTERAÇÃO DOS NÊUTRONS RÁPIDOS COM A MATÉRIA..... | 6 |
| 1.2 ESPECTRO DE ENERGIA DOS NÊUTRONS DE FISSÃO..... | 13 |
| 1.3 SECÇÕES DE CHOQUE MÉDIAS PARA REAÇÕES DE LINIAR..... | 17 |
| 1.4 DETERMINAÇÃO DO ESPECTRO DE NÊUTRONS POR MEIO DE MONITORES DE ATIVAÇÃO..... | 20 |
| CAPÍTULO 2. PARTE EXPERIMENTAL..... | 22 |
| 2.1 MÉTODO UTILIZADO PARA A MEDIDA DE SECÇÃO DE CHOQUE..... | 22 |
| 2.2 PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL..... | 25 |
| 2.2.1 PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS..... | 25 |
| 2.2.2 IRRADIAÇÃO DAS AMOSTRAS..... | 28 |
| 2.2.3 MEDIDA DA ATIVIDADE DAS AMOSTRAS..... | 31 |
| 2.2.3.1 DESCRIÇÃO DO SISTEMA DE MEDIDA..... | 31 |
| 2.2.3.2 MEDIDA DAS AMOSTRAS..... | 33 |

| | |
|---|-----------|
| CAPÍTULO 3. ANÁLISE E TRATAMENTO DOS DADOS..... | 34 |
| 3.1 CÁLCULO DA ATIVIDADE DAS AMOSTRAS..... | 34 |
| 3.2 DETERMINAÇÃO DA CURVA DE EFICIÊNCIA DO HPGe..... | 35 |
| 3.3 CÁLCULO DA ÁREA SOB O PICO DE ABSORÇÃO TOTAL..... | 38 |
| 3.4 CORREÇÕES APLICADAS..... | 41 |
| 3.4.1 DECAIMENTO..... | 41 |
| 3.4.2 FATOR GEOMÉTRICO..... | 42 |
| 3.4.3 TEMPO MORTO..... | 44 |
| 3.4.4 ATENUAÇÃO NA PRÓPRIA AMOSTRA..... | 44 |
| 3.5 CÁLCULO TEÓRICO DA ATIVIDADE PARA O ⁴⁷Sc..... | 45 |
| 3.6 CÁLCULO DAS SECÇÕES DE CHOQUE MÉDIAS..... | 46 |
| 3.7 CÁLCULO DOS ERROS..... | 47 |
| 3.7.1 ERROS NAS EFICIÊNCIAS DE DETECÇÃO..... | 47 |
| 3.7.2 ERROS NAS ATIVIDADES DAS AMOSTRAS..... | 50 |
| 3.7.3 CÁLCULO DE ERROS NAS SECÇÕES DE CHOQUE MÉDIAS..... | 53 |
| 3.8 OBTENÇÃO DO ESPECTRO DE NÊUTRONS..... | 54 |

| | |
|--|-----------|
| CAPÍTULO 4. RESULTADOS OBTIDOS E DISCUSSÃO..... | 56 |
| 4.1 RESULTADOS OBTIDOS..... | 56 |
| 4.1.1 CURVA DE CALIBRAÇÃO DA EFICIÊNCIA DO DETECTOR HPGa..... | 56 |
| 4.1.2 ATIVIDADE DOS PRODUTOS DAS REAÇÕES..... | 58 |
| 4.1.3 DENSIDADE DE FLUXO MÉDIA..... | 60 |
| 4.1.4 SECÇÕES DE CHOQUE MÉDIAS..... | 61 |
| 4.2 DISCUSSÃO DOS RESULTADOS..... | 63 |
| 4.2.1 COMPARAÇÃO DOS VALORES DE SECÇÕES DE CHOQUE..... | 63 |
| 4.2.2 COMPARAÇÃO DO ESPECTRO CALCULADO COM RELAÇÃO AOS ESPECTROS PUROS TIPO WATT E MAXWELLIANO..... | 66 |
| CAPÍTULO 5. CONCLUSÕES..... | 70 |
| APÊNDICE A..... | 73 |
| APÊNDICE B..... | 78 |
| REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS..... | 80 |

INTRODUÇÃO

É de grande importância um conhecimento exato das secções de choque médias ($\bar{\sigma}$) induzidas por nêutrons nos espectros padrões de referência, isto é, nos espectros de fissão do ^{235}U ou do ^{252}Cf , para as reações de limiar dos materiais estruturais^[11]. Estes materiais estão presentes no núcleo dos reatores, blindagens e refletores, componentes dos circuitos refrigerantes, depósitos de combustíveis, transporte e plantas de reprocessamento.

Os valores das secções de choque médias no espectro de fissão do ^{235}U são utilizados nos cálculos ligados ao enriquecimento do combustível, queima, variação da reatividade, características cinéticas e de segurança dos reatores, caracterização do espectro de nêutrons em determinados pontos de interesse, quantidade de danos induzidos pela irradiação com nêutrons, ativação dos materiais e eficiência das blindagens e refletores^[46].

Os valores das secções de choque médias são utilizados, também, na verificação da consistência nas respectivas secções de choque diferenciais. Este é o interesse principal para o caso do espectro de fissão do ^{252}Cf .

Os dados experimentais de $\bar{\sigma}$ de diversas reações com limiares de ativação apresentam discrepâncias entre si ou com os valores calculados, e as incertezas associadas a essas secções de choque são, em alguns casos, maiores que as desejáveis nas aplicações dosimétricas^[14,18,24-28,32]. Conseqüentemente, há uma necessidade de novas medidas desses parâmetros com o objetivo de achar a fonte de tais discrepâncias, e de reduzir as incertezas.

Nestas medidas, é importante incluir os efeitos das correlações entre os erros com o objetivo de alcançar os limites de confiança reais, além de especificar de que maneira as incertezas afetam os diversos dados. A correlação entre os erros também é importante quando são feitas avaliações considerando dados experimentais de diversos autores^[33,42].

O espectro de nêutrons da fissão do ^{235}U apresenta uma distribuição espectral entre $\sim 0,18$ MeV até ~ 20 MeV^[43]. No caso em que os nêutrons de fissão são obtidos diretamente em um reator, deve ser considerada a flutuação de potência durante a operação, que é consequência desta queima e da alteração do posicionamento das barras de segurança e controle. Isso pode gerar uma variação na densidade de fluxo de nêutrons durante a operação do reator.

Em razão da variação temporal na potência do reator, é necessário, um conhecimento exato do valor da densidade de fluxo, e este deve ser determinado na própria posição de irradiação e durante a experiência.

Diferentes autores efetuaram numerosas medidas de secções de choque médias no espectro de fissão do ^{235}U em diferentes campos de nêutrons, tais como: no interior do núcleo de reatores nucleares^[14,32,35], placas de fissão de urânio^[18,25], cavidades esféricas de fissão^[32] ou reatores rápidos^[46].

Como exemplo, Zijp^[50] comparou valores de secções de choque médias no espectro de fissão medidas (determinadas pela técnica de ativação) e calculadas (com os arquivos de dados de secções de choque ENDF/B-V, e a biblioteca DOSCROS81), observando acentuadas discrepâncias entre ambos os valores.

Assim, justifica-se o objetivo do presente trabalho que consiste em determinar as secções de choque médias no espectro de fissão do U-235, com uma análise completa das incertezas, para as seguintes reações de limiar: $^{46,47,48}\text{Ti}(n,p)$, $^{46,47,48}\text{Sc}$, $^{55}\text{Mn}(n,2n)$, ^{54}Mn , $^{24}\text{Mg}(n,p)$, ^{26}Na , $^{90}\text{Zr}(n,2n)$, ^{89}Zr , $^{232}\text{Th}(n,f)$ P.F., $^{51}\text{V}(n,\alpha)$, ^{48}Sc , $^{93}\text{Nb}(n,2n)$, ^{92}Nb , $^{58}\text{Ni}(n,2n)$, ^{57}Ni , $^{115}\text{In}(n,n')$, $^{115\text{m}}\text{In}$, $^{59}\text{Co}(n,\alpha)$, ^{56}Mn e $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)$, ^{60}Co .

Estas secções de choque são de interesse, em razão das discrepâncias entre os valores medidos e calculados, que são apresentados na literatura, como por exemplo, nas bibliotecas de secção de choque do IRDF-85^[7] e IRDF-90^[51]. De modo especial, a Agência Internacional de Energia Atômica mostrou interesse, apoiando parcialmente o presente trabalho com a aprovação de um projeto de pesquisa relacionado com estas medidas.

A técnica de medida proposta neste trabalho é a de ativação de folhas, pela irradiação simultânea de amostras próximo ao núcleo do reator IEA-R1 do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares. Esta técnica oferece as seguintes vantagens nas medidas efetuadas em reatores^[20,24,44]:

- a.- controle da sensibilidade sobre um intervalo amplo de taxas de fluência de nêutrons. Por meio da escolha de materiais com diferentes secções de choque, é possível fazer medidas em baixas densidades de fluxos (menos que 10^3 nêutrons.cm⁻².seg⁻¹) ou com os altos valores obtidos num reator nuclear ($\geq 10^{12}$ nêutrons.cm⁻².seg⁻¹);
- b.- seleção da resposta com as energias desejadas, pela escolha de materiais com limiares de ativação adequados;
- c.- tamanho reduzido, o que permite sua localização em qualquer local dentro do reator, isto é, em posições de irradiação entre os elementos combustíveis, nos canais de refrigeração, ou também dentro de elementos combustíveis especialmente preparados. Além disto, o efeito de absorção de nêutrons pode-se fazer desprezível pela escolha dos materiais ou mediante a aplicação de uma pequena correção;
- d.- resposta baixa à radiação gama intensa;
- e.- estabilidade mecânica. Podem suportar altas temperaturas;
- f.- técnicas relativamente simples de determinação das atividades.
- g.- erros sistemáticos relativamente pequenos.

O capítulo 1 do presente trabalho apresenta uma revisão geral da interação dos nêutrons rápidos com a matéria, os aspectos mais importantes sobre espectro de energias dos nêutrons de fissão, a obtenção das secções de choque médias para reações de limiar e a determinação do espectro de nêutrons por meio de monitores de ativação.

A metodologia experimental está apresentada no capítulo 2.

O capítulo 3 é destinado a análise e tratamento de dados, assim como às considerações sobre o cálculo dos erros.

No capítulo 4 são apresentadas as análises dos resultados obtidos.

O capítulo 5 apresenta as conclusões obtidas e as recomendações para trabalhos futuros.

CAPÍTULO 1

FUNDAMENTOS TEÓRICOS

1.1 INTERAÇÃO DOS NÊUTRONS RÁPIDOS COM A MATÉRIA

Os nêutrons são desprovidos de carga e portanto não podem interagir através da força coulombiana, a qual é dominante nos mecanismos de perda de energia dos elétrons e de outras partículas carregadas. A interação dos nêutrons se dá por meio das reações nucleares. A secção de choque para uma dada reação é função da energia do nêutron e das características do núcleo alvo.

Os feixes de nêutrons podem abranger um intervalo amplo de energia, desde frações de eV até dezenas de MeV. Para a discussão dos aspectos gerais das reações nucleares induzidas por nêutrons, pode-se classificar os nêutrons em três categorias dependendo de sua energia cinética^[3]:

- nêutrons lentos, com energias inferiores a 1 keV. Esta categoria de nêutrons inclui os nêutrons térmicos, que se encontram próximos do equilíbrio termodinâmico com os átomos do moderador. A distribuição de energia dos nêutrons térmicos frequentemente pode ser aproximada pela distribuição de Maxwell;

- nêutrons intermediários, com energias entre 1 keV e 500 keV. Neste intervalo de energias se encontram os nêutrons cujas colisões elásticas com os átomos do moderador possibilitam o processo de moderação;

- nêutrons rápidos, com energias entre 0,5 MeV e 20 MeV. Nesta faixa encontram-se os nêutrons emergentes de reações nucleares;

- nos reatores nucleares não existem nêutrons com energias maiores que 20 MeV. Estes nêutrons recebem o nome de nêutrons ultra-rápidos, e são obtidos por meio de reações nucleares utilizando aceleradores de partículas.

Torna-se conveniente também classificar os núcleos-alvo em: leves ($A < 25$), intermediários ($25 < A < 80$) e pesados ($A > 80$).

As reações nucleares com nêutrons podem ser de dois tipos: reações com formação de núcleo composto ou reações diretas.

No primeiro caso, o nêutron une-se ao núcleo-alvo formando um núcleo composto de meia-vida relativamente longa (da ordem de 10^{-17} seg)^[3], cuja energia de excitação é igual à soma da energia cinética e a energia de ligação do nêutron (7-10 MeV para núcleos intermediários e 6-7 MeV para núcleos pesados). Há vários modos de decaimento para este tipo de reações:

- o espalhamento elástico composto, denotado por (n,n) (também chamado espalhamento de ressonância), ocorre quando o nêutron é emitido com a mesma energia do nêutron incidente, no referencial do centro-de-massa. O processo é, em consequência, uma colisão elástica;

- quando o nêutron emitido possui uma energia menor que o nêutron incidente, o núcleo residual fica em um de seus estados excitados. A desexcitação deste núcleo residual se dá pela emissão de um ou mais raios gama. Este processo é chamado espalhamento inelástico composto, denotado por (n,n') ;

- na captura radiativa, (n,γ) , a energia de excitação do núcleo composto é emitida na forma de radiação gama;

- para energias de excitação do núcleo composto suficientemente altas, se dá o fenômeno de emissão de partículas carregadas ou mais de um nêutron, estas são as reações do tipo (n,α) , (n,p) , (n,np) , $(n,2n)$, etc.;

- o fenômeno de fissão pode ocorrer para os núcleos mais pesados. Neste processo, a massa dos produtos da reação é muito menor que a do núcleo alvo mais a do nêutron, ocasionando a liberação de grandes quantidades de energia, na forma de energia cinética dos produtos de fissão.

No caso de reações diretas, o processo de interação ocorre sem a formação do núcleo composto. A reação direta mais importante é o espalhamento elástico direto (n,n) , frequentemente denominado espalhamento potencial. Esta interação corresponde à deflexão do nêutron incidente pelo potencial nuclear médio, representado por todas as interações com os outros núcleons. Este tipo de reação pode ocorrer com qualquer energia de nêutron, enquanto o espalhamento elástico-composto é uma reação de ressonância que só ocorre quando a energia de excitação coincide com um dos níveis excitados do núcleo composto.

As secções de choque totais dos núcleos, são compostas da secção de choque para espalhamento elástico-direto, que varia suavemente com a energia do nêutron, e das secções de choque para formação do núcleo composto, que possuem variações abruptas nas energias de ressonância. No caso em que o espaçamento entre as ressonâncias seja pequeno, poderá haver a formação de um contínuo, com uma variação mais suave na secção de choque com respeito a energia do nêutron.

A secção de choque total para núcleos leves com nêutrons lentos, é dominada pelo espalhamento potencial com variação suave com a energia do nêutron. Nesta região o valor da secção de choque para o espalhamento potencial é cerca de quatro vezes a secção de choque geométrica. Acima de $\sim 0,5$ MeV ocorrem as ressonâncias, isoladas e bem espaçadas em energia, podendo ocorrer o espalhamento elástico composto e reações de partícula carregada.

Para núcleos intermediários, o espalhamento potencial é dominante apenas para nêutrons lentos. Para nêutrons intermediários são dominantes o espalhamento elástico composto e a captura radiativa. As ressonâncias permanecem espaçadas com energias de vários keV. Para nêutrons rápidos a secção de choque apresenta uma variação contínua. As reações de partícula carregada e espalhamento inelástico ocorrem para energias acima de 0,5 MeV.

Para núcleos pesados as ressonâncias estão muito próximas. Para nêutrons com energias de alguns keV, ocorre a sobreposição parcial das ressonâncias, seguida pela variação contínua na secção de choque. A captura radiativa ocorre para energias inferiores a algumas centenas de keV. Para energias mais altas, predomina o espalhamento elástico, reações (n,2n) e de emissão de partículas carregadas.

A função resposta (probabilidade de ocorrência) de uma dada reação é governada pela energia gasta ou absorvida no processo. Se a massa do núcleo-alvo mais a do nêutron incidente é maior que a dos produtos da reação, há uma liberação de energia, e a reação é possível em princípio, com energia zero do nêutron. Se por outro lado, a massa do núcleo-alvo mais a do nêutron incidente é menor que a dos produtos da reação, esta diferença de massa deve ser suprida na forma de energia cinética do nêutron incidente. A reação só é possível com nêutrons de energia maior que um determinado valor mínimo, denominado energia limiar (E_{thr}).

A relação entre energia limiar e o valor do Q da reação é dada por^[17]:

$$E_{thr} = - Q \frac{(A + 1)}{A} \quad (1.1)$$

onde:

A = número de massa do núcleo alvo.

Para satisfazer o equilíbrio básico da reação, as partículas carregadas emergentes, como é o caso das reações (n,p) , (n,α) , devem atravessar a barreira de potencial eletrostático do núcleo para que a reação ocorra. Este fato é descrito por uma função de probabilidade denominada penetrabilidade, P . A probabilidade de ocorrência da reação aumenta com a energia do nêutron incidente, e a energia limiar aparente da reação será maior que a energia mínima teórica, sendo denominada energia efetiva, E_{eff} . Quando os materiais são irradiados por nêutrons de fissão, e considerando que estes possuem uma distribuição de energias, $\phi(E)$, a taxa de reação, R , dependente da energia será dada por⁽¹⁹⁾:

$$R(E) = \phi(E) \cdot P(E) \quad (1.2)$$

O significado da energia efetiva é que a taxa de reação correta é obtida pela suposição de que nenhum nêutron com energia menor que E_{eff} contribui na reação, enquanto que todos aqueles com energia maior contribuem com penetrabilidade igual a um. Na prática, a maioria das reações deste tipo tem limiares aparentes acima de 1 MeV, mesmo que a reação seja exotérmica.

As secções de choque diferenciais $\sigma(E)$, para algumas das reações estudadas no presente trabalho podem ser observadas na figura 1.1. Nestas curvas pode-se ver que as funções que descrevem as secções de choque diferenciais para cada um dos tipos de interação são bastante diversificadas e não é possível relacionar diferentes processos sem considerar a energia dos nêutrons.

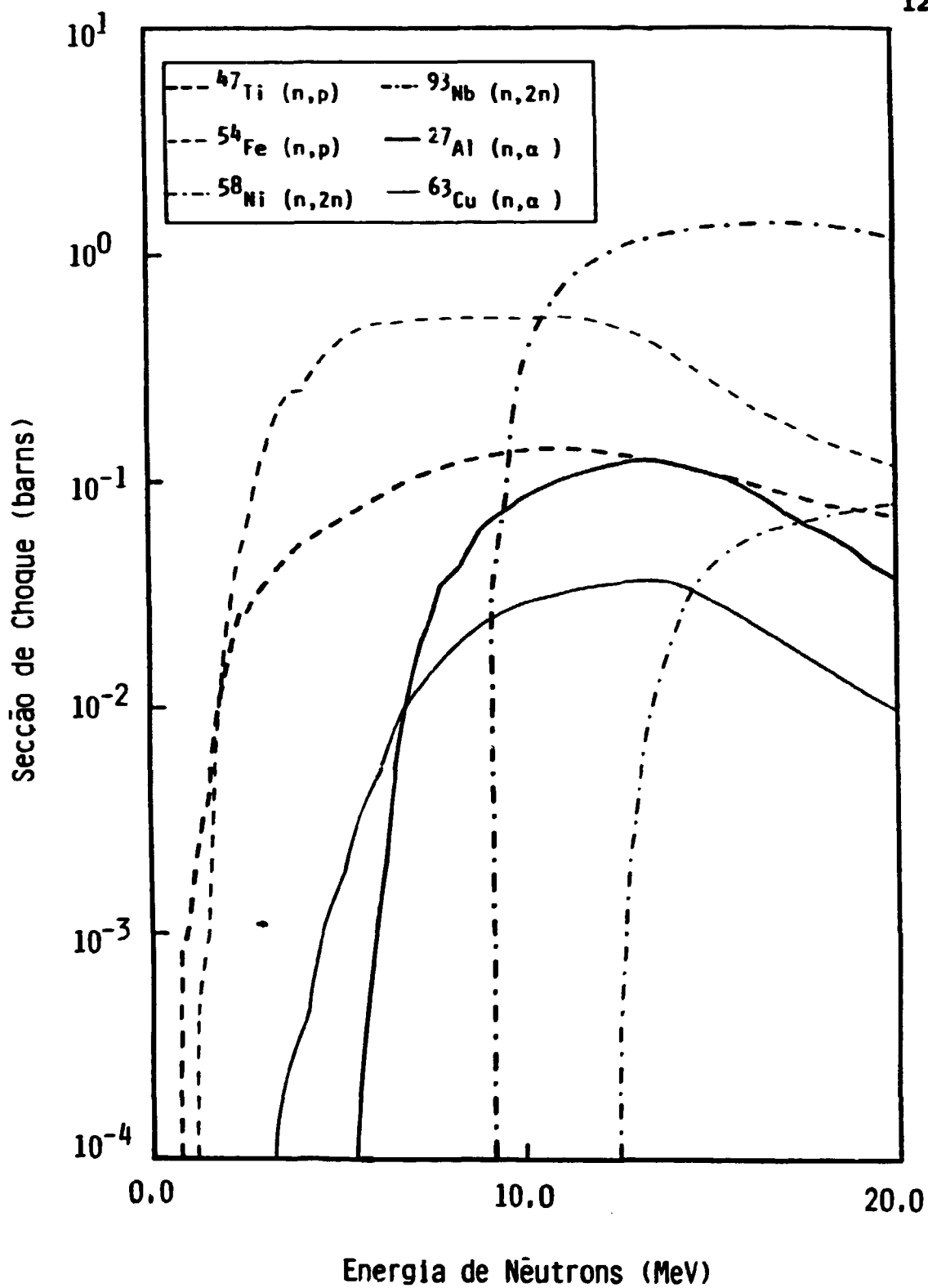


Figura 1.1: Curvas de seção de choque diferencial para alguns dos materiais estudados^[22].

1.2 ESPECTRO DE ENERGIA DOS NÊUTRONS DE FISSÃO

Em 1939, O. Hahn e F. Strassman⁽¹⁹⁾ descobriram que um núcleo de urânio, depois da absorção de um nêutron, podia dividir-se em dois fragmentos, de aproximadamente igual massa, com energia cinética extremamente alta. Este processo, chamado fissão, difere das reações (n,p) e (n, α), pelo fato que nessas reações as partículas carregadas são emitidas com energia moderada (vários MeV) e o núcleo residual possui massa e carga similar à do núcleo inicial. Na fissão, as massas e cargas dos fragmentos são da ordem da metade do núcleo de urânio e a energia cinética liberada na reação é de aproximadamente 200 MeV. Dentre os núcleos pesados, encontram-se aqueles que se fissionam espontaneamente, como é o caso do ^{252}Cf , os que fissionam com nêutrons de qualquer energia, denominados núcleos fisíveis, como o ^{235}U , ^{233}U e ^{239}Pu , ou aqueles cujas secções de choque apresentam limiares em torno de 0,5 a 1,5 MeV⁽⁴⁹⁾, denominados núcleos fissionáveis, como por exemplo o ^{238}U , ^{232}Th ou ^{237}Np .

O espectro de nêutrons da fissão do ^{235}U , é um dos espectros padrões de referência, juntamente com o espectro de fissão do ^{252}Cf , em razão da reprodutibilidade e semelhança do campo de nêutrons por eles gerados⁽³⁴⁾. As vantagens de usar o espectro da fissão do ^{235}U induzida por nêutrons térmicos, como campo de nêutrons padrão são⁽²³⁾:

- a.- o ^{235}U é disponível em quantidades suficientes para possibilitar as medidas de espectros de fissão;

- b.- a principal impureza, o ^{238}U , não fissiona com nêutrons incidentes desde energias térmicas até algumas centenas de keV;
- c.- a atividade específica do ^{235}U é comparativamente baixa;
- d.- é aplicável para medidas no interior de reatores.

O processo de fissão para um núcleo de ^{235}U pode ser descrito por meio da seguinte relação:



onde:

F_1 e F_2 são os produtos de fissão;

$\langle \nu \rangle$ é o número médio de nêutrons emitidos por fissão.

Os nêutrons produzidos no processo da fissão são de dois tipos: os nêutrons prontos, emitidos num tempo da ordem de 10^{-14} seg, que constituem 99 % da emissão total, e os nêutrons atrasados, com uma emissão de 1 % da emissão total, provenientes da desexcitação dos produtos de fissão^[30].

Para a maioria dos elementos fissionáveis, foi medida a distribuição de energias dos nêutrons produzidos no processo de fissão. Várias relações empíricas foram ajustadas aos resultados experimentais, dentro da precisão das medidas. Uma das expressões mais comumente usada é a expressão de Watt^[48]:

$$\phi(E) = A e^{-E} \sinh\sqrt{2E} \quad (1.3)$$

onde:

E é a energia do nêutron dada em MeV;

$\phi(E)$ o número de nêutrons por unidade de energia, e

$\lambda = [2/(\pi e)]^{1/2} = 0,484$ é uma constante de normalização.

Tem sido efetuadas modificações nesta expressão, que incluem outras constantes de ajuste^[20].

Outra expressão bastante utilizada é a da distribuição de Maxwell^[20]:

$$\phi(E) = \frac{E}{k T} \exp\left[-\frac{E}{k T}\right] \quad (1.4)$$

onde:

k é a constante de Boltzmann;

T é a temperatura do moderador em °K.

A distribuição de energia dos nêutrons prontos emitidos no processo de fissão varia entre 0,18 MeV até 20 MeV^[43], sendo o valor médio da energia dos nêutrons em torno de 2 MeV. Na figura 1.2 pode-se observar o número de nêutrons por unidade de energia, em função da energia do nêutron. Observa-se um máximo por volta dos 0,75 MeV, decrescendo exponencialmente ou quase exponencialmente para energias acima dos 2 MeV.

O espectro de energias dos nêutrons num reator nuclear, não é, em geral, idêntico ao espectro de fissão, em razão dos efeitos de absorção e espalhamento no moderador e da distribuição espacial dos nêutrons produzidos. Porém, em geral, o espectro de fissão é frequentemente usado como uma primeira aproximação do espectro de nêutrons, próximo a estas fontes de nêutrons, para energias superiores a 1,5 MeV^[20].

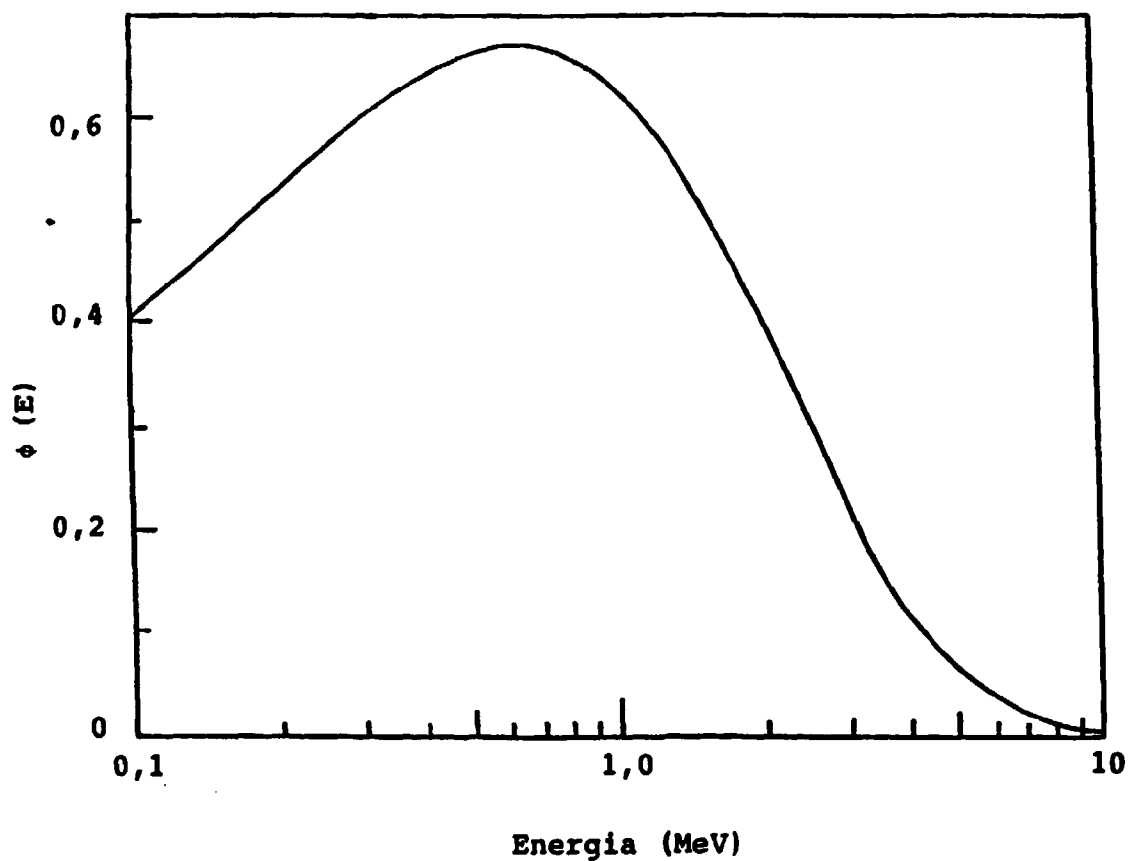


Figura 1.2: Distribuição de energia dos nêutrons prontos emitidos no processo de fissão, em função da energia do nêutron^[20].

1.3 SECÇÕES DE CHOQUE MÉDIAS PARA REAÇÕES DE LINIAR

A secção de choque média, para um intervalo de energias de nêutron $[E_1, E_2]$, é dada por:

$$\bar{\sigma} = \frac{\int_{E_1}^{E_2} \sigma(E) \varphi(E) dE}{\int_{E_1}^{E_2} \varphi(E) dE} \quad (1.5)$$

onde:

$\sigma(E)$ é a secção de choque diferencial para a reação em consideração, e

$\varphi(E)$ é a densidade de fluxo de nêutrons incidentes na amostra, por intervalo de energia.

Em princípio, estas integrais podem ser resolvidas por meio do conhecimento da secção de choque diferencial $\sigma(E)$ e do espectro de nêutrons $\varphi(E)$. Entretanto, este método só é aplicável nos casos em que estes parâmetros sejam bem conhecidos, para não acarretar incertezas grandes nos valores da secção de choque média calculados.

Para o caso de reações de liníar, um método conveniente de medida de $\bar{\sigma}$ é o método de ativação. Este método consiste em irradiar-se uma amostra em um espectro de nêutrons bem conhecido como, por exemplo, o de nêutrons produzidos na fissão de ^{235}U ou ^{252}Cf , e medir-se posteriormente a atividade induzida no núcleo residual. Este foi o método escolhido no presente trabalho, conforme é descrito no capítulo 2.

A expressão da atividade saturada, A_{sat} , induzida em um detector de ativação é dada por^[20]:

$$A_{sat} = N \int_0^{\infty} \sigma(E) \phi(E) dE \quad (1.6)$$

onde:

N é o número de átomos-alvo do detector,

A relação entre atividade saturada e a atividade A , da amostra irradiada durante um tempo t_i e após um tempo de espera t_e é dada por:

$$A_{sat} = \frac{A e^{\lambda t_e}}{(1 - e^{-\lambda t_i})} \quad (1.7)$$

onde:

λ é a constante de desintegração do radionuclídeo considerado.

A equação (1.6) pode ser reescrita como:

$$A_{esp} = \frac{A_{sat}}{N} = \int_0^{\infty} \sigma(E) \phi(E) dE \quad (1.8)$$

onde:

A_{esp} denominada atividade específica, é a atividade saturada do produto da reação, dividida pelo número de átomos-alvo do detector.

A expressão da direita é a integral da função resposta $\sigma(E)\phi(E)$, chamada resposta integral. Essa resposta integral é obtida diretamente das medidas com detectores de ativação.

A componente rápida do espectro de nêutrons de um reator induz uma atividade que pode ser utilizada nas análises de ativação por nêutrons. Para esta análise é preciso conhecer a secção de choque média no espectro de nêutrons rápidos. Como a forma desse espectro rápido de nêutrons muda de um reator para outro, é conveniente definir precisamente a secção de choque média.

Se o espectro de nêutrons é o espectro de fissão do ^{235}U induzida por nêutrons térmicos, a densidade de fluxo integrada sob todo o espectro pode ser dada pela equação^[20]:

$$\phi = \int_0^{\infty} \varphi(E) dE \quad (1.9)$$

onde:

$\varphi(E)$ é a distribuição de energias dos nêutrons de fissão do ^{235}U , e

$E_1 = 0$, $E_2 = \infty$, são aproximações dos valores reais (0,18 MeV e 20 MeV^[43])

Define-se a secção de choque média no espectro de fissão do ^{235}U induzida por nêutrons térmicos pela relação^[6]:

$$\bar{\sigma} = \frac{1}{\phi} \int_0^{\infty} \sigma(E) \varphi(E) dE \quad (1.10)$$

Para detectores com limiar de ativação, a secção de choque da equação (1.10) pode ser substituída por uma secção de choque idealizada, cuja função resposta seja nula até um determinado valor de energia E_{eff} = energia limiar efetiva, tornando-se constante acima deste valor de energia, sempre que o espectro de nêutrons seja conhecido. Deste modo, pelas equações (1.8) e (1.10) tem-se^[44]:

$$A_{esp} = \int_0^{\infty} \sigma(E) \varphi(E) dE = \bar{\sigma} \phi \quad (1.11)$$

Desta maneira, normalizando o valor da atividade específica com relação ao espectro de nêutrons de fissão, pode ser obtida a secção de choque média para a reação de limiar. Ou seja:

$$\bar{\sigma} = \frac{A_{esp}}{\phi} \quad (1.12)$$

1.4 DETERMINAÇÃO DO ESPECTRO DE NÊUTRONS POR MEIO DE MONITORES DE ATIVAÇÃO

Para determinar a distribuição de energias (espectro) dos nêutrons $\varphi(E)$, por meio de monitores de ativação deve-se dispor de vários monitores, cada um deles sensível a um único e estreito intervalo de energias. A atividade relativa de cada um deles definirá o espectro no intervalo coberto. Infelizmente, é difícil determinar o espectro de nêutrons rápidos com boa exatidão, em razão de não existirem monitores ideais.

As incertezas nas secções de choque influenciam a exatidão dos cálculos, e a escolha dos monitores está limitada pelas condições experimentais. Todos os métodos para obter o espectro de nêutrons a partir de dados de ativação são complexos matematicamente e requerem soluções computacionais.

Esses métodos se baseiam na solução de sistemas de equações, uma para cada detector, das quais são conhecidas as atividades saturadas e as funções resposta (secções de choque diferenciais). A solução dos sistemas de equações podem ser divididos em três categorias^[20]:

- a.- métodos matemáticos nos quais o espectro de nêutrons diferencial é representado por funções elementares;
- b.- métodos de perturbações nos quais são calculados os desvios com relação a um espectro de entrada;
- c.- métodos nos quais o espectro diferencial é representado por funções simples, porém, incluindo uma função de ponderação baseada na forma do espectro suposto sob toda a região de interesse.

O método utilizado no presente trabalho, pertence à segunda categoria. O programa de cálculo, SAND-II^[39] é um programa de deconvolução de espectros de nêutrons calculados através de atividades saturadas medidas. O procedimento de cálculo aplicado ao presente trabalho é descrito no item 3.8.

CAPÍTULO 2

PARTE EXPERIMENTAL

2.1 MÉTODO UTILIZADO PARA A MEDIDA DE SECÇÃO DE CHOQUE

Existem vários métodos para determinar a secção de choque para reações induzidas por nêutrons. Alguns deles são:

- a.- transmissão de nêutrons: método aplicável para a medida da secção de choque total de uma substância. Neste método, tem-se um feixe de nêutrons com energia bem definida. A secção de choque é obtida por meio da lei de atenuação exponencial⁽¹³⁾, medindo-se a intensidade do feixe de nêutrons com e sem a presença da amostra, cuja densidade superficial de átomos seja bem conhecida;
- b.- técnica de tempo-de-vôo: método aplicável a feixes pulsantes de nêutrons, em que a energia do nêutron é determinada pela distância à fonte de nêutrons e pelo seu tempo-de-vôo. Com este método é possível determinar-se a secção de choque diferencial em energia;

- c.- detectores de traços: aplicável quando a reação induzida por nêutrons produz partículas carregadas pesadas, com energia suficiente para produzir um dano no detector, o qual dá origem a um traço. As características deste traço podem ser relacionadas com a direção e energia do nêutron e o número de traços está associado à fluência de nêutrons. Este método é muito usado para reações de fissão induzidas por nêutrons e reações do tipo (n,α) ;
- d.- método de ativação: aplicável nos casos em que o núcleo residual é radioativo, e é possível determinar a sua taxa de desintegração (atividade), pela medida dos pósitrons, elétrons ou raios gama emitidos. Este foi o método escolhido no presente trabalho.

Para uma amostra de espessura fina, irradiada por um tempo t_1 , sob uma taxa de fluência ϕ ($\text{cm}^{-2} \text{seg}^{-1}$), a atividade A , pode ser determinada num tempo t_2 , após o final da irradiação, pela equação seguinte, obtida das equações (1.7) e (1.12):

$$A = \phi N \bar{\sigma} (1 - e^{-\lambda t_1}) e^{-\lambda t_2} \quad (2.1)$$

onde:

$\lambda = 0,693/T_{1/2}$ é a constante de desintegração do núcleo residual, e

N o número de átomos iniciais.

Desta maneira, se ϕ é conhecido e A pode ser medida, é possível obter-se $\bar{\sigma}$.

As reações estudadas são apresentadas na tabela 2.1, juntamente com a energia limiar de ativação, além de outros parâmetros nucleares relevantes. No presente trabalho, as atividades dos nuclídeos produtos das reações foram determinadas por espectrometria gama em um detector de HPGe (item 2.2.3).

Tabela 2.1: Características das reações e dos núcleos produtos. Os números entre parênteses correspondem aos erros absolutos nos últimos algarismos do valor da grandeza.

| Reação | E_{thr} [MeV] | Porcentagem isotópica [%] | $T_{1/2}$ [d] | E_{γ} [MeV] | I_{γ} [%] |
|--|--------------------|---------------------------------|------------------|----------------------------|-----------------------------------|
| $^{115}\text{In}(n,n')^{115m}\text{In}$ | 1,2 | 95,79 | 0,1869 (2) | 336,24 | 46,7 (6) |
| $^{232}\text{Th}(n,f)^{95}\text{Zr}$ | | | 64,05 (6) | 756,74 | 55,0 (3) |
| $^{232}\text{Th}(n,f)^{140}\text{Ba}$ | 1,4 | 100 | 12,746 (10) | 487,02 | 45,9 (4) |
| $^{51}\text{V}(n,\alpha)^{48}\text{Sc}$ | 2,1 | 99,75 | 1,8333 (25) | 983,50 1037,5 | 100,0 (5) 97,5 (5) |
| $^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$ | 2,2 | 7,4 | 3,351 (2) | 159,38 | 68,0 (2) |
| $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ | 2,8 | 68,27 | 70,86 (7) | 810,77 | 99,45 (1) |
| $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$ | 3,1 | 5,8 | 312,3 (4) | 834,82 | 99,9760 (20) |
| $^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$ | 3,9 | 8,1 | 83,83 (2) | 889,25 1120,51 | 99,9840 (10) 99,9870 (10) |
| $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$ | 6,0 | 91,8 | 0,107437 (25) | 846,75 | 98,9 (3) |
| $^{59}\text{Co}(n,\alpha)^{56}\text{Mn}$ | 6,8 | 100 | 0,107437 (25) | 846,75 | 98,9 (3) |
| $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)^{60}\text{Co}$ | 6,8 | 69,17 | 1925,5 (5) | 1173,23 1332,50 | 99,857 (22) 99,9831 (6) |
| $^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$ | 6,8 | 78,99 | 14,960 (6) | 1368,53 | 100 |
| $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ | 7,2 | 100 | 14,960 (6) | 1368,53 | 100 |
| $^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$ | 7,6 | 73,8 | 1,8333 (25) | 175,35 983,50 1037,5 | 7,47 (8) 100,0 (5) 97,5 (5) |
| $^{93}\text{Nb}(n,2n)^{92}\text{Nb}$ | 11,0 | 100 | 10,15 (2) | 934 | 99,2 (2) |
| $^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$ | 11,6 | 100 | 312,3 (4) | 834,84 | 99,9758 (24) |
| $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}$ | 13 | 51,5 | 3,2679 (32) | 909,2 | 99,87 (10) |
| $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ | 13,5 | 68,27 | 1,5033 (37) | 1377,59 | 77,9 (23) |

Como monitores da densidade de fluxo de nêutrons durante a irradiação das amostras foram escolhidas as reações: $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$, $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ e $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$. Estas reações possuem características como meia-vida, probabilidade de emissão gama por decaimento e secções de choque médias bem conhecidas. Além disso, seus limiares de ativação de 2,8 MeV, 3,1 MeV e 7,2 MeV, respectivamente, possibilitam abranger um amplo intervalo do espectro de nêutrons.

2.2 PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

2.2.1 PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS

Na tabela 2.1 também são apresentadas as características principais dos materiais irradiados, percentagem isotópica desse nuclídeo, além da meia-vida, energia gama e probabilidade de emissão gama por decaimento do radionuclídeo produzido pela reação.

Foram utilizados discos metálicos obtidos comercialmente (Reactor Experiments) com 12,7 mm de diâmetro e espessuras variando entre 0,0508 e 0,760 mm, com exceção do In e Nb para os quais foram utilizados fios com 0,762 mm e 0,508 mm de diâmetro, respectivamente, de composição isotópica natural e cujas purezas variaram entre 99,642 a 99,991 %^[45].

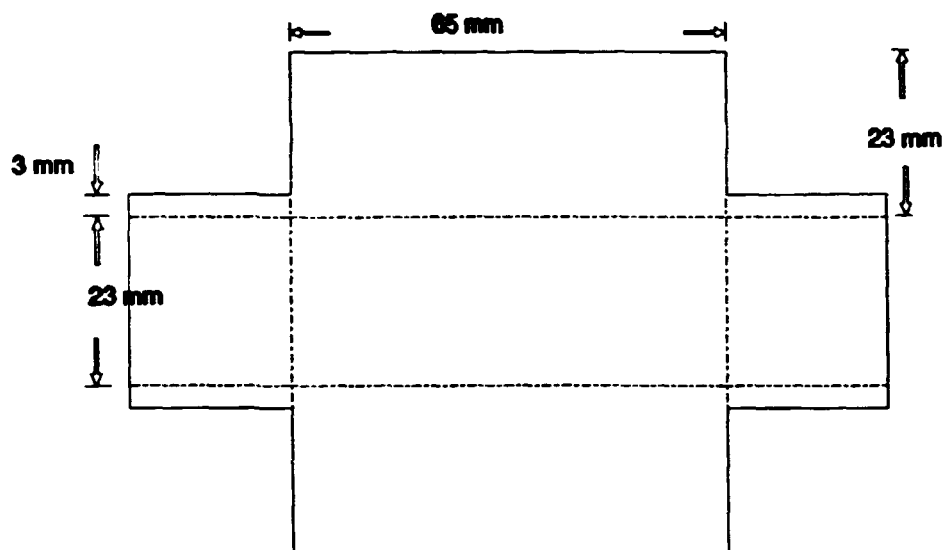
As amostras antes de serem irradiadas foram limpas com solução de acetona para eliminar possíveis resíduos da superfície.

As massas das amostras foram determinadas em uma balança analítica Metter M5SA, com um erro de $\pm 20 \mu\text{g}$.

Após a pesagem, os materiais foram envolvidos individualmente em folha fina de alumínio, assim como o conjunto das folhas; este por sua vez foi disposto em um suporte de alumínio de 0,5 mm de espessura e dimensões 18x20x60 mm (figura 2.1).

Para minimizar a ativação provocada por reações (n,γ) induzidas por nêutrons térmicos, o suporte com o conjunto de folhas foi introduzido em uma caixa de cádmio de 0,5 mm de espessura e dimensões 23x23x65 mm, conforme mostra a figura 2.1.

BASE (Cd)



TAMPA (Cd)

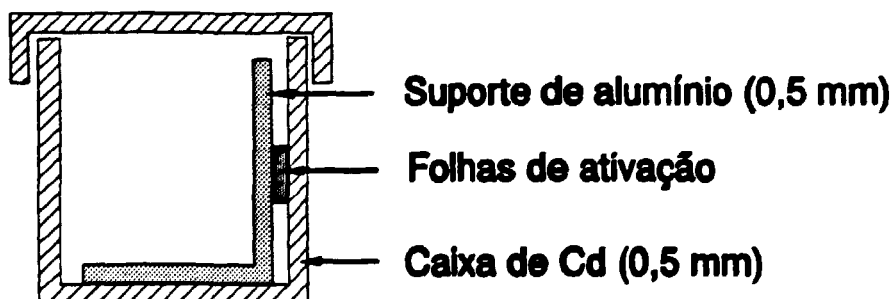
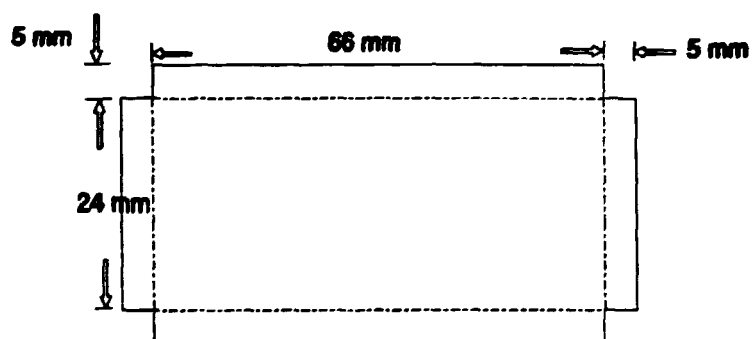


Figura 2.1: Esboço da caixa de cádmio; disposição do suporte de alumínio e folhas de ativação.

2.2.2 IRRADIAÇÃO DAS AMOSTRAS

As amostras foram irradiadas próximas do núcleo do reator IEA-R1 do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares. O reator IEA-R1 é um reator de pesquisa tipo piscina, de 2 MW de potência, com combustíveis do tipo MTR (material testing reactor), compostos por 18 placas planas paralelas.

As placas combustíveis, fabricadas em forma de sanduíche, tem na região central uma liga de urânio-alumínio de espessura 0,51 mm, possuindo 45% em peso de urânio enriquecido a 93% em ^{235}U . A liga U-Al possui um encamisamento de alumínio de 0,51 mm de espessura, sendo portanto 1,53 mm a espessura total da placa. A quantidade de ^{235}U por placa é, em média, 10,3 gramas; a largura ativa da placa é de 62 mm em média e o comprimento ativo de 598 mm em média^[37].

O núcleo do reator IEA-R1 consiste basicamente em um arranjo cúbico de elementos combustíveis inseridos numa placa matriz, juntamente com refletores, dispositivos de irradiação e detectores de nêutrons. A placa matriz é sustentada por uma estrutura de alumínio e contém furos dentro dos quais os elementos combustíveis e refletores de grafite são encaixados para os diversos arranjos críticos possíveis [figura 2.2].

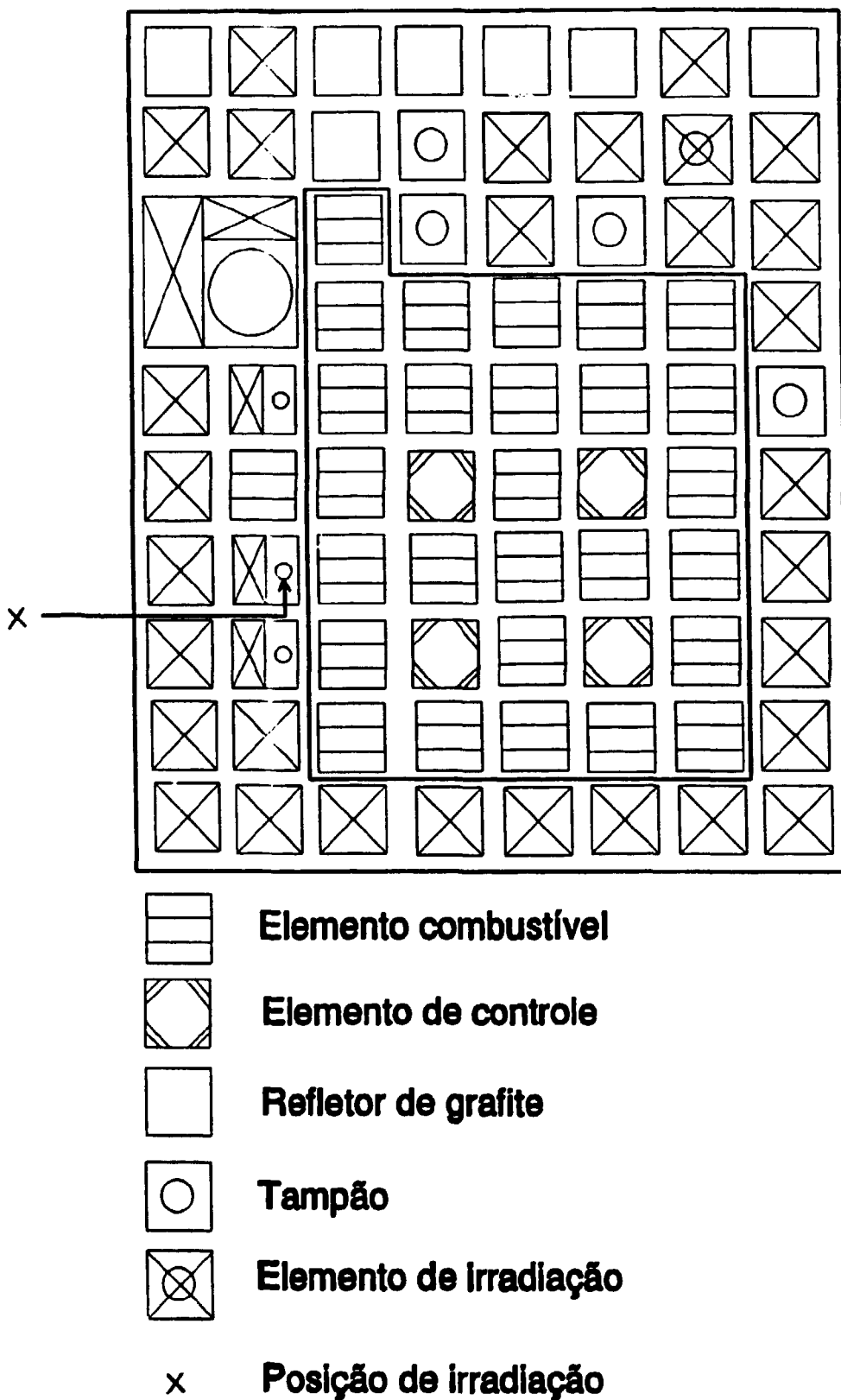


Figura 2.2: Esboço da configuração do núcleo do reator IEA-R1.

As irradiações foram efetuadas na posição 62, prateleira 5. Esta posição foi escolhida por estar a meia altura do núcleo e por apresentar uma pequena distância (~4 mm) com relação ao elemento combustível. Deste modo espera-se que o espectro de nêutrons deve ser semelhante ao espectro de fissão do ^{235}U ^[14], uma vez que a moderação pela água é pequena. Em razão da alta densidade de fluxo de nêutrons rápidos ($\sim 5 \times 10^{12}$ n.cm⁻².s⁻¹)^[14], esta posição permite a medida de secções de choque relativamente baixas (\geq dezenas de μb).

Foram efetuadas várias irradiações cujos períodos variaram entre uma e oito horas. Na escolha desses tempos de irradiação levou-se em conta a massa das amostras, as secções de choque a serem estudadas, percentagem isotópica do nuclídeo, assim como a meia-vida dos produtos de ativação^[6,31,49].

Os diferentes períodos de irradiação foram escolhidos de modo a obter atividades induzidas nas amostras, suficientemente altas para-se obter uma boa estatística de medida, porém, não tão altas que produzissem saturação no sistema detecção.

2.2.3 MEDIDA DA ATIVIDADE DAS AMOSTRAS

2.2.3.1 DESCRIÇÃO DO SISTEMA DE MEDIDA

Para medir a atividade das folhas ativadas, foi utilizado um detector de Germânio Hiper Puro (HPGe), marca INTERTECHNIQUE - tipo EGC 20, de geometria cilíndrica com diâmetro externo 51,2 mm e área sensível 20,6 cm², diâmetro interno 10 mm e volume sensível 99,7 cm³. O detector foi operado a -3000 Volts. A taxa de contagem típica foi da ordem de 1000 cps.

O sistema eletrônico utilizado é apresentado na figura 2.3. Este sistema é constituído pelo detector de HPGe acoplado a um pré-amplificador e um filtro de alta tensão, constituindo uma única peça. O pré-amplificador marca INTERTECHNIQUE, possui uma constante de tempo de 4 µs. Este conjunto está montado em contato com nitrogênio líquido, por meio de um dedo frio. Todo o conjunto está blindado contra campos eletromagnéticos.

Características dos demais componentes do sistema:

a.- Fonte de Alta Tensão

Modelo ORTEC 459, possui ajuste contínuo

0 a 5 kV e 0 a 500 kV e estabilidade < 0,1 %

b.- Amplificador

Modelo ORTEC 572, com uma constante de

tempo: 2 µs

c.- Gerador de Pulsos, frequência 60 Hz,

estabilidade 50 ppm/volt/dia.

Modelo CABBERRA 1501

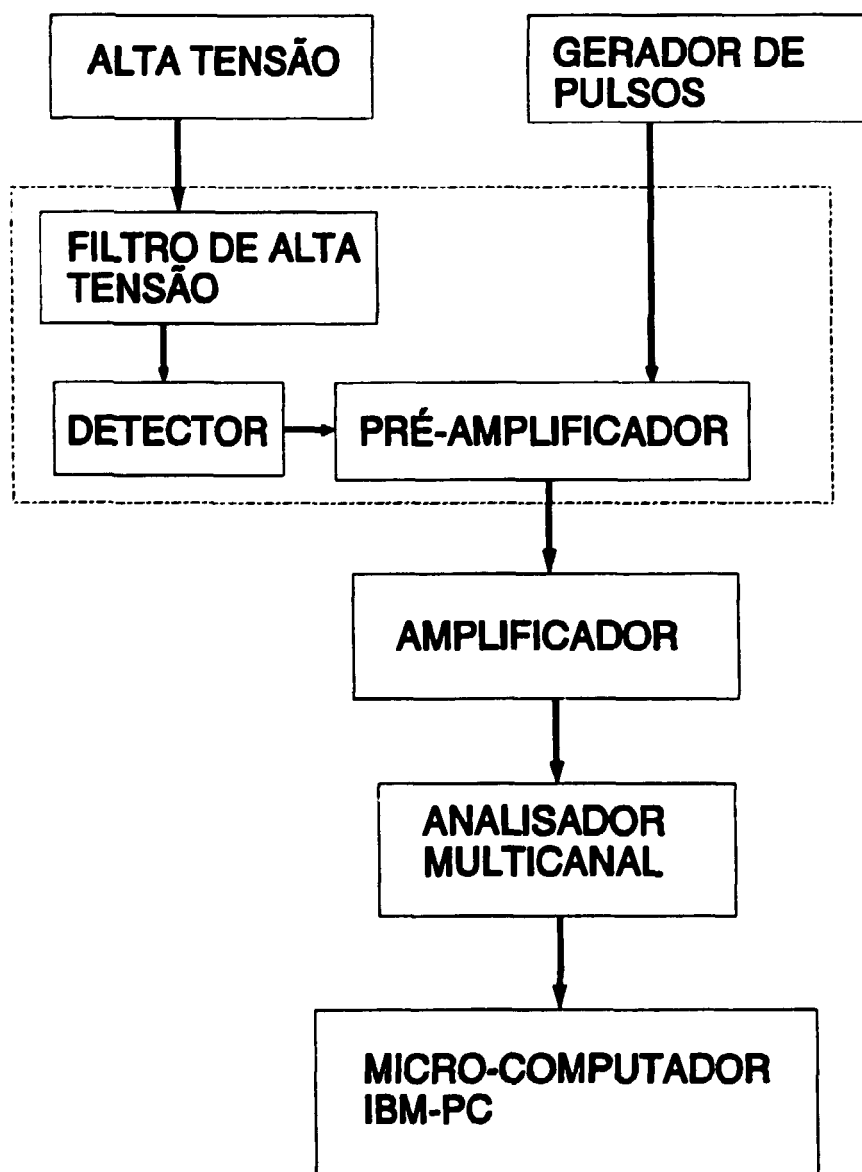


Figura 2.3: Sistema eletrônico para medição da radiação gama.

d.- Analisador Multicanal

Modelo IEN 115001, é composto por:

- Interface Multicanal, modelo IEN 11019
- Conversor analógico/digital, modelo 11020
(módulo NIM)
- Programa gerenciador

e.- Micro Computador tipo PC-XT.

As amostras foram colocadas em um suporte de lucite, preso a um par de tubos guias de aço inox, de modo a manter-se a uma distância fonte-detector com alta reprodutibilidade ($\pm 0,3$ mm). A distância entre a fonte e a superfície externa do detector de HPGe foi de 17,23 cm.

2.2.3.2 MEDIDA DAS AMOSTRAS

As energias gama das linhas estudadas estão no intervalo entre 159,38 keV e 1377,59 keV correspondentes aos decaimentos do ^{47}Sc e ^{57}Ni respectivamente, conforme mostra a tabela 2.1.

Os tempos de espera das contagens variaram entre duas horas e vários dias, enquanto que os tempos de contagem variaram entre 1000 e 50000 s, dependendo da taxa de contagem do detector e da meia-vida dos nuclídeos^[6,31,49]. Esses tempos de medida foram escolhidos de modo a se obter uma boa estatística de contagem sob os picos de absorção total de interesse, para a determinação das atividades.

CAPÍTULO 3

ANÁLISE E TRATAMENTO DOS DADOS

3.1 CÁLCULO DA ATIVIDADE DAS AMOSTRAS

A atividade das amostras foi calculada a partir dos espectros medidos, meia-vida, energias e taxa de emissão gama por decaimento, tempo de medida e eficiências obtidas pela interpolação da curva de calibração para cada radionuclídeo produzido. Os espectros da radiação de fundo natural, também medidos, foram subtraídos do espectro da fonte considerada. O programa de cálculo utilizado foi o UNITBG5⁽⁶⁾, desenvolvido no laboratório de Metrologia Nuclear. Este programa calcula a atividade seguindo a seguinte equação:

$$A = \frac{S}{\epsilon_{\gamma}(E) I_{\gamma} T} f \quad (3.1)$$

onde:

- A** = atividade (Bq);
- S** = área sob o pico de absorção total para a energia γ considerada;
- $\epsilon_{\gamma}(E)$** = eficiência de detecção para a energia E ;
- I_{γ}** = probabilidade de emissão gama por decaimento da linha considerada;

- T** = tempo de medida;
- f** = fator de correção que leva em conta as correções de geometria, tempo morto, empilhamento e atenuação na própria amostra (item 3.4).

3.2 DETERMINAÇÃO DA CURVA DE EFICIÊNCIA DO HPG

A fim de determinar a taxa de emissão gama dos fótons incidentes no detector, é preciso calcular a sua eficiência de detecção para uma geometria particular. Para isso foram utilizadas as fontes padrões de ^{60}Co , ^{152}Eu , ^{137}Cs e ^{133}Ba , fornecidas pela Agência Internacional de Energia Atômica.

As características, como atividade, meia-vida, energia gama e probabilidade de emissão gama de decaimento das fontes padrões, utilizadas na calibração da eficiência em função da energia estão apresentadas na tabela 3.1^[21].

Tabela 3.1: Características das fontes padrões utilizadas para determinar a curva de eficiência de detecção do HPGe.

| Fonte | Atividade $\times 10^5$ | $T_{1/2}$ | E_γ | I_γ |
|-------------------|----------------------------|-------------|------------|------------|
| | [Bq] | [d] | [keV] | [%] |
| ^{152}Eu | 4,04(0,06) | 4933(11) | 121,78 | 28,37(13) |
| | | | 244,70 | 7,53(4) |
| | | | 344,28 | 26,58(11) |
| | | | 411,13 | 2,238(10) |
| | | | 443,97 | 3,125(14) |
| | | | 778,90 | 12,97(6) |
| | | | 867,39 | 4,214(25) |
| | | | 964,06 | 14,63(6) |
| | | | 1112,29 | 13,54(6) |
| | | | 1408,02 | 20,85(9) |
| ^{60}Co | 3,792(0,02) | 1925,5(0,5) | 1173,24 | 99,857(22) |
| | | | 1332,50 | 99,983(6) |
| ^{137}Cs | 4,065(0,040) | 11020(6) | 661,66 | 85,1(2) |
| ^{133}Ba | 3,766(0,045) | 3862(15) | 276,40 | 7,147(30) |
| | | | 302,85 | 18,30(6) |
| | | | 356,02 | 61,94(14) |
| | | | 383,85 | 8,905(29) |

A curva de calibração da eficiência $\epsilon_\gamma(E)$, em função da energia foi obtida para o intervalo de 244,70 keV a 1408,02 keV, numa posição bem definida (a 17,23 cm sobre o eixo do detector).

O número de eventos registrados por fóton emitido pela fonte, $\epsilon_\gamma(E)$, é função da atividade A da fonte, do número de contagens sob o pico de absorção total em consideração, S , da probabilidade de emissão gama por decaimento, I_γ , do tempo de contagem, T , e do fator de correção, f (item 3.4). Esta quantidade pode ser obtida rearranjando a equação (3.1)^[16]:

$$\epsilon_\gamma(E) = \frac{S f}{A I_\gamma T} \quad (3.2)$$

Uma vez medidas as fontes padrões, determinou-se a eficiência de detecção, por meio de um programa de cálculo (UNITBG5⁽⁸⁾), que leva em consideração os seguintes fatores: área sob o pico de absorção total, para cada linha de energia de decaimento no espectro da fonte, número de contagens no espectro de alturas de pulso da contagem de fundo natural, atividade das fontes e meia-vida, tempo transcorrido desde a sua calibração, tempo de medida, energia e probabilidade de emissão gama por decaimento, assim como os fatores de correção que são apresentados no item 3.4.

Como foram efetuadas várias medidas de cada fonte a fim de melhorar a estatística de contagem, calculou-se as eficiências médias considerando cada uma das linhas de energia.

O cálculo dos parâmetros de ajuste da curva de eficiência em função da energia foi efetuado com um programa que utiliza o método de ajuste por mínimos quadrados (LSSOLVER⁽⁶⁷⁾) e inclui a metodologia de matriz de covariâncias. Esta por sua vez, foi calculada utilizando o programa CALCOV⁽¹⁵⁾, considerando as correlações devidas à atividade das fontes padrões, tempo morto, decaimento da fonte, fator de atenuação e probabilidade de emissão gama por desintegração.

Para o ajuste foi escolhido um polinômio de segundo grau, resultado da aplicação do teste F de Snedecor^(1,5).

A curva ajustada da eficiência em função da energia pode ser representada genericamente como^[16]:

$$\ln \epsilon_{\gamma}(E) = \sum_{k=0}^{k=n} a_k (\ln E)^k \quad (3.3)$$

onde:

n = grau do polinômio. Em nosso caso particular

$$n = 2.$$

3.3 CÁLCULO DA ÁREA SOB O PICO DE ABSORÇÃO TOTAL

Existem vários métodos para determinar a área sob o pico de absorção total nos espectros de energias obtidos em um multicanal (KOKTA^[29]). Esses métodos podem ser subdivididos em dois grupos: aqueles que obtêm a área a partir do ajuste de uma função analítica e aqueles que a obtêm da soma direta das contagens entre limites pré-estabelecidos. Em ambas as aproximações, a contribuição da radiação de fundo onde cada pico está superposto, deve ser subtraída, canal por canal. Os dados dos canais adjacentes ao pico são os que possibilitam um ajuste analítico para estimar esta radiação de fundo.

O método adotado neste trabalho foi o de integração numérica descrito a seguir, e ilustrado pela figura 3.1.

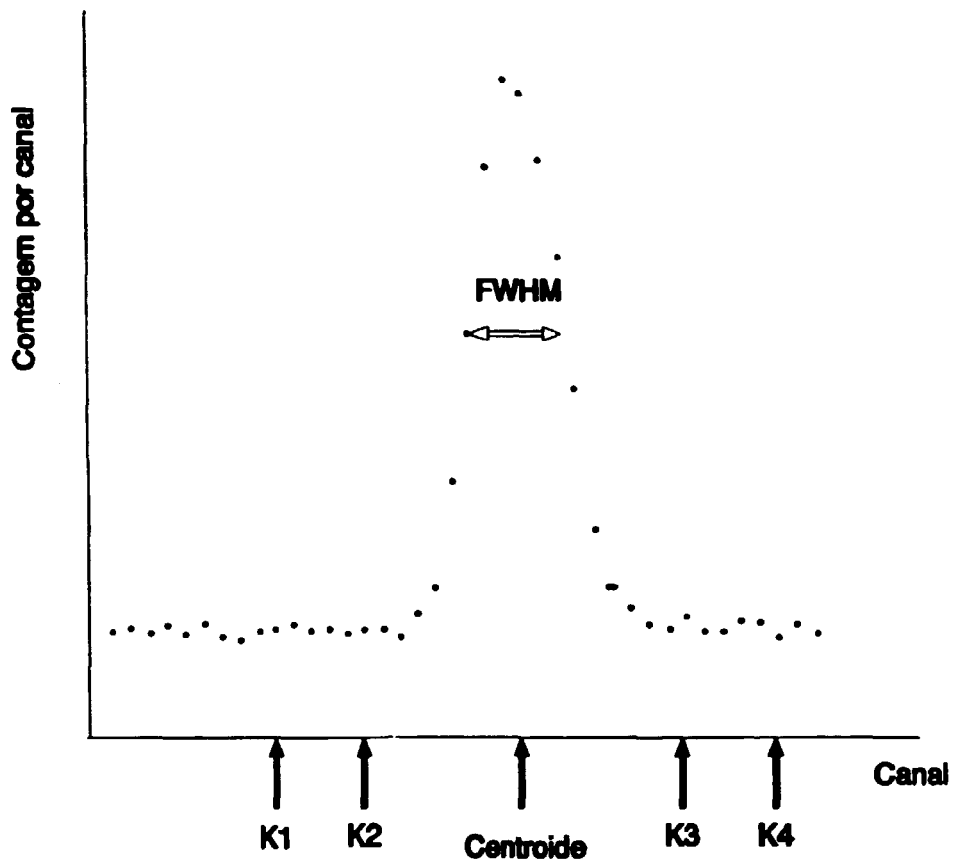


Figura 3.1: Método de integração da área sob o pico de absorção total.

Uma vez identificado a centróide e possuindo a resolução (FWHM -largura a meia altura) do pico, os canais K1, K2, K3 e K4 foram determinados, onde:

KP = canal da centróide;

K1 = início da contagem de fundo = $KP - 3 \text{ FWHM}$;

K2 = início do pico de absorção total = $KP - 2 \text{ FWHM}$;

K3 = fim do pico de absorção total = $KP + 2 \text{ FWHM}$;

K4 = fim da contagem de fundo = $KP + 3 \text{ FWHM}$.

A região de contagem de fundo adotada foi considerada suficientemente afastada do pico de modo a não conter contagens provenientes da fonte e suficientemente próxima para evitar a contagem de outros picos do espectro, com energias próximas.

A área sob o pico de absorção total foi calculada segundo a expressão^[8]:

$$S = \sum_{K2+1}^{K3-1} C_i - (S_B \cdot F_K) \quad (3.4)$$

onde:

C_i = contagens do canal i ;

S_B = área sob o espectro de contagens de fundo, dada pela fórmula (3.5);

F_K = fator que leva em consideração o número de canais do pico de absorção total e o número de canais da região do fundo.

A área sob o espectro das contagens de fundo, S_B , é dado por^[8]:

$$S_B = \sum_{K1}^{K2} C_i + \sum_{K3}^{K4} C_i \quad (3.5)$$

3.4 CORREÇÕES APLICADAS

3.4.1 DECAIMENTO

A atividade A de uma fonte radioativa num determinado instante, é função da atividade inicial, A_0 , do tempo t transcorrido entre a sua calibração ou produção e o instante da medida, a meia-vida, $T_{1/2}$, desse nuclídeo. Este fato pode ser expresso pela equação:

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \frac{\lambda t_m}{(1 - e^{-\lambda t_m})} \quad (3.6)$$

onde:

λ é a constante de decaimento do radionuclídeo,

$\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$, sendo $T_{1/2}$ a meia-vida, e

t_m = tempo de medida.

O último termo leva em conta o decaimento da atividade durante o tempo de medida (t_m).

No caso de parada do reator durante a irradiação, foi efetuada a correção que leva em conta o primeiro período de irradiação, o tempo de espera e o segundo período de irradiação, dependendo assim, do número de períodos de irradiação e espera. Como o programa de cálculo utilizado para determinar as atividades não leva em conta os casos de parada do reator, utilizou-se um fator de correção, baseado no quociente entre a atividade calculada e a atividade real, esta última dada pela equação seguinte^[41], para o caso de dois períodos de irradiação:

$$A_r = A_0 [1 - e^{-\lambda t_{i1}} - e^{-\lambda(t_{i1} + t_{e1} + t_{i2})} + e^{-\lambda(t_{e1} + t_{i2})}] \quad (3.7)$$

onde:

t_{i1} = primeiro período de irradiação,

t_{i2} = segundo período de irradiação,

t_{e1} = tempo de espera entre a primeira e segunda irradiação.

3.4.2 FATOR GEOMÉTRICO

Para uma geometria específica, a medida absoluta do número de fótons de uma determinada energia incidentes num detector, depende da obtenção (em forma empírica) da eficiência deste para o pico de absorção total. Essa eficiência é determinada com fontes padrões, cujas propriedades como meia-vida, energia e intensidade gama absoluta de decaimento, são bem conhecidas.

Detectores como Ge(Li)^[10] ou HPGe, possuem uma eficiência do pico de absorção total $\epsilon(E_\gamma, d)$ para fontes puntiformes a uma distância fonte-detector d , que é proporcional a $(d + d')^{-2}$, para d muito maior que o diâmetro da fonte ou detector. Nessa expressão d' é a distância de penetração efetiva no volume sensível do detector, que depende da energia do fóton. Desta maneira, a eficiência do pico de absorção total $\epsilon(E_\gamma, d)$ deve ser expressa de acordo com a equação^[10]:

$$\epsilon(E_\gamma, d) = \frac{\epsilon_0(E_\gamma)}{[d + d'(E_\gamma)]^2} \quad (3.8)$$

onde:

ϵ_0 é a eficiência do foton de energia E_γ , considerada como a eficiência intrínseca do pico de absorção total.

Para determinar a distância fonte-superfície do detector, d , foram consideradas as características geométricas do suporte das amostras, além das dimensões destas amostras.

O valor de d' foi determinado teóricamente, considerando o coeficiente de absorção do detector, $\mu(E)$, e a profundidade sensível do detector de HPGGe, $h = 51,2$ mm. O valor de d' foi obtido pela equação⁽¹⁰⁾:

$$d' = \frac{1}{\mu} \left[1 + \frac{\mu h}{1 - e^{-\mu h}} \right] \quad (3.9)$$

A distância entre as fontes padrões e a superfície do detector foi tomada como referência de maneira que o factor geométrico utilizado no cálculo das atividades das amostras foi calculado segundo a seguinte relação:

$$f_{geo} = \frac{(d_{amostra} + d')^2}{(d_{TARA} + d')^2} \quad (3.10)$$

A correção para tamanho finito das amostras foi considerada desprezível.

3.4.3 TEMPO MORTO

As perdas de contagens devidas ao tempo morto foram calculadas através do método do pulsador. Para isso, foram introduzidos pulsos eletrônicos por meio de um pulsador de precisão (figura 2.3). Pelo número de contagens do pico do pulsador, pode-se calcular a correção para tempo morto pela relação:

$$f_t = \frac{S_{p\ BG}}{S_{p\ fonte}} \quad (3.11)$$

onde:

$S_{p\ BG}$ = área do pico do pulsador no espectro da contagem de fundo natural,

$S_{p\ fonte}$ = área do pico do pulsador no espectro da fonte.

Por este método, foi possível também corrigir as contagens para o efeito de empilhamento dos pulsos.

3.4.4 ATENUAÇÃO NA PRÓPRIA AMOSTRA

O número I de fótons transmitidos por uma amostra de espessura x , com relação a um feixe incidente de intensidade I_0 foi determinada por^[13]:

$$I = I_0 e^{-\mu_0 \frac{x}{2}} \quad (3.12)$$

onde:

μ_0 é o coeficiente de atenuação linear total^[38].

3.5 CÁLCULO TEÓRICO DA ATIVIDADE PARA O ^{47}Sc

A energia gama do ^{47}Sc , é de 159,38 keV. A eficiência nesta energia não pode ser obtida pela curva de eficiência ajustada, uma vez que a extrapolação causaria um erro sistemático considerável. Para contornar este problema, a eficiência em 159,38 keV foi determinada a partir da eficiência na energia de 175,35 keV do ^{48}Sc . Por sua vez, a atividade do ^{48}Sc foi calculada utilizando suas linhas gama de alta energia.

A correção para a diferença entre as eficiências em 175,35 keV e 159,38 keV foi obtida teoricamente, conforme descrito a seguir.

A eficiência teórica de detecção é dada aproximadamente pela seguinte equação^[8].

$$\epsilon_{\text{teor}} = \Omega f_{\text{Lu}} f_{\text{Al}} f_{\text{Co}} \quad (3.13)$$

onde:

Ω é o ângulo sólido subtendido pelo cristal do detector, calculado pela fórmula:

$$\Omega = \frac{1}{2} (1 - \cos \alpha) \quad (3.14)$$

na qual:

$\alpha = \text{arc tg} [\text{raio do detector}/(d + d')];$

raio do detector = 2,56 cm;

d = distância fonte detector;

d' = distância efetiva de penetração no volume sensível do detector.

f_{Lu} é o fator de atenuação no lucite próximo ao detector;

f_{Al} é o fator de atenuação na capa de alumínio que envolve o detector (500 μm);

f_{Ge} é o fator de detecção do Germânio = $(1 - e^{-\mu h})$

O fator de correção da eficiência, F_c , é dado pela expressão:

$$F_c = \frac{\epsilon_{teor(159)}}{\epsilon_{teor(175)}} \quad (3.15)$$

O valor de F_c resultou igual a $(1,0154 \pm 0,0071)$.

Uma vez obtida a atividade do ^{48}Sc , produto da reação $^{48}\text{Ti}(n,p)$, e considerando que este radionuclídeo possui uma radiação gama com energia de 175,35 keV^[49], determinou-se a eficiência de detecção para esta linha por meio do programa UNITEG5^[8].

Com o valor da eficiência de detecção corrigido, determinou-se a atividade do ^{47}Sc , por meio deste mesmo programa.

3.6 CÁLCULO DAS SECÇÕES DE CHOQUE MÉDIAS

Uma vez determinada a atividade das amostras, calculou-se a densidade de fluxo de nêutrons, por meio do programa FLUX01 desenvolvido no presente trabalho, cuja listagem encontra-se no APÊNDICE A:

$$\phi = \frac{A_{esp}}{\sigma} \quad (3.16)$$

onde:

λ_{esp} = Atividade específica dos monitores, e

$\bar{\sigma}$ = secção de choque média dos monitores, para o espectro de fissão de ^{235}U .

As secções de choque utilizadas para este cálculo foram as obtidas por Mannhart^[32], iguais a $0,706 \pm 0,028$ mb, 109 ± 3 mb e $80,5 \pm 2,3$ mb, para as reações: $^{27}\text{Al}(n,\alpha)$, $^{58}\text{Ni}(n,p)$ e $^{54}\text{Fe}(n,p)$, respectivamente.

Uma vez determinada a densidade de fluxo para cada monitor e conhecendo os respectivos erros parciais, determinou-se a média ponderada por meio de um ajuste para um polinômio de grau zero. O parâmetro deste ajuste foi determinado pelo método dos mínimos quadrados através do programa LSSOLVER^[47].

O valor da densidade de fluxo média foi utilizado na equação (1.12), a qual, juntamente com o valor da atividade específica de cada amostra, permitiu obter a secção de choque média para o espectro de fissão de ^{235}U .

3.7 CÁLCULO DOS ERROS

3.7.1 ERROS NAS EFICIÊNCIAS DE DETECÇÃO

Uma vez identificadas as diferentes fontes de erro no processo de medida das fontes padrões, e tendo em consideração o cálculo da curva de eficiência em função da energia, obteve-se a matriz de covariância dos erros nas eficiências, V_e .

Na tabela 3.2 apresentam-se os erros parciais, em valores percentuais das fontes padrões, por linha de energia. Na mesma tabela são indicadas as correlações consideradas. As fontes de erro associadas ao cálculo da eficiência das fontes padrões foram:

- a.- atividade, σ_A , obtidos dos certificados das fontes, considerando um desvio padrão, composto por sua vez pelos erros sistemáticos e estatísticos;
- b.- área, σ_s , obtidos através do programa de cálculo UNITBG5^[8];
- c.- probabilidade de emissão gama por decaimento, $\sigma_{1\gamma}^{[21]}$;
- d.- tempo morto, σ_r , também obtido através dos cálculos do UNITBG5^[8];
- e.- atenuação na própria amostra, σ_{at} , obtido da propagação simples dos fatores introduzidos na equação (3.12) (item 3.4.4).

Tabela 3.2: Principais erros considerados no cálculo da eficiência de detecção (em %).

| Energia | σ_A | σ_S | σ_{IY} | σ_r | σ_{at} |
|-------------------|---------------|------------|---------------|------------|---------------|
| 244,70 | 1,57 | 0,51 | 0,53 | 0,30 | 0,17 |
| 344,28 | 1,57 | 0,26 | 0,41 | 0,30 | 0,16 |
| 411,13 | 1,57 | 1,49 | 0,45 | 0,30 | 0,15 |
| 443,97 | 1,57 | 1,16 | 0,45 | 0,30 | 0,15 |
| 778,90 | 1,57 | 0,57 | 0,46 | 0,30 | 0,12 |
| 867,39 | 1,57 | 1,32 | 0,59 | 0,30 | 0,11 |
| 964,06 | 1,57 | 0,56 | 0,41 | 0,30 | 0,11 |
| 1112,29 | 1,57 | 0,61 | 0,57 | 0,30 | 0,10 |
| 1408,02 | 1,57 | 0,50 | 0,43 | 0,30 | 0,09 |
| 1173,24 | 0,50 | 0,36 | 0,02 | 0,41 | 0,10 |
| 1332,50 | 0,50 | 0,37 | 0,01 | 0,41 | 0,09 |
| 661,66 | 0,52 | 0,15 | 0,23 | 0,41 | 0,13 |
| 276,39 | 1,12 | 0,60 | 0,42 | 0,41 | 0,17 |
| 302,85 | 1,12 | 0,34 | 0,33 | 0,41 | 0,17 |
| 356,02 | 1,12 | 0,18 | 0,22 | 0,41 | 0,16 |
| 383,85 | 1,12 | 0,53 | 0,32 | 0,41 | 0,16 |
| Correlação | 1 ou 0 | 0 | 0 | 1 | 0 |

A matriz de covariância dos erros nas eficiências de detecção foi calculada pelo programa CALCOV^[15], levando em consideração as correlações entre cada fonte de erro. Os termos da matriz de covariância foram calculados por meio da seguinte equação^[16]:

$$V_{i,j} = \sum_{l=1}^L s_{i,l,j} e_{il} e_{jl} \quad (3.17)$$

onde:

$s_{i,l,j}$ são os erros parciais, e

e_{il} e e_{jl} são as correlações parciais entre os erros.

Por sua vez, a matriz de covariância dos erros nos parâmetros de ajuste da curva de eficiências, V_{α} é dada por⁽¹⁶⁾:

$$V_{\alpha} = (A^t V_{\epsilon}^{-1} A)^{-1} \quad (3.18)$$

onde:

A é uma matriz $n \times m$ cujos elementos são

$$A_{ik} = (\ln \epsilon_j)^{k-1};$$

V_{ϵ} é a matriz de correlação dos erros nas eficiências cujos elementos $V_{\epsilon ij} = V_{\epsilon ij} / (\sigma_{\epsilon i} \sigma_{\epsilon j})$;

O superescrito t indica matriz transposta.

Com esses valores foi possível calcular as incertezas nas eficiências para os diferentes valores de energia, interpolados pela curva de calibração, assim como as correlações entre elas.

3.7.2 ERROS NAS ATIVIDADES DAS AMOSTRAS

Os erros nas eficiências de detecção das fontes em estudo e a matriz de correlação dos erros nas eficiências de detecção, (V_{ϵ}), foram obtidos por meio do programa EFFIC5⁽⁹⁾, versão ampliada do programa EFFIC⁽¹⁵⁾. As incertezas nas eficiências são uma das fontes de erro no cálculo das atividades. As outras fontes de incerteza provém da medida das amostras. Uma vez identificadas estas fontes de erro, foi possível obter a matriz de covariância dos erros nas atividades.

Na tabela 3.3 apresentam-se os erros parciais, em valores percentuais, nas atividades das amostras irradiadas. Os erros considerados foram: no tempo morto (σ_T), área (σ_S) e no fator de atenuação (σ_{at}), obtidos pelo procedimento descrito no item 3.7.1. Nesta tabela se apresentam também os correspondentes à meia-vida ($\sigma_{1/2}$)^[31,49] e eficiência (σ_e), que são as raízes quadradas dos valores pertencentes à diagonal principal da matriz de covariância dos erros nas eficiências (as quais foram obtidas pela interpolação da curva), o erro na probabilidade de emissão gama por decaimento ($\sigma_{1\gamma}$)^[31,49], e no fator geométrico (σ_g), este último obtido pela propagação simples da equação (3.10). O erro no número de átomos das amostras foi considerado desprezível.

Tabela 3.3: Erros parciais associados ao cálculo das atividades em (%).

| Reação | E(γ) (keV) | σ_r | $\sigma_{I\gamma}$ | σ_s | σ_{at} | σ_{TK} | σ_c | σ_g |
|--------------------------------|------------------------|------------|--------------------|------------|---------------|---------------|----------------------|------------|
| $^{115}\text{In}(n,n')$ | 336,24 | 0,56 | 1,28 | 0,15 | 0,020 | 0,09 | 1,38 | 0,3 |
| $^{232}\text{Th}(n,f)\dagger$ | 756,74 | 0,30 | 0,55 | 2,80 | 0,021 | 0,09 | 1,67 | 0,3 |
| $^{232}\text{Th}(n,f)\ddagger$ | 487,03 | 0,30 | 0,87 | 1,08 | 0,036 | 0,08 | 1,52 | 0,3 |
| $^{47}\text{Ti}(n,p)$ | 159,38 | 0,30 | 0,29 | 0,09 | 0,024 | 0,06 | -x- | 0,3 |
| $^{58}\text{Ni}(n,p)$ | 810,78 | 0,31 | 0,01 | 0,09 | 0,006 | 0,10 | 1,70 | 0,3 |
| $^{56}\text{Fe}(n,p)$ | 834,84 | 0,36 | 0,002 | 0,43 | 0,008 | 0,13 | 1,70 | 0,3 |
| $^{46}\text{Ti}(n,p)$ | 889,25 | 0,32 | 0,001 | 0,35 | 0,009 | 0,02 | 1,73 | 0,3 |
| | 1120,5 | 0,32 | 0,001 | 0,36 | 0,005 | 0,02 | 1,83 | 0,3 |
| $^{56}\text{Fe}(n,p)$ | 846,75 | 0,36 | 0,002 | 0,45 | 0,008 | 0,13 | 1,83 | 0,3 |
| $^{59}\text{Co}(n,\alpha)$ | 846,75 | 0,54 | 0,30 | 0,50 | 0,004 | 0,02 | 1,83 | 0,3 |
| $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)$ | 1173,24 | 0,30 | 0,02 | 5,04 | 0,008 | 0,03 | 1,71 | 0,3 |
| | 1332,50 | 0,30 | 0,01 | 4,87 | 0,008 | 0,03 | 1,85 | 0,3 |
| $^{24}\text{Mg}(n,p)$ | 1368,53 | 0,54 | 0,02 | 0,28 | 0,002 | 0,27 | 1,94 | 0,3 |
| $^{27}\text{Al}(n,\alpha)$ | 1368,53 | 0,51 | 0,001 | 0,40 | 0,001 | 0,03 | 1,94 | 0,3 |
| $^{48}\text{Ti}(n,p)$ | 983,50 | 0,32 | 0,50 | 0,44 | 0,008 | 0,23 | 1,77 | 0,3 |
| | 1037,5 | 0,32 | 0,51 | 0,46 | 0,008 | 0,23 | 1,79 | 0,3 |
| $^{93}\text{Nb}(n,2n)$ | 934 | 0,36 | 0,01 | 0,94 | 0,025 | 0,20 | 1,75 | 0,3 |
| $^{51}\text{V}(n,\alpha)$ | 983,50 | 0,35 | 0,50 | 1,66 | 0,002 | 0,23 | 1,77 | 0,3 |
| | 1037,5 | 0,35 | 0,51 | 1,71 | 0,002 | 0,23 | 1,79 | 0,3 |
| $^{55}\text{Mn}(n,2n)$ | 834,84 | 0,30 | 0,002 | 1,47 | 0,001 | 0,13 | 1,70 | 0,3 |
| $^{90}\text{Zr}(n,2n)$ | 909,20 | 0,47 | 0,01 | 2,03 | 0,006 | 0,10 | 1,74 | 0,3 |
| $^{58}\text{Ni}(n,2n)$ | 1377,59 | 0,31 | 0,29 | 0,62 | 0,009 | 0,25 | 1,97 | 0,3 |
| Correlação | | 1 | 0 | 0 | 0 | 1 ou 0 | V_r | 1 |

† ^{90}Zr

‡ ^{140}Ba

Com os valores descritos obteve-se a matriz de covariância dos erros nas atividades, dos produtos das reações em estudo, por meio do programa CALCOV^[15].

A atividade dos radionuclídeos com mais de uma energia gama foi determinada em forma independente para cada energia, e no caso da reação $^{232}\text{Th}(n,f)$, foram consideradas as atividades dos produtos de fissão ^{95}Zr e ^{140}Ba . Este fato implicou em uma matriz de covariâncias com uma dimensão igual ao número total de energias gama consideradas.

Por outro lado, o erro na atividade do ^{47}Sc , produto da reação $^{47}\text{Ti}(n,p)$, foi estimado pela propagação simples do erro na atividade do ^{48}Sc , dos erros parciais para esse nuclídeo, isto é, $\sigma_{I\gamma} = 0,29$, $\sigma_s = 0,07$, $\sigma_{st} = 0,02$ e do erro no fator de correção da eficiência de detecção. Este último foi obtido considerando uma incerteza de 10 % nos coeficientes de atenuação de cada fator de correção [equação (3.13)], e supondo desprezível, a incerteza na espessura dos materiais considerados. As covariâncias desta atividade com relação às demais foi considerada igual às covariâncias do ^{48}Sc , enquanto foram considerados totalmente correlacionadas as atividades do ^{47}Sc e ^{48}Sc , valor que, multiplicado pelos respectivos erros resultou na covariância correspondente.

3.7.3 CÁLCULO DE ERROS NAS SECÇÕES DE CHOQUE MÉDIAS

Para determinar o erro na densidade de fluxo média, obteve-se em primeiro lugar a matriz de covariância dos erros nas densidades de fluxo dos monitores, através dos erros parciais envolvidos, isto é, considerando a equação (1.12), os erros nas atividades e nas secções de choque médias.

A matriz de covariância dos erros nas densidades de fluxo foi determinada por meio do programa CALCOV^[15]. Esta matriz foi introduzida no cálculo de ajuste da densidade de fluxo, obtendo o erro nesse valor.

Os erros nas secções de choque médias foram obtidos por meio do programa CALCOV^[15], introduzindo os erros nas atividades dos produtos das reações [item 3.7.2], e o erro na densidade de fluxo média. As correlações consideradas foram: a matriz de correlação dos erros nas atividades [APÊNDICE B], e supondo correlação total para os erros na densidade de fluxo.

3.8 OBTENÇÃO DO ESPECTRO DE NÊUTRONS

Foi utilizado o programa SAIPS^[6] que consiste em um gerenciador de programas de deconvolução de espectros de nêutrons calculados através de atividades saturadas medidas. Este programa possui várias bibliotecas de secções de choque, das quais podem ser escolhidas as reações de interesse. O programa de deconvolução escolhido foi o SAND-II. O detalhe das bibliotecas escolhidas para cada reação são apresentados na tabela 3.4.

Tabela 3.4: Detalhe das bibliotecas de secções de choque diferenciais utilizadas⁽²⁾.

| Biblioteca | Reações |
|-------------------|--|
| IRDF85 | $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ $^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$ $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ $^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$ $^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$ $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ $^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$ $^{115}\text{In}(n,n')^{115\text{m}}\text{In}$ $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$ $^{232}\text{Th}(n,f)\text{P.F.}$ |
| IRDF82 | $^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}$ $^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$ |
| ENDL78 | $^{51}\text{V}(n,\alpha)^{48}\text{Sc}$ |
| ENDFB-V | $^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$ $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)^{60}\text{CO}$ |
| ZACRSS | $^{93}\text{Nb}(n,2n)^{92\text{m}}\text{Nb}$ |

O procedimento de cálculo do programa SAND-II consiste na seleção de um espectro de fluências conhecido, que serve como uma aproximação inicial (foram escolhidos os espectros tipo Watt e Maxwelliano), o programa compara as atividades saturadas medidas (dado de entrada) com as calculadas, tomando estes últimos valores como dados de entrada para o cálculo seguinte e assim sucessivamente até que os valores entre duas iterações sucessivas sejam menores que uma percentagem especificada. O código SAND-II utiliza 621 intervalos discretos como dados de secções de choque diferenciais, com energias entre 10^{-10} e 18 MeV^[39].

Os resultados obtidos para as atividades calculadas pelo programa SAND-II são apresentados no item 4.2.2.

CAPÍTULO 4

RESULTADOS OBTIDOS E DISCUSSÃO

4.1 RESULTADOS OBTIDOS

4.1.1 CURVA DE CALIBRAÇÃO DA EFICIÊNCIA DO DETECTOR DE HPGe

Na tabela 4.1 são apresentados os parâmetros do ajuste da curva de eficiência em função da energia gama, os erros absolutos nos parâmetros e a matriz de correlação dos erros, obtidos por meio das fontes padrões. Como foi dito no item 3.2, os parâmetros de ajuste correspondem ao intervalo de energias entre 244,70 keV e 1408,02 keV. Foi obtido um χ^2 (normalizado) = 1,11 para 13 graus de liberdade.

Tabela 4.1: Parâmetros, erros e matriz de correlação dos erros nos parâmetros da curva de calibração da eficiência em função da energia.

| Parâmetro | Valor obtido | Erro | Matriz de correlação (x 1000) | | |
|-----------|--------------|-----------|----------------------------------|------|------|
| a_0 | 0,03212 | 0,00010 | 1000 | | |
| a_1 | -1,3290 | 0,0013 | 999 | 1000 | |
| a_2 | 0,0367279 | 0,0000029 | 996 | 999 | 1000 |

Na figura 4.1 apresentam-se os valores obtidos das eficiências de detecção para as fontes padrões. A linha cheia da figura representa a curva ajustada com os parâmetros apresentados na tabela 4.1.

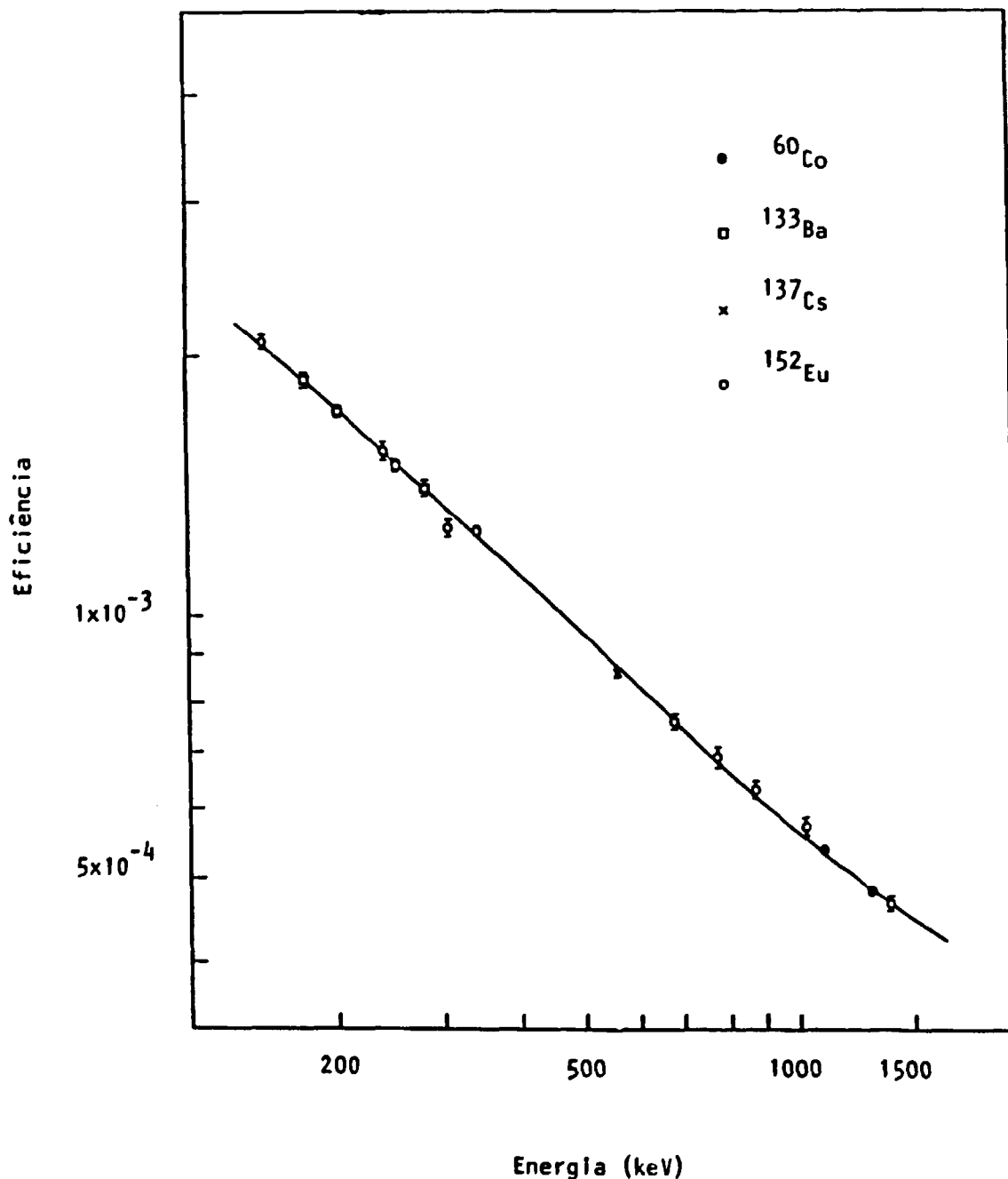


Figura 4.1: Curva da eficiência de detecção em função da energia, para o intervalo de 244,70 keV a 1408,02 keV.

4.1.2 ATIVIDADE DOS PRODUTOS DAS REAÇÕES

Por meio dos parâmetros de ajuste da curva de calibração da eficiência em função da energia obtiveram-se os valores de atividade dos produtos das reações em estudo, utilizando-se a equação 3.1.

Na tabela 4.2 apresentam-se os valores das atividades específicas [equação (1.8)], juntamente com a matriz de correlação obtida com os dados apresentados na tabela 3.3, como foi explicado no item 3.7.2. Em razão de variações da fluência de nêutrons para diferentes irradiações, foi feita uma normalização das atividades obtidas com relação à reação $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$. Nos casos de nuclídeos com mais de uma energia gama de decaimento, a atividade foi calculada a partir de uma média entre as atividades obtidas com cada energia gama, e, a correspondente matriz de correlação entre os erros foi reduzida na sua dimensão, como pode ser observado no APÊNDICE B.

A metodologia de obtenção do erro da reação $^{47}\text{Ti}(n,p)$, assim como aquela para obter as correlações entre os erros, foi apresentada no item 3.7.2.

Tabela 4.2: Valores das atividades específicas obtidas para as folhas de ativação.

| Reação | Aesp | Matriz de correlação (x1000) | | | | | | | | | | | | | | | | |
|----------------------------|-------------------------------|-------------------------------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| $^{115}\text{In}(n,n)$ | $(9,99\pm 0,20)\text{E-13}$ | 1000 | | | | | | | | | | | | | | | | |
| $^{232}\text{Th}(n,\eta)$ | $(4,156\pm 0,095)\text{E-13}$ | 241 | 1000 | | | | | | | | | | | | | | | |
| $^{58}\text{Ni}(n,p)$ | $(5,70\pm 0,10)\text{E-13}$ | 651 | 347 | 1000 | | | | | | | | | | | | | | |
| $^{54}\text{Fe}(n,p)$ | $(4,182\pm 0,076)\text{E-13}$ | 626 | 334 | 929 | 1000 | | | | | | | | | | | | | |
| $^{46}\text{Ti}(n,p)$ | $(5,84\pm 0,11)\text{E-14}$ | 321 | 170 | 479 | 462 | 1000 | | | | | | | | | | | | |
| $^{56}\text{Fe}(n,p)$ | $(5,98\pm 0,12)\text{E-15}$ | 633 | 337 | 947 | 906 | 466 | 1000 | | | | | | | | | | | |
| $^{59}\text{Co}(n,\alpha)$ | $(1,092\pm 0,022)\text{E-15}$ | 608 | 324 | 902 | 870 | 449 | 876 | 1000 | | | | | | | | | | |
| $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)$ | $(2,57\pm 0,14)\text{E-15}$ | 184 | 79 | 224 | 217 | 116 | 219 | 211 | 1000 | | | | | | | | | |
| $^{24}\text{Mg}(n,p)$ | $(7,31\pm 0,15)\text{E-15}$ | 582 | 302 | 808 | 838 | 452 | 847 | 817 | 226 | 1000 | | | | | | | | |
| $^{27}\text{Al}(n,\alpha)$ | $(3,686\pm 0,076)\text{E-15}$ | 583 | 303 | 809 | 840 | 453 | 849 | 819 | 226 | 899 | 1000 | | | | | | | |
| $^{48}\text{Ti}(n,p)$ | $(1,578\pm 0,031)\text{E-15}$ | 461 | 245 | 666 | 665 | 346 | 660 | 646 | 167 | 650 | 736 | 1000 | | | | | | |
| $^{93}\text{Nb}(n,2n)$ | $(2,582\pm 0,053)\text{E-15}$ | 569 | 303 | 847 | 818 | 425 | 823 | 794 | 202 | 784 | 766 | 616 | 1000 | | | | | |
| $^{51}\text{V}(n,\alpha)$ | $(1,330\pm 0,034)\text{E-16}$ | 384 | 141 | 397 | 384 | 200 | 387 | 373 | 96 | 375 | 376 | 288 | 353 | 1000 | | | | |
| $^{55}\text{Mn}(n,2n)$ | $(1,245\pm 0,025)\text{E-16}$ | 566 | 302 | 840 | 810 | 418 | 816 | 787 | 196 | 758 | 760 | 602 | 740 | 345 | 1000 | | | |
| $^{90}\text{Zr}(n,2n)$ | $(5,48\pm 0,12)\text{E-16}$ | 546 | 291 | 719 | 764 | 406 | 769 | 761 | 193 | 747 | 747 | 565 | 718 | 334 | 709 | 1000 | | |
| $^{58}\text{Ni}(n,2n)$ | $(2,49\pm 0,53)\text{E-17}$ | 569 | 296 | 751 | 821 | 442 | 829 | 800 | 221 | 880 | 882 | 637 | 768 | 364 | 743 | 732 | 1000 | |
| $^{47}\text{Ti}(n,p)$ | $(9,52\pm 0,14)\text{E-14}$ | 382 | 202 | 570 | 551 | 228 | 547 | 536 | 136 | 539 | 540 | 1000 | 510 | 237 | 499 | 485 | 528 | 1000 |

4.1.3 DENSIDADE DE FLUXO MÉDIA

Na tabela 4.3 são apresentados os valores das densidades de fluxo obtidas com cada um dos monitores (através do programa FLUXO1 incluído no APÊNDICE A), seus erros assim como a matriz de correlação dos erros utilizada para o cálculo do fluxo médio. Deve-se ressaltar que os erros na densidade de fluxo dos monitores foram obtidos por meio do programa CALCOV^[15], com os erros parciais nas respectivas atividades e suas correlações, e nas secções de choque médias (item 3.7.3), considerados sem correlação.

Tabela 4.3: Densidades de fluxo, erros e matriz de correlação dos erros.

| Monitor | Densidade de fluxo ($\times 10^{12}$) [n.cm ⁻² .s ⁻¹] | Erro [%] | Matriz de correlação (x 1000) | | |
|---------|--|-------------|----------------------------------|------|------|
| Al | 5,23 | 3,6 | 1000 | | |
| Ni | 5,23 | 3,3 | 237 | 1000 | |
| Fe | 5,20 | 3,4 | 257 | 238 | 1000 |

O valor da densidade de fluxo média foi obtido por meio do programa LSSOLVER^[47], para a posição de irradiação 62, prateleira 6, resultando:

$$\phi = (5,22 \pm 0,13) \times 10^{12} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$$

4.1.4 SECÇÕES DE CHOQUE MÉDIAS

As secções de choque médias no espectro de fissão foram obtidas por meio da equação (1.12). Na tabela 4.4 são apresentados os erros nas secções de choque médias, e a matriz de correlação destes erros (item 3.7.3). Os valores obtidos das secções de choque médias para o espectro de fissão, são apresentados na tabela 4.5, juntamente com os dados de outros autores.

Tabela 4.4: Erros nas secções de choque médias e matriz de correlação dos erros.

| Reação | σ_0 [%] | Matriz de correlação (x1000) | | | | | | | | | | | |
|--|--------------------------------------|---|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|
| $^{115}\text{In}(n,n')$ | 3,1 | 1000 | | | | | | | | | | | |
| $^{232}\text{Th}(n,f)$ | 3,3 | 664 1000 | | | | | | | | | | | |
| $^{46}\text{Ti}(n,p)$ | 3,0 | 736 647 1000 | | | | | | | | | | | |
| $^{56}\text{Fe}(n,p)$ | 3,1 | 852 709 795 1000 | | | | | | | | | | | |
| $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)$ | 4,5 | 512 435 486 533 1000 | | | | | | | | | | | |
| $^{24}\text{Mg}(n,p)$ | 3,2 | 825 684 781 936 531 1000 | | | | | | | | | | | |
| $^{48}\text{Ti}(n,p)$ | 3,1 | 727 839 712 783 480 771 1000 | | | | | | | | | | | |
| $^{93}\text{Nb}(n,2n)$ | 3,2 | 821 686 772 927 519 908 773 1000 | | | | | | | | | | | |
| $^{51}\text{V}(n,\alpha)$ | 3,3 | 732 599 667 736 449 722 659 714 1000 | | | | | | | | | | | |
| $^{55}\text{Mn}(n,2n)$ | 3,1 | 821 688 771 925 517 898 762 891 715 1000 | | | | | | | | | | | |
| $^{90}\text{Zr}(n,2n)$ | 3,2 | 807 675 758 910 509 890 749 878 701 875 1000 | | | | | | | | | | | |
| $^{58}\text{Ni}(n,2n)$ | 3,2 | 816 676 771 927 524 947 763 899 714 889 881 1000 | | | | | | | | | | | |
| $^{47}\text{Ti}(n,p)$ | 3,3 | 675 594 661 727 446 716 953 709 612 708 696 708 1000 | | | | | | | | | | | |

4.2 DISCUSSÃO DOS RESULTADOS

4.2.1 COMPARAÇÃO DOS VALORES DE SECÇÕES DE CHOQUE

Na tabela 4.5 é apresentada a comparação dos valores das secções de choque médias deste trabalho com as obtidas por outros autores, ordenadas em valores crescentes de energia limiar de ativação. Nesta tabela observa-se que as secções de choque médias apresentam, de modo geral, boa concordância.

Um fato importante a ressaltar é que o cálculo da atividade foi efetuado para cada linha de energia, para aqueles radionuclídeos com mais de um raio gama de desexcitação. Este foi o caso dos cálculos para as reações $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)^{60}\text{Co}$, $^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$, $^{51}\text{V}(n,\alpha)^{48}\text{Sc}$, assim como para os dois produtos da fissão do ^{232}Th considerados. Para estes casos, foi efetuada a fusão das linhas e colunas correspondentes da matriz de covariância dos erros nas atividades (APÊNDICE B), com a consequente diminuição das incertezas. Esta metodologia de cálculo foi um refinamento no tratamento de erros com matrizes de covariâncias, considerado necessário para a redução no erro final.

Por outro lado, foi efetuado um cálculo teórico da eficiência de detecção de 159,38 keV, baseada na eficiência de detecção de 175,35 keV do ^{48}Sc , cuja atividade foi determinada previamente. Este procedimento simplificou o tratamento de covariâncias, quando comparado com ajustes separados para as regiões de energias baixa e alta no espectro gama, mantendo uma boa exatidão no cálculo da eficiência de 159,38 keV.

Tabela 4.5: Comparação de valores de secções de choque de diferentes autores [em mb].

| Reação | Este trabalho | Zijp ^[49] | Horibe ^[18] | Calamand ^[6] | Kobayashi ^[24-28] | Harrhart ^[32] |
|---------------------------------|---------------|----------------------|------------------------|-------------------------|------------------------------|--------------------------|
| $^{115}\text{In}(n,n')$ | 191,4±5,9 | 189±8 | 189±12 | 188±11 | 189,5±11,5 | 90,3±7,3 |
| $^{232}\text{Th}(n,f)$ | 79,6±2,6 | 81,0±5,4 | -x- | -x- | -x- | -x- |
| $^{51}\text{V}(n,\alpha)^{(*)}$ | 25,44±0,83 | -x- | -x- | 22±3 | -x- | 24,1±0,9 |
| $^{47}\text{Ti}(n,p)$ | 18,25±0,60 | 19,4±1,4 | 20,1±1,4 | 20±2,3 | 18,15±1,07 | 17,7±0,6 |
| $^{46}\text{Ti}(n,p)$ | 11,19±0,34 | 11,80±0,75 | 11,6±0,8 | 12,5±0,9 | 11,70±0,69 | 11,6±0,4 |
| $^{56}\text{Fe}(n,p)$ | 1,142±0,035 | 1,035±0,075 | 1,13±0,10 | 1,07±0,08 | 0,997±0,06 | 1,09±0,04 |
| $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)$ | 0,490±0,022 | 0,500±0,056 | -x- | 0,50±0,06 | 0,484±0,034 | -x- |
| $^{24}\text{Mg}(n,p)$ | 1,401±0,044 | 1,53±0,09 | 1,382±0,094 | 1,53±0,09 | 1,38±0,07 | 1,50±0,06 |
| $^{48}\text{Ti}(n,p)$ | 0,3026±0,0094 | 0,300±0,018 | 0,305±0,020 | 0,315±0,027 | 0,302±0,019 | 0,302±0,010 |
| $^{93}\text{Nb}(n,2n)$ | 0,495±0,016 | 0,48±0,04 | -x- | 0,48±0,04 | 0,479±0,029 | -x- |
| $^{55}\text{Mn}(n,2n)$ | 0,2386±0,0075 | 0,244±0,015 | 0,150±0,017 | 0,258±0,013 | 0,202±0,010 | -x- |
| $^{90}\text{Zr}(n,2n)$ | 0,105±0,0048 | 0,076±0,019 | -x- | 0,076±0,01 | 0,086±0,065 | 0,103±0,004 |
| $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{(*)}$ | 4,76±0,15 | 5,77±0,31 | 4,98±0,39 | 4,9±0,22 | 3,6±0,2 | 4,19±0,22 |

(*) valor dado em μb

Os valores de secção de choque média para a reação $^{232}\text{Th}(n,f)$, foram obtidos considerando os valores de rendimento de produtos de fissão da referência [49]. Caso fossem considerados os valores de rendimento de produtos de fissão da referência [12], de 5,63 % para ^{95}Zr e 8,12 % para ^{140}Ba , o valor da secção de choque média teria resultado em $78,65 \pm 1,82$ mb. Entretanto, ambos os valores concordam entre si dentro do intervalo do erro experimental.

Observa-se que a secção de choque média para a reação $^{55}\text{Mn}(n,2n)$ obtida por Horibe^[18], apresenta um valor muito inferior ao de outros autores incluindo o valor obtido no presente trabalho.

O valor de secção de choque média obtida para a reação $^{59}\text{Co}(n,\alpha)^{56}\text{Mn}$, não foi incluído na tabela 4.5, uma vez que resultou muito superior aos valores apresentados na literatura^[18,28,32,40,49]. Concluiu-se que a atividade obtida, muito maior que a esperada, deve ser causada por alguma contaminação de ^{55}Mn nas folhas de ativação.

Considerando que a integral de ressonância para a reação $^{55}\text{Mn}(n,\gamma)$ é de $15,6 \text{ b}^{[49]}$, e embora as folhas de ativação tenham sido irradiadas dentro de uma caixa de cádmio, a presença de nêutrons epitérmicos pode ter provocado a ativação das impurezas de ^{55}Mn existentes na amostra. Este fato não é comentado por outros autores em razão das características experimentais serem diferentes, isto é, com espectros de fissão mais puros, obtidos com placas de fissão de urânio^[18] ou cavidades esféricas de fissão^[32].

Foi efetuada uma irradiação independente, com o objetivo de determinar o conteúdo de impurezas de ^{55}Mn , sem se chegar a resultados satisfatórios, em razão das incertezas na densidade de fluxo de nêutrons epitérmicos.

4.2.2 COMPARAÇÃO DO ESPECTRO CALCULADO COM RELAÇÃO AOS ESPECTROS PUROS TIPO WATT E MAXWELLIANO

Para verificar a qualidade do espectro, utilizou-se o programa SAIPS^[4], tendo escolhido o SAND-II^[39] como programa de deconvolução. Foram escolhidas diversas bibliotecas de secções de choque diferenciais seguindo o procedimento apresentado no item 3.8.

Na tabela 4.6 são apresentadas as reações estudadas, a energia limiar de ativação, as atividades específicas calculadas normalizadas com relação à atividade específica para reação $^{27}\text{Al}(n,\alpha)$, tomando como espectro de aproximação o espectro tipo Watt ou Maxwelliano. Cabe ressaltar que as atividades específicas calculadas pelo programa SAND-II^[39] resultaram as mesmas para os espectros de aproximação inicial tipo Watt e Maxwelliano utilizados. Esta tabela apresenta também as atividades para os espectros puros tipo Watt e Maxwelliano, normalizadas com relação à atividade específica da reação $^{27}\text{Al}(n,\alpha)$, assim como as secções de choque obtidas por diferentes autores, normalizadas com relação à secção de choque para a reação $^{27}\text{Al}(n,\alpha)$.

Tabela 4.6: Comparação das Atividades específicas calculadas pelo programa SAND-II, normalizadas para a reação $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ e das secções de choque obtidas por diferentes autores, normalizadas com relação à secção de choque para a mesma reação .

| Reação | Energia limiar [MeV] | Atividades Calculadas | Atividades calculadas espectros puros | | Horibe[18] | Mannhart[32] |
|----------------------------|----------------------|-----------------------|---------------------------------------|-------------|------------|--------------|
| | | | Watt | Maxwelliano | | |
| $^{115}\text{In}(n,n')$ | 1,2 | 259,6 | 258,3 | 240,5 | 280,9 | 269,5 |
| $^{232}\text{Th}(n,f)$ | 1,4 | 106,1 | 107,7 | 100,0 | -x- | -x- |
| $^{51}\text{V}(n,\alpha)$ | 2,1 | 0,03378 | 0,03094 | 0,03311 | -x- | 0,03414 |
| $^{47}\text{Ti}(n,p)$ | 2,2 | 28,67 | 30,43 | 27,92 | 28,51 | 25,07 |
| $^{58}\text{Ni}(n,p)$ | 2,8 | 140,6 | 149,5 | 136,8 | 150,4 | 154,39 |
| $^{54}\text{Fe}(n,p)$ | 3,1 | 107,5 | 115,1 | 105,1 | 115,89 | 111,90 |
| $^{46}\text{Ti}(n,p)$ | 3,9 | 15,08 | 15,71 | 14,52 | 16,45 | 16,43 |
| $^{56}\text{Fe}(n,p)$ | 6,0 | 1,441 | 1,445 | 1,395 | 1,603 | 1,544 |
| $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)$ | 6,8 | 0,7233 | 0,7236 | 0,7005 | -x- | -x- |
| $^{24}\text{Mg}(n,p)$ | 6,8 | 2,039 | 2,097 | 2,067 | 1,957 | 2,125 |
| $^{27}\text{Al}(n,\alpha)$ | 7,2 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| $^{48}\text{Ti}(n,p)$ | 7,6 | 0,3963 | 0,3919 | 0,3897 | 0,4326 | 0,4278 |
| $^{93}\text{Nb}(n,2n)$ | 10,2 | 0,6612 | 0,5483 | 0,6273 | -x- | -x- |
| $^{55}\text{Mn}(n,2n)$ | 11,6 | 0,3378 | 0,2781 | 0,3489 | 0,2128 | -x- |
| $^{90}\text{Zr}(n,2n)$ | ≈13 | 0,1582 | 0,1064 | 0,1475 | -x- | 0,1459 |
| $^{58}\text{Ni}(n,2n)$ | ≈13,5 | 0,005919 | 0,003769 | 0,005333 | 0,007064 | 0,005935 |

Nota-se uma concordância entre o espectro experimental e tipo Watt em baixas energias de limiar, e uma certa concordância entre aqueles obtidos com o espectro experimental e tipo Maxwelliano, para altas energias de limiar. Por outro lado, a concordância entre as secções de choque integral com a de outros autores, para diferentes energias de limiar, indicam que a qualidade do espectro de nêutrons obtido experimentalmente, é comparável à obtida pelos outros autores.

Como foi mencionado no cálculo do espectro observou-se que as atividades calculadas pelo programa SAND-II^[39] resultaram as mesmas, independente do espectro de aproximação inicial, isto é, para os espectros tipo Watt e Maxwelliano utilizados. Em alguns casos, entretanto, a escolha de diferentes bibliotecas de secções de choque diferenciais resultaram em diferenças substanciais entre a atividade experimental e calculada. Este foi o caso da reação $^{93}\text{Nb}(n,2n)^{92\text{m}}\text{Nb}$, a qual apresentou uma diferença superior a 50 % quando foi utilizada a biblioteca BOSPOR80^[6], enquanto que essa diferença foi reduzida a 2,41 %, mediante a utilização da biblioteca ZACRSS^[6]. Também foram observadas diferenças com as reações $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)^{60}\text{Co}$, a qual apresentou uma diferença de -12,05 % entre a atividade medida e calculada com a biblioteca IRDF-85^[6], e de -7,33 % com a ENDF/B-V^[6]. Da mesma forma, a reação $^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$ apresentou uma diferença de -17,02 % com a biblioteca IRDF-85, e de -12,91 % com a ENDF/B-V. Esta última biblioteca foi utilizada por MANNHART^[35,36], que ressalta a discrepância entre os dados experimentais para esta reação com relação aos valores diferenciais, fato confirmado neste trabalho.

A caracterização do espectro não mostrou distorções em baixas energias, visto que houve uma boa concordância entre as secções de choque obtidas para aquelas reações de energia limiar baixa, como o caso das reações $^{115}\text{In}(n,n')$ e $^{232}\text{Th}(n,f)$ com 1,2 MeV e 1,4 MeV de energia limiar de ativação, respectivamente.

CAPÍTULO 5

CONCLUSÕES

Neste trabalho foram determinados os valores da secção de choque média para 13 reações de limiar, induzidas por nêutrons de fissão do ^{235}U . A energia limiar efetiva cobriu a faixa de 1,2 a 13,5 MeV.

Os valores de secção de choque obtidos apresentam, em geral, boa concordância com aqueles obtidos por outros autores. Em alguns casos, como os das reações $^{232}\text{Th}(n,f)$ e $^{51}\text{V}(n,\alpha)$, apenas um valor na literatura foi encontrado para comparação, indicando a necessidade de medidas novas, como as apresentadas neste trabalho.

Para quase todas as reações, foram obtidos valores de secção de choque média com erros inferiores aos apresentados na literatura. Isto contribui de forma significativa para futuras avaliações de secção de choque e, portanto, para o conhecimento preciso destes parâmetros não só para tecnologia de reatores de fissão e fusão como na área de dosimetria de nêutrons rápidos.

O espectro de nêutrons calculado pelo programa SAND-II, utilizando os dados experimentais deste trabalho, apresenta uma certa concordância com o espectro de Watt, para baixas energias de limiar. Para altas energias de limiar, o espectro experimental aproxima-se do espectro Maxwelliano. No entanto, esta característica também é apresentada pelo espectro experimental obtido por outros autores^[18,32], indicando que a qualidade desses espectros é similar àquela obtida no arranjo experimental do presente trabalho.

O cálculo teórico de eficiência para o detector de HPGe, em baixas energias, resultou em valores confiáveis, uma vez que concordaram com os valores experimentais, como para a energia de 175,35 keV do ^{48}Sc .

Este procedimento facilitou a estimativa de covariâncias, quando comparado com ajustes de curvas distintos para as regiões de baixa e alta energia gama, onde o cálculo de covariâncias se torna mais complexo.

O presente trabalho mostrou que, no caso de radionuclídeos com mais de uma energia gama, é importante calcular a atividade separadamente, para cada linha de energia e posteriormente realizar a fusão das linhas e colunas na matriz de covariância correspondente. Este foi o caso dos cálculos de atividade para as reações $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)^{60}\text{Co}$, $^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$, $^{51}\text{V}(n,\alpha)^{48}\text{Sc}$, assim como para a reação $^{232}\text{Th}(n,f)$ com os dois produtos de fissão considerados.

As secções de choque diferenciais de diversas bibliotecas apresentam discrepâncias entre si, quando são utilizadas no cálculo de espectros pelo programa SAND-II. Por esta razão, a escolha de bibliotecas para as reações $^{93}\text{Nb}(n,2n)^{92}\text{Nb}$, $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)^{60}\text{Co}$ e $^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$, foi cuidadosa, com o objetivo de minimizar erros sistemáticos introduzidos no espectro de nêutrons calculado.

Algumas sugestões, que poderiam ser incluídas em trabalhos futuros, são apresentadas a seguir:

1ª Comparação dos resultados obtidos pelo método de ativação com a medida obtida utilizando a técnica de traços de fissão, para o caso da reação $^{232}\text{Th}(n,f)$. Um trabalho preliminar já foi iniciado, utilizando MAKROFOL E e alvos de ^{232}Th obtidos pela técnica de deposição em TOPO.

2ª Medir com exatidão o conteúdo de impurezas de ^{55}Mn , presentes nas amostras de Co, a fim de obter valores mais confiáveis para a secção de choque $^{59}\text{Co}(n,\alpha)$.

3ª Inclusão do cálculo de covariâncias no programa que calcula a eficiência e atividade das amostras, a fim de simplificar o procedimento e evitar possíveis erros na manipulação de diferentes programas de cálculo.

APÊNDICE A

PROGRAMA DE CÁLCULO DO FLUXO

O programa FLUX01, foi desenvolvido como ferramenta de cálculo, para obter, ora a densidade de fluxo, ora a secção de choque média para uma dada reação, dependendo da opção escolhida no arquivo de entrada. Este programa, elaborado na linguagem BASIC, apresenta-se a seguir.

```

10 ' FLUX01.BAS - Calculo do Fluxo ou da seccao de choque
15 ' em funcao da atividade do material irradiado
20 ' Com calculo do f de atomos da amostra
25 ' Com calculo de LAMBDA
30 ' Com calculo do tempo de irradiacao
35 ' Com calculo do erro
36 ' Com calculo de atividade infinitamente diluida
40 ' Nora Maidana - 20/08/91
50 '
60 ' VARIAVEIS
65 ' NUCL      Caracteristicas: folha, fio, po
70 ' P        % do nucleido
75 ' AT, SAT   Atividade (Bq), erro (%)
80 ' T12, ST12 Meia vida (d), erro (%)
85 ' ATMAS     Massa atomica
90 ' TIR, STIR Tempo de irradiacao (d), erro (%)
100 ' F, SF     Massa do material (gr), erro (%)
105 ' QZ, SQZ   f de atomos i na amostra, erro (%)
110 ' CH, SCH   Seccao de choque (b), erro (%)
115 ' DI/MI/AI;HI MINI Data e hora do inicio da irradiacao
120 ' DR/MR/AR;HR MINR data e hora de finalizacao da
124 '          irradiacao (Referencia)
125 ' FX, SFX   Dado de entrada do fluxo de neutrons e
erro
126 ' FLU, SFLU Resultado do fluxo de neutrons, erro no
fluxo 127 '          (%)
128 ' KCF      =-1 calcula o fluxo; = 0 calcula
129 '          seccao de choque
130 '
135 ' CLEAR
140 ' CLS
145 ' DEFINT I-N

```

```

150  DEFDBL A-H, O-Z
160  DEF FNEX (X) = (1 AND (X <= .01)) * (1 + X + X * X /
2 + X * X * X / 6 + X * X * X * X / 24) + (1 AND (X > .01))
* (EXP(X))
170  'IF X <= 0 THEN DEF FNEX (X) = (1 AND (X <= .01)) * (1
- X + X * X / 2 - X * X * X / 6 + X * X * X * X / 24) + (1
AND (X > .01)) * (EXP(X))
180  DIM P(15), AT(15), SAT(15), T12(15), ST12(15), F(15),
CH(15), SCH(15), STIR(15), FLU(15), SFLU(15), KCF(15)
190  BAT$ = "\BASIC\PROG\FLX.BAT"
200  OPEN "I", #2, BAT$
210  INPUT #2, NBAT
220  FOR I = 1 TO NBAT
230  INPUT #2, FLX$
240  OPEN "I", #1, FLX$
250  INPUT #1, ARQ$
260  INPUT #1, KCF, P, AT, SAT, ATMAS, F, SF, T12, ST12,
CH, SCH, STIR, DI, MI, AI, HI, MINI, DR, MR, AR, HR, MINR,
FX, SFX
270  L P R I N T   T A B ( 8 ) ;
*****
280  LPRINT TAB(8); FLX$
290  LPRINT TAB(8); ARQ$
291  IF KCF = 0 GOTO 295
292  LPRINT
293  LPRINT " KCF=1 =>   CALCULO DO FLUXO"
294  GOTO 296
295  LPRINT " KCF=0 =>   CALCULO DA SECCAO DE CHOQUE"
296  LPRINT
299  ANA = 6.023E+23
300  QZ = (P * F * ANA) / ATMAS
310  AMBDA = LOG(2) / T12
320  LPRINT
330  LPRINT TAB(8); "MASSA ATOMICA (g)"; TAB(27); "MASSA F
(g)"; TAB(40); "ERRO (%)"; TAB(50); "i (abs)"; TAB(60);
"QUANT ATOMOS"
335  LPRINT
340  LPRINT USING "   ####.### "; ATMAS;
341  LPRINT USING "   ##.##### "; F;
342  LPRINT USING "   ##.## "; SF;
343  LPRINT USING "   #.####"; P;
344  LPRINT USING "   ##.####^"; QZ
350  LPRINT
360  LPRINT TAB(8); "ATIVIDADE (Bq)"; TAB(30); "ERRO (%)";
TAB(45); "LAMBDA (1/d)"
361  LPRINT
362  LPRINT USING "   ##.####^"; AT;
363  LPRINT USING "   ##.##"; SAT;
364  LPRINT USING "   ##.####^"; AMBDA
370  LPRINT
375  LPRINT USING "   DATA DE IRRADIACAO = ##/##/## as
##:## hs"; DI, MI, AI, HI, MINI
380  LPRINT USING "   DATA DE REFERENCIA = ##/##/## as
##:## hs"; DR, MR, AR, HR, MINR
385  LPRINT
400  GOSUB 705
410  LPRINT USING "   TEMPO DE IRRADIACAO = ###.###
d"; TIR;
415  LPRINT USING "   ERRO (%) = ##.##"; STIR

```

```

420  LPRINT
430  PARENT = (1 - FNEX(-AMBDA * TIR))
435  AINF = AT / (QZ * PARENT)
436  LPRINT TAB(8); "ATIVIDADE INFINITAMENTE DILUIDA
(A $\infty$ /atomo)=";
437  LPRINT USING " ##.###^" ; AINF
440  LPRINT
450  IF KCF = 0 GOTO 600
460  FLUX = (AT / (QZ * CH * PARENT)) * 1E+24
465  DERAT = (SAT / 100) * (SAT / 100)
466  DERQZ = (SQZ / 100) * (SQZ / 100)
467  DERCH = (SCH / 100) * (SCH / 100)
468  DERT12 = (TIR * TIR * (FNEX(-(2 * AMBDA * TIR))) *
(ST12 * AMBDA / 100) * (ST12 * AMBDA / 100)) / (PARENT *
PARENT)
469  DERTIR = (AMBDA * AMBDA * (FNEX(-(2 * AMBDA * TIR)))
* (STIR * TIR / 100) * (STIR * TIR / 100)) / (PARENT *
PARENT)
470  SFLUX = 100 * (SQR(DERAT + DERQZ + DERCH + DERT12 +
DERTIR))
475  LPRINT TAB(8); "MEIA VIDA (d)"; TAB(25); "ERRO (%)";
TAB(37); "SEC CHOQUE (b)"; TAB(57); "ERRO (%)"
476  LPRINT
477  LPRINT USING " ##.###^" ; T12;
478  LPRINT USING " ##.##" ; ST12;
479  LPRINT USING " ##.###^" ; CH;
480  LPRINT USING " ##.##" ; SCH
481  LPRINT
482  LPRINT TAB(15); "FLUXO (n/cm2s)"; TAB(35); "ERRO (%)"
483  LPRINT
484  LPRINT USING " ##.###^" ; FLUX;
485  LPRINT USING " ##.##" ; SFLUX
490  GOTO 640
600  CCH = (AT * 1E+24) / (QZ * FX * PARENT)
610  ERAT = (SAT / 100) * (SAT / 100)
611  ERQZ = (SQZ / 100) * (SQZ / 100)
612  ERFX = (SFX / 100) * (SFX / 100)
613  ERT12 = (TIR * TIR * (FNEX(-(2 * AMBDA * TIR))) *
(ST12 * AMBDA / 100) * (ST12 * AMBDA / 100)) / (PARENT *
PARENT)
614  ERTIR = (AMBDA * AMBDA * (FNEX(-(2 * AMBDA * TIR))) *
(STIR * TIR / 100) * (STIR * TIR / 100)) / (PARENT * PARENT)
615  SCCH = 100 * (SQR(ERAT + ERQZ + ERFX + ERT12 + ERTIR))
620  LPRINT TAB(8); "MEIA VIDA (d)"; TAB(25); "ERRO (%)";
TAB(37); "FLUXO (n/cm2s)"; TAB(55); "ERRO (%)"
621  LPRINT
622  LPRINT USING " ##.###^" ; T12;
623  LPRINT USING " ##.##" ; ST12;
624  LPRINT USING " ##.###^" ; FX;
625  LPRINT USING " ##.##" ; SFX
630  LPRINT
635  LPRINT TAB(15); "SEC CHOQUE (b)"; TAB(40); "ERRO (%)"
636  LPRINT
638  LPRINT USING " ##.###^" ; CCH;
639  LPRINT USING " ##.##" ; SCCH
640  LPRINT
6 4 5  L P R I N T T A B ( 8 ) ;
"*****"
650  CLOSE #1

```

```

660 NEXT I
670 CLOSE #2
680 LPRINT
690 END
695 '
696 'CALCULO DO TEMPO DE IRRADIACAO
705 TIR = 0
710 A = AR: M = MR
720 GOSUB 860
730 TIR = TIR + y
740 A = AI: M = MI
750 GOSUB 860
760 TIR = TIR - y
770 TIR = TIR + (AR - AI) * 365 + (DR - DI)
780 X = INT((AR - 1) / 4) - INT((AI - 1) / 4)
790 W = (HR - HI + (MINR - MINI) / 60) / 24
800 TIR = TIR + X + W
850 '
860 IF M = 1 THEN y = 0
870 IF M = 2 THEN y = 31
880 IF M = 3 THEN y = 59
890 IF M <= 2 GOTO 800
900 y = INT((M - 4) * .6) + (M - 1) * 30
910 IF (INT(A / 4) = A / 4) THEN y = y + 1
920 RETURN

```

A seguir, é apresentado o exemplo de um arquivo de entrada, para obter a densidade de fluxo para a reação $^{27}\text{Al}(n, \alpha)$.

```

Al-27(n p)Mg-27.Folha Al.E
1 1 1.6098E+5 1.17 26.98154 0.021915 0.09
6.23333E-1 0.12 0.706E-3 0.00621 0.3
17 03 92 09 57 17 03 92 11 57 0.0 0.0

```

Como pode ser observado na linha 260 do programa, os dados de entrada são:

- a.- escolha da operação a realizar, KCF = 1,
calcula a densidade de fluxo, KCF = 0,
calcula a secção de choque média;
- b.- percentagem isotópica do nuclídeo alvo;
- c.- atividade referida ao final da irradiação;
- d.- erro na atividade;
- e.- massa atômica;

- f.- massa da amostra;
- g.- erro na massa;
- h.- meia-vida;
- i.- erro na meia-vida;
- j.- secção de choque média;
- k.- erro na secção de choque média;
- l.- erro no tempo de irradiação;
- m.- densidade de fluxo de nêutrons;
- n.- erro na densidade de fluxo de nêutrons.

APÊNDICE B

REDUÇÃO NA DIMINUIÇÃO DA DIMENSÃO DA MATRIZ DE COVARIÂNCIA DOS ERROS NAS ATIVIDADES DAS AMOSTRAS

A atividade dos radionuclídeos com mais de uma energia gama foi determinada de forma independente para cada energia. No caso da reação $^{232}\text{Th}(n,f)$, foi considerada a atividades dos produtos de fissão ^{95}Zr e ^{140}Ba . Esta metodologia resultou em uma matriz de covariâncias com uma dimensão igual ao número total de energias gama consideradas.

A diminuição da dimensão da matriz de covariância dos erros nas atividades, para cada radionuclídeo com mais de uma linha de decaimento (denotadas por X e Y), levou em conta as seguintes considerações:

Seja

$$C = (X + Y) / 2; \quad (\text{B.1})$$

Como^[5]

$$\text{Var}(X + Y) = \text{Var}(X) + \text{Var}(Y) + 2 \text{Cov}(X, Y) \quad (\text{B.2})$$

obtém-se:

$$\text{Var}(C) = \frac{\text{Var}(X) + \text{Var}(Y) + 2 \text{Cov}(X, Y)}{4} \quad (\text{B.3})$$

Por outro lado, a covariância entre duas variáveis aleatórias C e Z é definida como^[5]:

$$\text{Cov}(C, Z) = E(CZ) - E(C) \cdot E(Z) \quad (\text{B.4})$$

onde:

$E(CZ)$, $E(C)$ e $E(Z)$ são as esperanças matemáticas das variáveis. Aplicando a propriedade aditiva das esperanças matemáticas^[5], a covariância entre as diferentes atividades, quando uma delas é a média aritmética dentre dois valores, $\text{Cov}(C, Z)$, obtém-se da equação 3.16:

$$\begin{aligned} \text{Cov}(C, Z) &= E\left(\frac{X+Y}{2}Z\right) - E\left(\frac{X+Y}{2}\right) E(Z) \\ &= \left[E\left(\frac{X}{2}Z\right) + E\left(\frac{Y}{2}Z\right) \right] - \left[E\left(\frac{X}{2}\right) + E\left(\frac{Y}{2}\right) \right] E(Z) \\ &= \left[\frac{1}{2}E(XZ) - \frac{1}{2}E(X) E(Z) \right] + \left[\frac{1}{2}E(YZ) - \frac{1}{2}E(Y) E(Z) \right] \\ &= \frac{\text{Cov}(X, Z) + \text{Cov}(Y, Z)}{2} \end{aligned}$$

(B.5)

Desta maneira obteve-se a matriz de covariância dos erros nas atividades das amostras, com uma dimensão igual ao número de reações estudadas.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] ATALLA, L.T. Interpretação Quantitativa de Resultados Experimentais, São Paulo, Instituto de Energia Atômica, 1978. (Inf. IEA 60).
- [2] BABA, H.; YOKOYAMA, A.; SAKURABA, Y.; NITANI, N.; SAITO, T. Systematic treatment of the photopeak efficiency. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., A 309:236-247, 1991.
- [3] BECKURTZ, K.H. & WIRTZ, K. Neutron Physics. New York, N. Y., Springer, 1974.
- [4] BERZONIS, M.A.; BONDARS, Kh.Ya.; NIEDRITIS, A.M. Neutron Dosimetry system SAIPS. Vienna, Int. Atomic Energy Agency, Int. Nuclear Data Committee, 1988. (INDC(CCP)- 285/GR).
- [5] BISSAB, W.O. & MORETTIN, O.A. Métodos Quantitativos. Estatística Básica. 4 ed. São Paulo, Atual, 1987.
- [6] CALAMAND, A. Cross Sections for Fission Neutron Spectrum Induced Reactions. In: IAEA. Handbook on Nuclear Activation Cross Sections, Vienna, IAEA, 1974. (Technical Reports Series N°156).

- [7] CULLEN, D.E. & MCLAUGHLIN, P.K. The International Reactor Dosimetry File (IRDF-85). Vienna, 1985. (IAEA-NDS-41).
- [8] DIAS, M.S. Comunicação Pessoal, 1992.
- [9] DIAS, M.S. Comunicação Pessoal, 1993.
- [10] DIAS, M.S. & RENNER, C. Si(Li) Efficiency Curve for X-Ray Parallel Beam. Nucl. Instrum. Methods, 193:91-93, 1982.
- [11] DIERCKX, R. Radiation Damage in Fission and Fusion Reactors. In: IAEA. Nuclear Data for Radiation Damage Assessment and Related Safety Aspects. Proceedings of the Advisory Group Meeting on.... held in Vienna, 1982. Vienna, 1982. (IEA-TECDOC-263) p.11.
- [12] ERTEN, H.N.; GRUTTER, A.; ROSSLER, E.; GUNTEN, H. R. Mass Distribution in the Reactor-Neutron-Induced Fission of Thorium-232, Nucl. Sci. Eng. 79:167-174, 1991.
- [13] EVANS, R. The Atomic Nucleus. New York, McGraw-Hill, 1955.
- [14] GERALDO, L.P.; DIAS, M.S.; KOSKINAS, M. Average Neutron Cross Section Measurements in U-235 Fission Spectrum for Some Threshold Reactions, Radiochim. Acta, 57:63-67, 1992.

- [15] GERALDO, L.P. & SMITH, D.L. Least Square Methods and Covariance Matrix Applied to the Relative Efficiency Calibration of a Ge(Li) Detector. São Paulo, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, jan. 1989. (Publicação IPEN 243).
- [16] GERALDO, L.P. & SMITH, D.L. Covariance Analysis and Fitting of Germanium Gamma-Ray Detector Efficiency Calibration Data. Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res., A 290:499-508, 1990.
- [17] HARVEY, B.G. Introduction to Nuclear Physics and Chemistry. 2. ed. New Jersey, Printice-Hall. 1962.
- [18] HORIBE, O.; CHATANI, H. Cross Sections of the Reactions $^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$, $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$, $^{57}\text{Ni}(n,np)^{57}\text{Co}$ Averaged over the ^{235}U Fission Neutron Spectrum. In: NUCLEAR data for science and technology: Proceedings of an International Conference, held in Julich, 13-17 May, 1991. Berlin, Springer-Verlag, 1992. p.68-70.
- [19] HUGES, D.J. Pile Neutron Research. New York, Adison Wesley. 1953.
- [20] IAEA. Neutron Fluence Measurements. Vienna, 1970. (Technical Reports Series N° 107).
- [21] IAEA. X-Ray and Gamma-Ray Standards for Detector Calibration. Vienna, 1991. (IAEA-TECDOC-619).

- [22] MAKAGAWA, T.; ASAMI, T.; YOSHIDATA, T. Curves and Tables of Neutron Cross Section, Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3, jul. 1990. Tokyo, Japan Atomic Energy Research Inst. 1990. (JAERI-M 90-099).
- [23] KNITTER, H.H. A Review on Standard Fission Neutron Spectra of ^{235}U and ^{252}Cf . In: IAEA. Neutron Cross Sections for Reactor Dosimetry, v.1. Proceedings of a Consultants' Meeting on.... held in Vienna, 15-19 Nov., 1976. Vienna, 1978. (IAEA-208).
- [24] KOBAYASHI, K., & KIMURA, I. Fission Spectrum Averaged Cross Sections of Some Threshold Reactions Measured With Fast Reactor "YAYOI". J. Nucl. Sci. Technol. 13(10):531-40, 1976.
- [25] KOBAYASHI, K.; KIMURA, I.; GOTOH, H.; YAGI, H. Measurement of the Cross-Section for $^{115}\text{In}(n,n')^{115\text{m}}\text{In}$ reaction. J. Nuc. Energy, 27:741-45, 1973.
- [26] KOBAYASHI, K. & KIMURA, I. Fission Spectrum Averaged Cross Section With Standard Neutron Fields. In: Proceedings 3rd ASTM-EURATOM Symp. on Reactor Dosimetry, Ispra, Italy, 1979. Commission of the European Communities 1979. v.2, p.1004. (EUR 6813 EN-FR).

- [27] KOBAYASHI, K.; KIMURA, I. The Average Cross Sections for the (n,2n) REACTIONS OF Mn-55, Ni-58, Co-59 and I-127 to the Fission Neutrons of U-235. Tokay-mura. Japan Atomic Energy Research Inst. 1980. p.42. (NEANDC(J)-67/U).
- [28] KOBAYASHI, K. The ^{235}U Fission Neutron Spectrum Unfolded With Multi-Foil Activation Data. In: Proceedings 7th ASTM-EURATOM Symp. on Reactor Dosimetry, Strasbourg, France, 1990. (pre-print).
- [29] KOKTA, L. Determination of Peak Area. Nucl. Instrum. Methods, 112:245-251, 1973.
- [30] KOSKINAS, M. F. Medida do fluxo Térmico, Epitérmico e Rápido no Reator IEA-R1 pelo Método de Ativação de Folhas. São Paulo, 1978. (Dissertação de Mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares).
- [31] LEDERER, C. M. & SHIRLEY, V. S. Table of Isotopes, 7.ed. New York, John Wiley, 1978.
- [32] MANNHART, W. Spectrum-Averaged Neutron Cross Sections Measured in the U-235 Fission-Neutron Field in Mol. In: GENTHON, J.P., ROTTGER, H. Proceedings of the 5th ASTM-EURATOM Symp. on Reactor Dosimetry. Geesthacht, 1984. Dordrecht, D.; Reidel, D. 1984. v.2, p. 813.

- [33] MANNHART, W. Status and Further Needs of Cross Section Covariance Files. In : IAEA. Nuclear Data for Radiation Damage Assessment and Related Safety Aspects: Proceedings of the Advisory Group meeting on..... held in Vienna, 12-16 Oct., 1981. Vienna, 1982. (IAEA-TECDOC-263).
- [34] MANNHART, W. The Neutron Spectrum of Spontaneous Fission of Californium-252. In: IAEA. Handbook on Nuclear Activation Data. Vienna, 1987. (Technical Reports Series N° 273).
- [35] MANNHART, W.; SMITH, D.L.; MEADOWS, J.W. Measurement of the $Ti-47(n,p)Sc-47$ Reaction Cross Section. In: WAGNER, M. & VONACK, H. Neutron Activation Cross Sections for Fission and Fusion Energy Applications: Proceedings NEANDC Specialists' Meeting on Argonne, Ill., September 13-15, 1989. Paris, Nuclear Energy Agency, 1990. p.121-34. (NEANDC-259-U).
- [36] MANNHART, W.; SMITH, D.L.; MEADOWS, J.W. The Discrepancy Between Diferencial and Integral Data on $Ti-47(n,p)$. In: NUCLEAR Data for Basic and Applied Science: Proceedings to the International Conference on.... Santa Fe, New Mexico, (USA), 13-17 May, 1985. Radiat. Eff., 23(1/4): 241-4, 1986.

- [37] MESTNIK, J. F. A Distribuição espacial do fluxo de nêutrons no núcleo do reator IEA-R1, obtida por meio da ativação de folhas. São Paulo, 1978.
(Dissertação de mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares).
- [38] NUCLEAR Data Tables, Section A, V. 7. 1969/1970.
- [39] OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY. Risc Code Collection. SAND. Neutron Flux Spectra Determination by Multiple Foil Activation Iterative Method. Oak Ridge, TN, 1969. (CCC-112).
- [40] PASCHENKO, A. B. Reaction Cross Sections Induced by 14.5 Mev and by Cf-252 and U-235 Fission Spectrum Neutrons. VIENNA, Nuclear Data Section, jan. 1991. (INDC(CCP)-323/L).
- [41] PENTEADO, A. C. F. Irradiações no Reator e Cálculos de Ativação, São Paulo, Instituto de Energia Atômica, nov. 1972. (Inf. IEA-23).
- [42] PEREY, F. G. Covariance Matrices of Experimental Data. In: NEUTRON Physics and Nuclear Data for Reactors and Other Applied Purposses: Proceedings of an International Conference on ... , Harwell, September. 1978. Paris, OECD, 1978. v.1. p. 104-15.

- [43] POENITZ, W. P. Evaluation of $^{235}\text{U}(n,f)$ between 100 keV and 20 MeV. In: CARLSON, A.D. & BHAT, M.R. ENDF/B-V cross-section measurement standards. Upton, N.Y., Brookhaven National Laboratory, oct. 1982. p.59. (BNL-NCS-51619).
- [44] PRICE, W.J. Nuclear Radiation Detection. New York, McGraw-Hill, 1964.
- [45] REACTOR EXPERIMENTS, INC. Material Data Sheet. San Carlos, CA., Nov. 1984.
- [46] ROWLANDS, J.L., SMITH, R.W., STEVENSON, J.M., TAYLOR, W. H. Convergence of Integral and Differential Cross-Section Data for Structural Materials. In: Bockhoff, K.H. Nuclear Data for Science and Technology: Proceedings of the International Conference on ... , Antwerp, 6-10, Sept., 1982. Belgium, 1982. p.85-97.
- [47] TOKAI, I. LSSOLVER. Argonne, Ill., Argonne National Laboratory, s.d. (APD 314).
- [48] WATT, W. L. Energy spectrum of neutrons from thermal fission ^{235}U . Phys. Rev., 87(6):1037-41, 1952.
- [49] ZIJP, W.L. & BAARD, J.H. Nuclear Data Guide for Reactor Neutron Metrology. Luxembourg, Commission of the European Communities, 1981. (EUR 7164 EN.)

- [50] ZIJP, W.L.; RIEFFE, H.CH.; NOLTHENIUS, H.J. Comparison of Measured and Evaluated Spectrum-Averaged Cross-Section Data for Reactor Neutron Metrology. In: Bockhoff, K.H. Nuclear Data for Science and Technology: Proceedings of the International Conference on 6-10. Sept., 1982. Belgium, 1982. p. 397-403.
- [51] ZSOLNAY, E.M. & NOLTHENIUS, H.J. Test of the IRDF-90 V.1- Reactor Dosimetry Library. Petten, Netherlands Energy Research Foundation ECN. 1991. (ECN-I--91-004).