



**SECCÕES DE CHOQUE PARA NEUTRONS DO
PRASEODÍMIO, ITÉRBIO E LUTÉCIO**

*ROBERT ZIMMERMAN, OLIVER MARTINS, MANUEL DE ABREU
e MARIETA DE CAMARGO MATTOS*

Publicação I E A — N.º 51

Junho — 1962

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal 11049 (Pinheiros)
CIDADE UNIVERSITÁRIA "ARMANDO DE SALLES OLIVEIRA"
SÃO PAULO — BRASIL

SECÇÕES DE CHOQUE PARA NEUTRONS DO PRASEODÍMIO,
ITÉRBIO E LUTÉCIO

Robert Zimmerman, Oliver Martins, Manuel de
Abreu e Marieta de Camargo Mattos.

Divisão de Física Nuclear, Instituto de Energia Atômica, S.Paulo.

Publicação IEA nº 51

Junho - 1962.

CONSELHO NACIONAL DE PESQUISAS

Presidente: Almirante Octacílio Cunha

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

Reitor: Prof. Antônio Barros de Ulhôa Cintra

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR

Presidente: Prof. Marcello Damy de Souza Santos

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA

Diretor: Prof. Luiz Cintra do Prado

Conselho Técnico Científico:

Prof. Ivo Wolff
" Rui Ribeiro Franco } pelo C.N.Pq.

Prof. Francisco J.H. Maffei
" José Moura Gonçalves } pela U.S.P.

Divisões Científicas:

Física Nuclear - Chefe: Prof. M.D. de Souza Santos

Física de Reatores - Chefe: Prof. P. Saraiva de Toledo

Radioquímica - Chefe: Prof. Fausto W. Lima

Radiobiologia - Chefe: Prof. R. R. Pieroni

Engenharia Nuclear - Chefe: Prof. L. C. Prado

Metalurgia Nuclear - Chefe: Prof. T.D. de Souza Santos

Engenharia Química - Chefe: Prof. P. Krumholz.

SECCÕES DE CHOQUE PARA NEUTRONS DO PRASEODÍMIO, ITÉRBIO E LUTÉ-
CIO *

**

Robert Zimmerman, Oliver Martins, Manuel de Abreu e Marieta de Camargo Mattos.

RESUMO

A secção de choque total foi medida para os óxidos das terras raras raras praseodímio, itérbio e lutécio para a energia dos neutrons variando de 0,015 a 0,3 eV com especial atenção para conseguir valores na energia térmica. Para essas medidas, usou-se no reator do I.E.A. um monocromador de neutrons a cristal de calcita natural. As amostras dos óxidos foram fornecidas pelos laboratórios de pesquisa da Orquima S.A. Verificou-se, experimentalmente, a pureza do praseodímio cuja secção de choque é a mais sensível a impurezas de alta secção de choque, fazendo-se a medida destas antes e depois de um processo de purificação que deveria diminuir a concentração do gadolínio de um fator superior a cem. A concordância dos resultados obtidos indica que as amostras de óxidos usadas no presente trabalho continham quantidades desprezíveis de gadolínio e samário. A correção das secções de choque, devida à presença da reflexão de segunda ordem dos cristais, foi feita experimentalmente medindo-se a secção de choque conhecida do ouro no intervalo conveniente de energia. Em um destes elementos, o lutécio, existe uma ressonância nuclear dentro do intervalo estudado. Os parâmetros encontrados para essa ressonância coincidem com os valores publicados, mas com uma melhor aproximação. Cálculos com a fórmula de Breit-Wigner para essa ressonância no lutécio e para a secção de choque do praseodímio mostram que nenhum estado ligado, na vizinhança, é necessário para explicar a grandeza e forma dos resultados experimentais. Provas de um estado ligado existem no caso do itérbio.

..

* Esse trabalho foi em parte subvencionado pela Comissão Nacional de Energia Nuclear, do Brasil.

** Cientista do Case Institute of Technology, Cleveland, Ohio, pelo intercâmbio da Agência Internacional de Energia Atômica.

SECÇÕES DE CHOQUE PARA NEUTRONS DO PRASEODÍMIO, ITÉRBIO E LUTÉ- CIO

Introdução.

Grande atenção tem sido dedicada à determinação experimental e à teoria das secções de choque das terras raras para a absorção de neutrons. Estando as terras raras presentes nos produtos de fissão, suas secções de choque representam um papel importante nos cálculos dos físicos de reatores, que devem predizer os efeitos de todos os absorvedores de neutrons em um reator nuclear. Além disso, as terras raras estão entre os nuclídeos cuja secção de choque para absorção abaixo de um milhão de eletron volts é maior que a da maioria dos outros nuclídeos, devido ao fato de seus raios serem tais que, em relação ao comprimento de onda do neutron incidente, tornam grande a penetrabilidade efetiva da superfície nuclear¹. Finalmente, as terras raras possuem, em geral, um número de nucleons que se situa entre os números necessários para completar as camadas nucleares. Isto explica porque os núcleos de terras raras têm um grande número de níveis disponíveis, tornando interessante o estudo relativo a neutrons térmicos e rápidos. Os parâmetros desses níveis nucleares entram, muitas vezes, nos cálculos de projetos de reatores, e são também de grande importância para a física nuclear teórica.

Embora estas razões tenham levado os físicos experimentais a coletar uma grande quantidade de dados², ainda há alguns elementos cujas secções de choque nunca foram medidas no intervalo térmico de

..

1. Feshback, Porter e Weisskopf, Physical Review 96, (1954).
2. D.J.Hughes e R.B.Schwartz, Neutron Cross Sections, U.S. Government Printing Office, (1958).

2.

energia, ou para as quais as medidas existentes mostram discrepâncias relativas aos métodos usados para sua determinação.

Apesar destas medidas serem, em princípio, muito simples, os materiais são, muitas vezes, raríssimos e bem difíceis de serem purificados suficientemente, ou pode-se apresentar uma combinação destas duas dificuldades.

Felizmente, no Brasil, temos uma vasta fonte de minérios de terras raras nas areias monazíticas, e a indústria local está bem equipada para separar e purificar cada uma das terras raras. Uma destas indústrias isolou alguns destes materiais em quantidade e grau de pureza desconhecidos em qualquer outra parte do mundo.

Por duas razões preferimos concentrar nossos esforços na medida das secções de choque do praseodímio, lutécio e itérbio no intervalo térmico de energia: primeiro, por não existirem aí medidas, e segundo porque para o lutécio e itérbio as extrapolações das medidas da secção de choque total em energias mais altas, subtraindo-se a secção de choque de espalhamento, não concordam com a medida da secção de choque de absorção obtida com o oscilador de pilha.

Arranjo experimental.

Os neutrons para êsse trabalho foram produzidos pelo reator de pesquisa do Instituto de Energia Atômica, que é um reator tipo piscina, projetado pela Babcock-Wilcox para operar com a potência máxima de cinco milhões de watts. Durante a maior parte das experiências, o reator operou oito horas por semana a dois milhões de watts, não só para esta experiência, como também para produção de radioisótopos e outras pesquisas. Recentemente, quando a procura de radioisótopos aumentou e novas experiências o exigiram, o funcionamento do reator aumentou para duas irradiações semanais de rotina com fun

cionamento a baixa potência nos dias intermediários. O critério sempre tem sido de operar o reator de maneira a acomodar todos os pedidos, coordenados, feitos pelas várias divisões, para utilização do fluxo de neutrons.

O espectrômetro de cristal foi colocado junto ao reator em um dos quatorze tubos de irradiação. O feixe de neutrons passa do moderador junto ao caroço do reator, através de um tubo cheio de ar, com colimador, para o espectrômetro do lado de fora da blindagem. O fluxo térmico de neutrons, medido com fôlhas de ouro, próximo do caroço do reator é $2,4 \times 10^{12}$ n/cm²/seg. com o reator a dois milhões de watts. Uma porta de chumbo permite fechar a saída do tubo de irradiação.

A parte mecânica que sustenta o espectrômetro de cristal foi construída nas oficinas do Instituto de Energia Atômica; consiste em uma coluna de aço que suporta a mesa do cristal e o braço móvel do detetor. O braço do detetor pode mover-se de um arco de noventa graus no plano horizontal partindo da direção do feixe direto. Os ângulos podem ser lidos num nônio com a precisão de 0,01 grau.

De um modo geral, o projeto do espectrômetro e do sistema de detecção é semelhante ao descrito na literatura já publicada há bastante tempo ^{3,4,5,6}.

.-.

3. Hurst, Pressesky e Tunnicliffe, Reviews of Scientific Instruments 24, 141 (1953).
4. W.J. Sturm, Physical Review, 71, 757 (1947).
5. W.H. Zinn, Physical Review, 71, 752 (1947).
6. L.B. Borst e V. L. Sailor, Reviews of Scientific Instruments, 21, 705 (1950).

A mesa suporte do cristal tem seis graus de liberdade e pode ser ajustada manualmente para otimizar o alinhamento.

O alinhamento do espectrômetro é feito periodicamente, usando-se placas fotográficas e usando-se o feixe residual de gamas ou feixe de neutrons do reator para um alinhamento grosso; usam-se detetores de trifluoreto de boro para o alinhamento fino. Estes últimos foram colocados na sua posição normal, no braço do espectrômetro, para estabelecer com precisão a posição do feixe direto do reator; em seguida, com o braço do detetor colocado num certo ângulo, o cristal é montado e ajustado para otimizar a razão de contagem.

Uma experiência preliminar foi feita com o espectrômetro usando-se espelho em lugar do cristal e um teodolito. Verificou-se que o ângulo de Bragg pode ser reproduzido com precisão menor do que um minuto de arco. Além disso, essa experiência confirmou que existe uma folga relativamente grande nas engrenagens de redução de dois para um, do espectrômetro. A relação dois para um pode ser mantida com menos de três minutos durante uma operação que envolva muitas mudanças do ângulo do espectrômetro. Nas medidas de secção de choque nenhuma dificuldade foi encontrada, nem na reprodução de um ângulo, nem na manutenção da relação dois para um em um largo intervalo angular.

As medidas de secção de choque foram feitas com cristais naturais de calcita, com distância interplanar igual a $3,03 \cdot 10^{-8}$ cm. Foi usado como detetor principal um detetor BF_3 comercial, enriquecido em 90% no isótopo boro-10, a uma pressão de 120 cm de Hg, tendo uma blindagem cilíndrica de ácido bórico e parafina em camadas coaxiais, tendo o detetor como eixo. O monitor do feixe direto é um contador do mesmo tipo, com baixa eficiência, devida ao alto fluxo. Foi utilizado um sistema de 3 canais independentes, dois dos quais para o sistema principal e um para o sistema de monitoração. Os componen-

tes do sistema principal foram os seguintes:

1. Fonte de alta tensão estabilizada.
2. Pré-amplificador com seguidor de catodo.
3. Amplificador linear.
4. Discriminador de altura de pulso.
5. Scalers, registradores e medidores de razão de contagem.
6. Contrôles remoto do espectrômetro.
7. Estabilizador eletrônico de voltagem.

Para diagrama, ver figura 1.

Uma grande parte do equipamento eletrônico, inclusive todos os componentes essenciais, foi construída pela indústria local de acordo com projetos modernos.

Como medida de proteção radiológica da equipe do espectrômetro, foi construído um "beam-catcher" de camadas concêntricas de ácido bórico e parafina. Atrás do "beam-catcher" foi levantada uma parede com tijolos de concreto de barita com meio metro de espessura, aproximadamente.

O controle do fluxo de neutrons ao longo do feixe, desde a saída do primeiro colimador até a entrada do "beam-catcher", foi feito por três diferentes processos:

1. Cálculo geométrico, considerando somente a abertura do feixe.
2. Pelo método das folhas de ouro.
3. Com um contador BF_3 .

Alguns resultados, todos normalizados para dois milhões de watts, aparecem na Tabela I. Como posição padronizada usamos, em todas as experiências, o ângulo de 25 graus, entre o detetor e o feixe dire-

6.

to, correspondendo para a calcita a energia de 0,0470 elétron volts, na qual o número de neutrons que atinge o detetor é de 2.440 n/seg.

As amostras, preparadas da maneira que será descrita na secção seguinte, são colocadas em recipientes de alumínio e introduzidas no feixe numa posição que pode ser reproduzida com alta precisão. A transmissão através da amostra é obtida pelas medidas das razões de contagens com a amostra no feixe e com o recipiente, idêntico, vazio, no feixe. Um pequeno "background" foi subtraído de cada contagem; êste foi obtido pela rotação do cristal de modo a tirá-lo do correspondente ângulo de Bragg, o bastante para desviar todos os neutrons devidos a espalhamento coerente. Os recipientes das amostras são mudados manualmente e as razões de contagem registradas, também, manualmente.

Para evitar influência sôbre a transmissão das variações de potência do reator e da instabilidade dos aparelhos eletrônicos são tomadas as seguintes precauções:

1. As medidas de transmissão são repetidas várias vezes em ciclos de duração de cêrca de 5 minutos, de acôrdo com uma rotina projetada para cancelar deslocamentos lineares.
2. O fluxo do reator é monitorado durante as medidas com um detetor e um sistema eletrônico independentes.
3. Os pulsos do detetor principal são amplificados, analisados e contados por dois sistemas eletrônicos independentes. Dessa maneira a estabilidade dos sistemas pode ser verificada continuamente pela relação entre duas razões de contagem.
4. As fontes de alta tensão, amplificadores e analisadores estão ligados a estabilizadores eletrônicos da corrente alternada da linha.

Preparação de Amostras.

Os óxidos de praseodímio, lutécio e itérbio foram colocados em recipientes projetados para dar a melhor transmissão⁷ no intervalo de energia 0,01 a 0,4 elétron volts, tomando como secção de choque média neste intervalo o valor extrapolado dos valores já conhecidos.

As amostras usadas foram fornecidas pelos laboratórios da Orqui^{ma} S.A., que, através de um método de purificação usando resinas iônicas, nos garantiu o grau de pureza necessário para essas experiências.

Os efeitos da contaminação das amostras pela água foram sentidos nas primeiras medidas por um aumento da secção de choque medida com o tempo. Para evitar esta contaminação as amostras foram calcinadas durante uma hora a 900°C e colocadas num secador durante o intervalo das medidas. Feito isto, o peso das amostras foi controlado durante a experiência e a secção de choque medida na energia de 0,0470 elétron volts foi colocada num gráfico contra a data da experiência, não se observando variações maiores que o erro experimental.

A ausência de gadolínio em quantidade capaz de afetar o valor da secção de choque medida foi testada pela medida antes e depois de um processo de purificação, que devia diminuir a concentração de gadolínio de um fator superior a cem, o que não acusou variações da secção de choque medida fora do erro experimental.

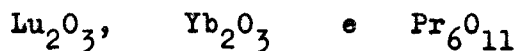
As fórmulas consideradas⁸ para os óxidos usados foram:

..

7.M.E.Rose e M.M.Shapiro, Physical Review 74, 1853 (1948).

8.R.C. Vickery, Chemistry of the Lanthanons pg.247, (Academic Press, Incorporated, 1953).

8.



Nos dois primeiros óxidos pequenos afastamentos destas fórmulas-grama não afetam muito as medidas, pois o lutécio e o itérbio têm secções de choque bastante altas em relação à do oxigênio. Para o óxido de praseodímio foi considerada como fórmula grama Pr_6O_{11} , determinada após calcinação durante uma hora a 900°C , dissolvendo-se o óxido em ácido clorídrico, na presença de iodeto de potássio. O iôdo libertado corresponde ao oxigênio ativo, isto é, não estequiométrico, existente no Pr_2O_3 . Este iôdo é titulado com tiosulfato de sódio (ver apêndice I).

Cálculo da Secção de Choque.

Para a medida das secções de choque, as contagens foram feitas em ciclos de cinco minutos em média. Para efeito de cálculo, as contagens correspondentes e o respectivo tempo foram somados e o cálculo da secção de choque foi feito para os dois canais, independentemente, através da fórmula

$$\sigma = \frac{1}{N} \ln \left(\frac{I - B_g}{I_0 - B_{g_0}} \right) - B, \quad (1)$$

onde σ é a secção de choque do elemento, I é a razão total de contagem com amostra, I_0 é a razão total de contagem sem amostra, B_g é a razão total de contagem no "background", com amostra, B_{g_0} é a razão total de contagem no "background" sem amostra, B é uma constante que depende da composição química da amostra e

$$n = c. \quad \frac{N_0 m}{A} ;$$

A. (área da secção reta)

nesta última fórmula, A é a massa molecular do composto, c depende da estequiometria da amostra e n é a massa da amostra. Para o cálculo do erro usou-se a fórmula convencional⁷.

Os cálculos foram feitos duas vezes para cada um dos dois canais, independentemente, por operadores diferentes e os quatro resultados foram comparados, a fim de eliminar erros de cálculo.

Para o itérbio e praseodímio há apenas a correção devida ao oxigênio. Para o lutécio, além da correção devida ao oxigênio, de ve-se fazer a correção devida à percentagem de 8,5% de óxido de itérbio.

A correção de segunda ordem foi feita usando-se como amostra padrão o ouro, cuja secção de choque microscópica, correta, em uma certa energia (primeira ordem), é conhecida com precisão. A fórmula usada para a correção de segunda ordem foi:

$$\sigma = \sigma_m - \frac{1}{n} \ln \left[1 + k (1 - e^{n(\sigma_m - \sigma_2')}) \right] \quad (\text{A.1})$$

(Vêr apêndice II).

Comparação com a fórmula de Breit-Wigner.

A fórmula de Breit-Wigner, como aparece expressa pela fórmula (A.2), no apêndice III, foi ajustada para os valores experimentais do itérbio. Não medimos experimentalmente a secção de choque perto do pico de ressonância mais próximo, que se sabe ser devida ao isótopo Yb^{168} , mas trabalhamos numa região em que sua influência se faz sentir. No cálculo de σ relativo à energia de ressonância $E_0 = 0,597$, usamos os valores⁹ $\sigma_0 \Gamma^2 = 1,28 \text{ barns. ev}^2$,

..

9. Sailor, Landon, e Foote. Phys.Rev.96, 1014, (1954). Vêr também referência 2.

10.

$\Gamma_\gamma = 0,073$ ev, onde σ_0 é o valor da secção de choque para a energia E_0 . A fórmula de Breit-Wigner se torna

$$\sigma = \frac{4,28 \sqrt{\frac{E_0}{E}}}{4 (E - 0,597)^2 + 0,0053} + \sigma_{\text{pot}} + \frac{a}{\sqrt{E}}, \quad (2)$$

onde a é um parâmetro que pode ser ajustado dependendo da absorção devida a ressonâncias afastadas dessa região. Para esta fórmula teórica concordar com a curva experimental determinamos as constantes

$$\sigma_{\text{pot}} = 18 \text{ barns e } a = 8,0 \text{ barns. ev}^{1/2}; \text{ vê-se pela figura 2 que } \frac{a}{\sqrt{E}} = \sigma_a.$$

A fórmula usada para os dados do lutécio foi a fórmula (A.3) que aparece no apêndice III. Sabe-se que o lutécio tem um "spin" muito alto, que é igual a 9 ou 10, e, assim sendo, g é muito próximo de $1/2$.

Para o Lu^{176} tomamos $f = 0,0264$

$$\sigma_{\text{pot}}^g = 10^g,$$

onde σ_{pot} foi tomado através dos valores dos núcleos vizinhos.

Para o ajuste das curvas teórica e experimental determinaram-se os parâmetros Γ_n^0 e Γ_γ , obtendo-se os valores

$$\Gamma_\gamma = 0,0584 \pm 0,003 \text{ ev}, \quad \Gamma_n^0 = 0,000201 \pm 0,000004 \text{ ev e a}$$

constante $a = 10 \text{ barns. ev}^{1/2}$. Na região de ressonância o valor obtido foi $E_0 = 0,141 \pm 0,002$ ev. Os resultados obtidos são comparáveis aos dados experimentais como aparece nas figuras 3 e 4.

No caso do praseodímio os pontos experimentais são relativos a energias muito inferiores à do pico de ressonância mais próximo, que é para $E_0 = 85,5$ ev. Na região em que trabalhamos, ou seja, no intervalo 0,015 a 0,5 ev o primeiro termo da fórmula (A.3), que aparece no apêndice III, torna-se desprezível e a secção de choque varia em função da energia segundo a fórmula:

$$\sigma = \sigma_{\text{pot}} + \frac{a}{\sqrt{E}} ;$$

as constantes σ_{pot} e a são determinadas a fim de a curva teórica coincidir com a curva experimental, obtendo-se os valores

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{pot}} &= 3,3 \text{ barns} \\ a &= 2,05 \text{ barns. ev}^{1/2} . . \end{aligned}$$

O resultado pode ser visto na figura 5.

Resolução.

A resolução da energia de um monocromador de cristal para neutrons é determinada, até certo ponto, pela colimação inicial, pela colimação no braço do espectrômetro, e pela estrutura mosaica do cristal. Poucas vezes é determinada completamente por um ou dois destes, como se pode vêr na literatura.

É costume otimizar a razão de contagem fazendo-se uma experiência auxiliar com o braço do espectrômetro fixo e variando-se o ângulo do cristal. O resultado é a conhecida curva de "rocking". A meia largura $\Delta\theta_R$ desta curva quase simétrica é determinada, em geral, pela geometria dos dois colimadores e pela estrutura mosaica do cristal, e pode ser aproximadamente dada por

$$\Delta\theta_R = \sqrt{\left(\frac{\Delta\theta_1}{2}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\theta_2}{2}\right)^2 + (\Delta\theta_m)^2} . (3)$$

$\Delta\theta_1$, $\Delta\theta_2$ e $\Delta\theta_m$ são meias larguras das divergências angulares dos neutrons provenientes dos dois colimadores, e da distribuição angular dos micro-cristais no monocromador, respectivamente. Cada uma delas foi aproximada a fim de ter uma forma Gaussiana, aqui admitida como sendo igual nas duas direções vertical e horizontal.

Na experiência da secção de choque, é claro que nem o braço do espectrômetro nem o cristal é movido, e a resolução, ou a meia altura da distribuição de probabilidade dos ângulos de Bragg, que ocorre com os neutrons detetados, é uma função complicada dos três parâmetros $\Delta\theta_1$, $\Delta\theta_2$ e $\Delta\theta_m$. Notemos que ela não é, sempre, simplesmente relacionada à curva de "rocking" $\Delta\theta_R$.

Se o ângulo de colimação no braço do espectrômetro, $\Delta\theta_2$, for maior que $\Delta\theta_1 + 2\Delta\theta_m$, a resolução, R , é dada aproximadamente por

$$R = \sqrt{(\Delta\theta_m)^2 + \left(\frac{\Delta\theta_1}{2}\right)^2} \quad (4)$$

A resolução é, pois, principalmente determinada pelo maior dos dois ângulos debaixo do radical, e não é relacionada de uma maneira sensível aos resultados experimentais da curva de "rocking".

Se $\Delta\theta_2$ for muito menor que $\Delta\theta_1$ e também que $2\Delta\theta_m$, a resolução é

$$R = \Delta\theta_m \quad \text{se } \Delta\theta_1 > 2\Delta\theta_m$$

ou

$$R = \frac{\Delta\theta_1}{2} \quad \text{se } \Delta\theta_1 < 2\Delta\theta_m$$

(5)

Assim, a resolução é determinada pelo menor dos dois ângulos considerados anteriormente, e é com maior razão relacionada à largura da curva de "rocking", fazendo-se $\Delta\theta_2$ tender a zero na equação

(3.).

Sòmente para abertura do colimador do braço do espectrômetro intermediária entre os dois valôres extremos considerados acima, $\Delta \theta_2$ afeta a resolução e pode ser usada como um meio conveniente de alterá-la.

Com o cristal de calcita natural usado em nossas experiências, observou-se que a curva de "rocking" tem uma meia largura de 22 minutos. A divergência angular dos colimadores foi medida obtendo-se 19 minutos para o primeiro, e 15 minutos para o segundo, ou seja, para o colimador no braço do espectrômetro.

A equação dá, pois, a estrutura mosaica do cristal como sendo mais ou menos 18 minutos. Na prática, o segundo colimador foi idealizado para dar 15 minutos, a fim de deixar a resolução quase que inteiramente para ser determinada pela estrutura do cristal, neste caso.

Os colimadores foram construídos de aço, e o efeito da reflexão de suas paredes pode ser desprezado.

Com $R = \Delta \theta_m = 18$ minutos, como na equação 3, não há correção da resolução, exceto para o caso do lutécio. A secção de choque no pico exige, no caso do lutécio, uma correção da resolução de 2% e a correção dos outros parâmetros é da mesma ordem.

Conclusão.

Nossos resultados experimentais, calculados conforme secção precedente, aparecem na tabela II.

Em cada caso, nossos resultados podem ser usados para determinar o valor da secção de choque total em energias térmicas. Usando-

se o comportamento calculado teòricamente das secções de choque em baixa energia, um grande número de pontos pode aparecer para ajudar a determinação do valor das secções de choque térmicas, e das secções de choque parciais σ_s e σ_a podem ser também determinados, ainda que com menor precisão. Os resultados desta análise aparecem na Tabela III, assim como os resultados publicados anteriormente. Uma comparação somente poderia ser feita para secções de choque parciais, uma vez que não existe nenhuma medida anterior da secção de choque total em energia térmica.

A Tabela III mostra que as nossas medidas da secção de choque total do praseodímio concordam com os resultados publicados anteriormente. Precisamos levar em conta um êrro experimental relativamente grande nas nossas secções de choque parciais por causa da incerteza quanto à divisão correta da secção de choque total em duas componentes.

Acontece o mesmo com o lutécio, cuja secção de choque de absorção publicada anteriormente coincide com a nossa secção de choque total, levando em conta a grande imprecisão ao se calcular a secção de choque de espalhamento.

Por outro lado, nosso resultado para o itérbio diverge da secção de choque de absorção até agora existente. Além disso, a grande secção de choque de ativação anteriormente observada² para o isótopo 168 explica a absorção de 15 barns no itérbio normal, das quais apenas 5 barns provém do nível observado em 0,597 ev. Um estado ligado no isótopo 168 perto da energia dos neutrons igual a zero deveria, naturalmente, explicar esta discrepância e poderia explicar também a nossa observação de que a secção de choque de espalhamento é mais alta do que se poderia esperar do espalhamento potencial sozinho. Quando os parâmetros de ressonância e as considerações isotópicas de ressonâncias correspondentes a mais alta energia são co-

nhecidos, podemos calcular os parâmetros possíveis e a posição deste estado ligado.

Um outro grupo do Instituto de Energia Atômica vai medir a secção de choque de absorção de algumas terras raras importantes, comparando a idade do neutron em uma solução que contém o material desconhecido com aquela obtida por uma solução contendo um material padrão; neutrons moderados serão fornecidos por um aparelho Van de Graaff. Os resultados deste trabalho porão à prova as medidas anteriores feitas com osciladores de pilha, e talvez eliminem a discrepância entre nossa secção de choque total do itérbio e a secção de choque de absorção publicada precedentemente (vêr Tabela II).

Apêndice I.

Determinação de Oxigênio Ativo no Óxido de Praseodímio.

Alcídio Abrão*

1. Princípio.

O óxido é dissolvido com ácido clorídrico na presença de iodeto de potássio e o iôdo libertado é titulado com tiosulfato. O iôdo livre corresponde ao oxigênio ativo.

2. Reagentes.

a) Amido: 2,5 g/l - Dissolver em água quente, ferver, esfriar, e diluir. Usar soluções recentemente preparadas.

b) Tiosulfato de sódio, $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$, 0,1 M (24,82 g/l). Pesar 25 g do sal, dissolver em água quente, colocar 0,1g de Na_2CO_3 , esfriar e completar o volume em balão volumétrico.

.-.

* Chefe do Setor de Química Analítica, Divisão de Radioquímica, IEA.

16.

c) Tiosulfato de Sódio 0,01M. Diluir a solução b dez vezes.

Padronização do Tiosulfato.

i) iôdo - Num pesa-filtro colocar 2-3g de KI e dissolver no mínimo de água (1 a 2 ml). Pesar o conjunto. Adicionar 0,4 a 0,5 g de iôdo ressublimado. P.A. e repesar o conjunto analiticamente.

ii) titulação - Passar o conjunto para um copo contendo 200 ml de solução 1- de KI (2g de KI em 200 ml de água) e titular com o tiosulfato de sódio, usando 5 ml de amido.

iii) reação - $2 \text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 + \text{I}_2 = \text{Na}_2\text{S}_4\text{O}_6 + 2\text{NaI}$; logo,
título do tiosulfato = massa de iôdo/vol. tiosulfato x 126,92.

d) Ácido clorídrico 1+1 . Um volume de ácido clorídrico P. A.+ um volume de água.

e) Solução de KI - Dissolver 100g de KI num litro de água. Guardar em frasco de âmbar.

3. Dissolução do óxido.

Aparelho - Um erlenmeyer de 125 ml, com boca esmerilhada, tampa esmerilhada e condensador com adaptação esmerilhada para o erlenmeyer.

Dissolução.

Pesar (analiticamente) aproximadamente 100mg do óxido, passar para o erlenmeyer com o mínimo de água, juntar 10ml da solução de KI 100mg/l (1g de KI) e adaptar o condensador verticalmente. Adicionar, pelo condensador, 5ml de HCl 1 + 1 e aquecer durante 5-10 mi nutos, até que todo óxido seja solubilizado, mantendo boa circula-

ção de água pelo refluxo.

Retirar a manta de aquecimento. Adicionar, pelo condensador, 20 ml de água gelada, lavando as paredes. Resfriar o erlenmeyer com água gelada, mantendo ainda adaptado o condensador. Retirar o erlenmeyer, imediatamente titular com tiosulfato 0,01 M, usando 5ml da solução de amido.

Na impossibilidade de imediatamente titular ou precisando ser transportado o erlenmeyer, fechá-lo com a tampa esmerilhada.

Prova em branco.

Repetir o processamento usando apenas 10ml de KI 100g/l e 5ml de HCl e titular o iôdo libertado.

Cálculo:

$$V = \frac{V. 1,6492}{m - 0,08 V} \quad \begin{array}{l} \text{átomos de oxigênio ativo por} \\ \text{fórmula grama } \text{PrO}_3. \end{array}$$

V = volume de tiosulfato 0,01M (já corrigido p/fator e descontada a prova em branco), em mililitros.

m = massa do óxido de praseodímio em miligramas.

Massas atômicas e fórmula-grama usadas :

$$\begin{array}{l} \text{O} = 16,00 \\ \text{I} = 126,92 \\ \text{Pr} = 140,92 \\ \text{Pr}_2\text{O}_3 = 329,84 \\ \text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O} = 248,21 \end{array}$$

Referências.

1. Scott's Standard Methods of Chemical Analysis
5ª edição vol. 1 pag. 448-461.
2. Chemistry of the Lanthanons-R.C. Vickery (1953) pg. 257.

Apêndice II.

Sendo σ^* a secção de choque medida da amostra padrão, com contaminação de segunda ordem, I_1 e I_2 intensidade dos feixes diretos, i_1 e i_2 intensidade dos feixes transmitidos através da amostra, σ_1 e σ_2 secções de choque da amostra padrão, a intensidade do feixe direto medido é $I = I_1 + I_2$, do feixe transmitido, $i = i_1 + i_2$; chamando-se de k a relação:

$$k = \frac{I_2}{I_1}, \text{ tem-se: } \frac{I}{i} = \frac{I_1 + I_2}{i_1 + i_2}$$

e chega-se a $k = - \frac{1 - e^{n(\sigma^* - \sigma_1)}}{1 - e^{n(\sigma^* - \sigma_2)}}$; sendo agora

σ_1' = secção de choque na energia E_1 do material em questão,
 σ_m = secção de choque medida na energia E_1 , σ_2 = secção de choque na energia $E_2 = 4E_1$, n = constante da amostra,

$$e^{n\sigma_m} = \frac{1+k}{1+ke^{n(\sigma - \sigma_2')}} e^{n\sigma};$$

chega-se a

$$\sigma = \sigma_m - \frac{1}{n} \ln \left[1 + k (1 - e^{n(\sigma_m - \sigma_2')}) \right]. \quad (\text{A.1})$$

Apêndice III.

A fórmula de Breit-Wigner determina a secção de choque σ , em função da energia E para um único nível em E_0 .

Define-se Γ_n como largura reduzida para emissão de neutrons; representa a probabilidade parcial para a emissão de neutrons, reduzida para valor relativo a 1 ev.

$$\Gamma_n = \Gamma_n^0 \sqrt{E},$$

onde Γ_n representa a probabilidade de desintegração para emissão de neutrons; é a largura parcial. Γ_γ , a probabilidade de desintegração para emissão de raios γ . Γ , a probabilidade de desintegração; é, aproximadamente, a largura de nível na meia altura.

$$\Gamma = \Gamma_n + \Gamma_\gamma ;$$

substituindo-se êstes valôres na fórmula de Breit-Wigner, ela se torna:

$$\sigma = \frac{\lambda^2}{4\pi} \cdot \frac{fg \Gamma_n^0 \left(\Gamma_n^0 + \frac{\Gamma}{\sqrt{E}} \right)}{(E-E_0)^2 + \frac{1}{4} (\Gamma_n^0 \sqrt{E} + \Gamma_\gamma)^2} + \sigma_{\text{pot}} + \frac{a}{\sqrt{E}}$$

Define-se f como a abundância isotópica; g é um fator estatístico, dependente do "spin".

$$g = \frac{1}{2} \frac{2J+1}{2I+1}$$

$$J = I \pm \frac{1}{2}.$$

I é o "spin" do núcleo a ser atingido, J é o "spin" do núcleo composto. Define-se σ_{pot} como sendo a secção de choque devida ao potencial de espalhamento. $a = \sigma_a \sqrt{E}$, onde σ_a é a secção de choque de absorção devida a outras ressonâncias.

A fórmula de Breit-Wigner se torna:

$$\sigma = \frac{fg \cdot 0,6511 \cdot 10^6 \Gamma_n^0 \left(\Gamma_n^0 + \frac{\Gamma_f}{\sqrt{E}} \right)}{(E-E_0)^2 + \frac{1}{4} \left(\Gamma_n^0 \sqrt{E} + \Gamma_f \right)^2} + \sigma_{\text{pot}} + \frac{a}{\sqrt{E}} \quad (\text{A.3})$$

Cálculos feitos mostraram, no nosso caso, que o termo devido à interferência entre o espalhamento potencial e o espalhamento de ressonância é desprezível.

Para se calcular $\frac{\lambda^2}{4\pi}$, onde λ é o comprimento de onda do neutron, assumimos na expressão de de Broglie $\lambda^2 = \frac{h^2}{2mE}$ os seguintes valores para a constante de Plank h e para a massa do neutron m , e para as conversões de unidades:

$$h = 6,625 \times 10^{-27} \text{ erg. seg.}$$

$$m = 1,675 \times 10^{-24} \text{ g.}$$

$$1 \text{ ev} = 1,602 \times 10^{-12} \text{ erg.}$$

$$1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$$

O resultado é

$$\frac{\lambda^2}{4\pi} = \frac{0,6511 \cdot 10^6}{E} \text{ barns.}$$

A fórmula de Breit-Wigner pode ser escrita, pois, na forma seguinte:

$$\sigma = \frac{\sigma_0 \Gamma^2}{4} \frac{\sqrt{\frac{E_0}{E}}}{(E-E_0)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} + \sigma_{\text{pot}} + \frac{a}{\sqrt{E}} \quad (\text{A.2})$$

Agradecimentos.

Agradecemos a valiosa colaboração dos técnicos Roberto Stasiulevicius e Achilles A. Suarez e à equipe de controle do reator, os quais tornaram possível esta pesquisa e nos facilitaram ao máximo a solução dos problemas surgidos.

Agradecemos também a colaboração da Divisão de Radioquímica nas pessoas do Dr. Fausto W. Lima e prof. Alcídio Abrão.

Para finalizar, desejamos salientar que estas medidas foram possíveis graças à competência e boa vontade do Dr. K.Brill, da Orquima S.A., que nos forneceu as amostras com alto grau de pureza.

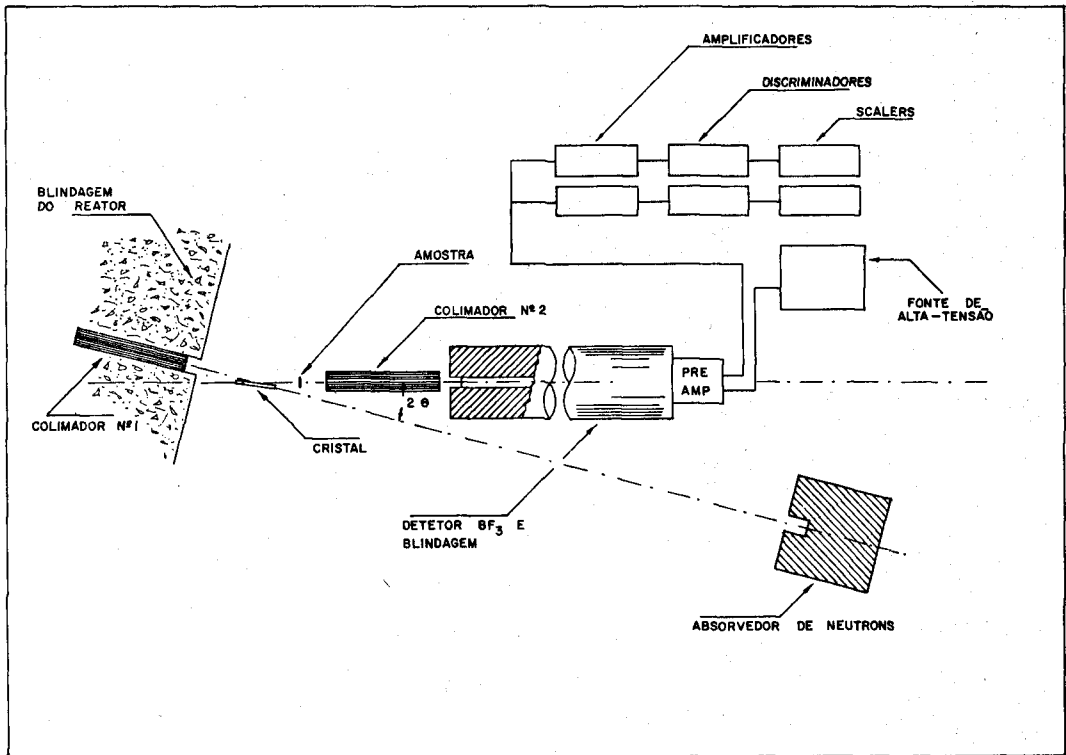


Figura 1.

Diagrama esquemático do espectrômetro e do equipamento eletrônico. Não está representado o contador de monitoração, colocado próximo ao feixe direto, nem sua parte eletrônica que é em tudo semelhante à do detector principal.

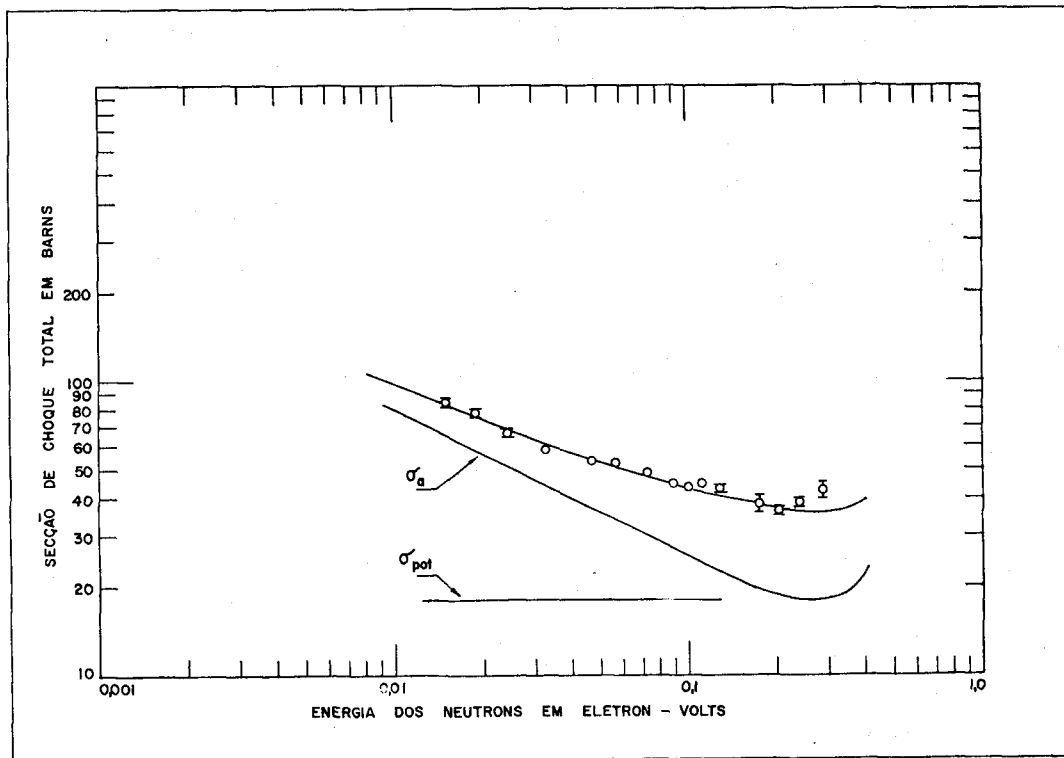


Figura 2.

Secção de choque total para neutrons, do itérbio.

$\sigma_{pot} = 18$ barns e σ_a de absorção devida a outras ressonâncias distantes, somadas com a contribuição da ressonância do Yb^{168} na energia de 0,597 ev foi usada para obter uma concordância com os dados experimentais. Foram usados os valores publicados para os parâmetros a fim de calcular a contribuição dessa ressonância. Os erros estatísticos são menores que os pontos experimentais, exceto onde são indicados.

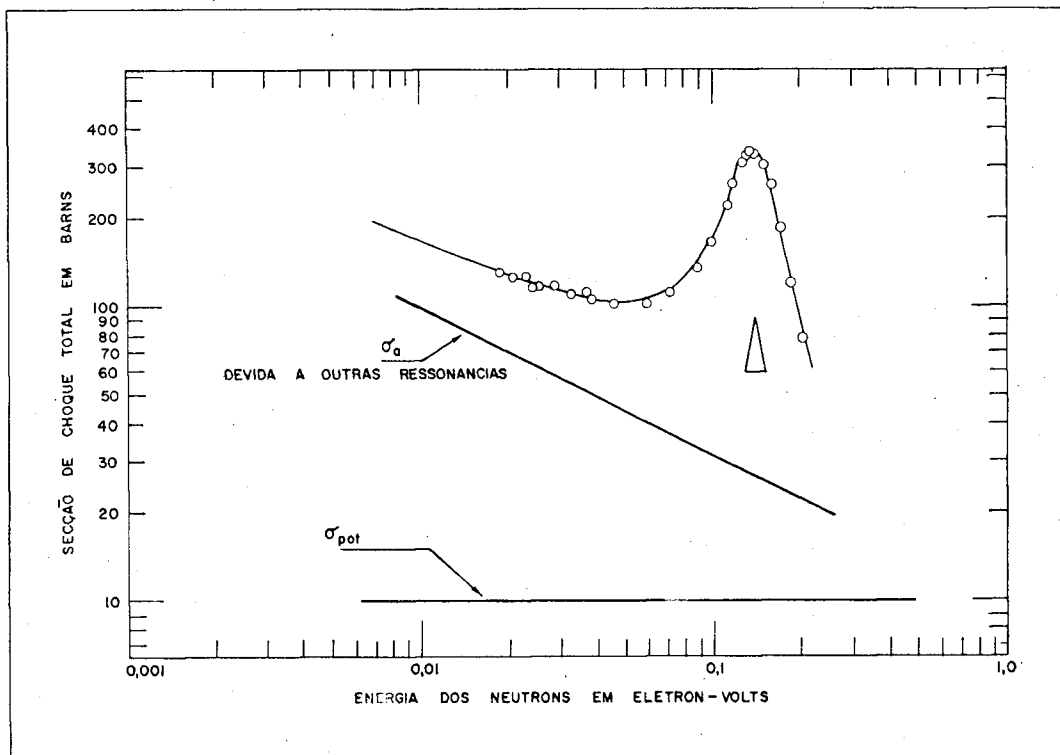


Figura 3

Secção de choque total para neutrons do lutécio.

A curva sólida ajustada para os pontos experimentais já está afetada pela resolução e foi calculada pela fórmula de Breit-Wigner, assumindo-se os valores: $E_0 = 0,141 \pm 0,002 \text{ ev}$, $\Gamma_\gamma = 0,058 \pm 0,003 \text{ ev}$, $\Gamma_n = 0,000201 \pm 0,000004 \text{ ev}$; $\sigma_{\text{pot}} = 10 \text{ barns}$ foi tomada por comparação com os nuclídeos vizinhos. Não é necessário nenhum estado ligado próximo, mas apenas a contribuição usual de ressonâncias distantes e do potencial de espalhamento que são mostrados por linhas retas. Os erros estatísticos são menores que os pontos experimentais.

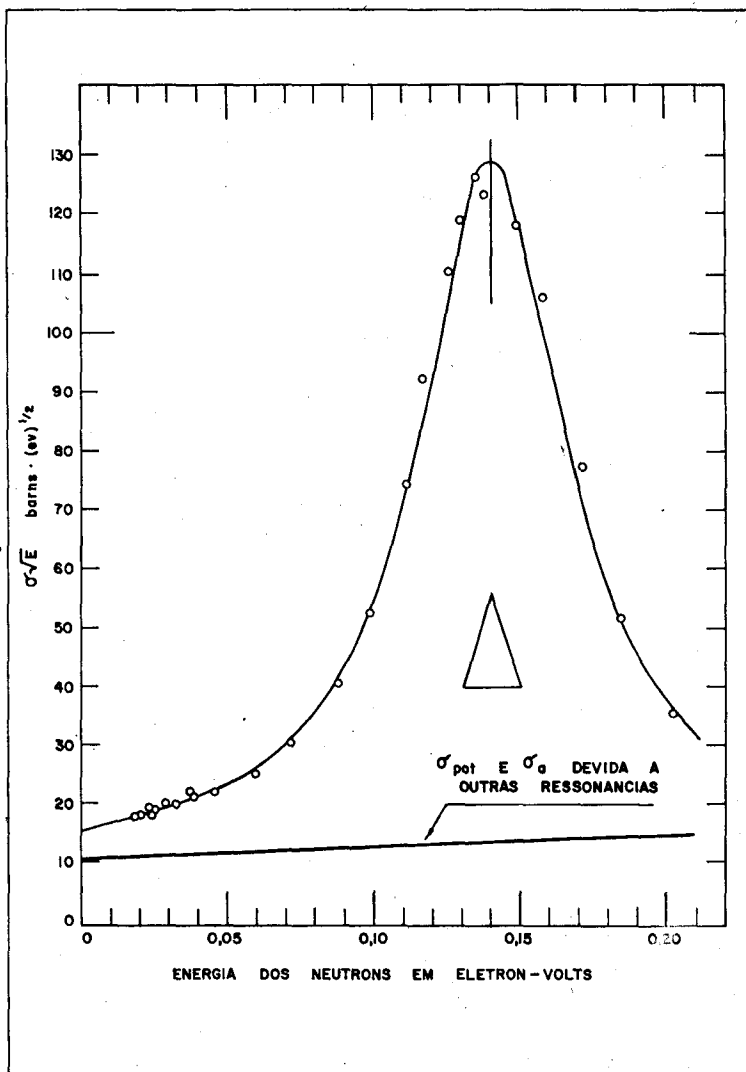


Figura 4

Resultados experimentais das medidas da secção de choque para neutrons do lutécio, representada por $\sigma\sqrt{E}$ em função de E. A curva sólida, ajustada para os pontos experimentais, já está afetada pela resolução e representa os valores da fórmula de Breit-Wigner com os parâmetros da figura 3. A linha inferior mostra a contribuição de outras ressonâncias e a contribuição do potencial de espalhamento. O triângulo representa esquematicamente a resolução na energia correspondente ao pico.

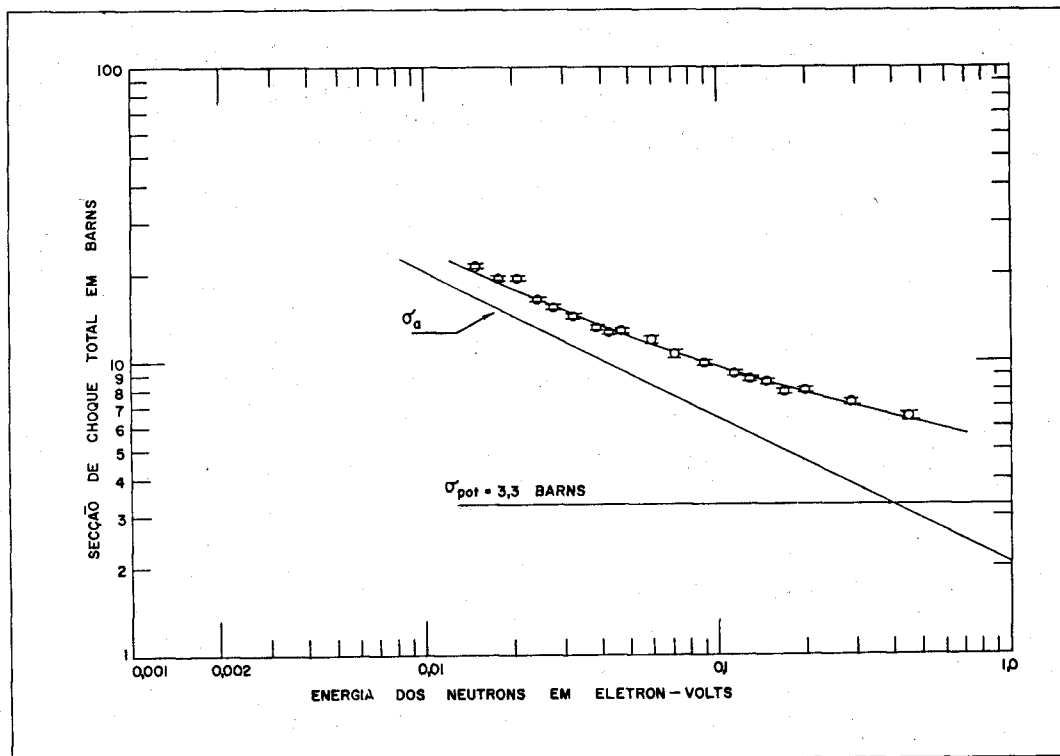


Figura 5

Secção de choque total para neutrons do praseodímio.

Os erros estatísticos são representados nos pontos experimentais. A curva sólida que passa pelos pontos experimentais é teórica e foi calculada sem considerar ressonâncias próximas. As duas linhas retas mostram as contribuições do potencial de espalhamento σ_{pot} e da absorção devida às ressonâncias afastadas.

TABELA I*

Método	Cálculo geométrico	Cálculo com fôlhas de ouro	Cálculo com contador BF ₃
Local			
Saída do primeiro colimador	$3,9 \times 10^6$	$4,2 \times 10^6$	$2,9 \times 10^6$
Cristal	$3,1 \times 10^6$	$4,1 \times 10^6$	-

* Valôres do fluxo de neutrons térmicos, em $n/cm^2/seg$ normalizados para dois milhões de watts.

TABELA II*

Energia de neu- tron em ev.	Itérbio	Lutécio	Praseodímio
0,456			6,5 ± 2,5
0,290	43 ± 2		7,3 ± 0,4
0,240	39 ± 1		
0,203	37 ± 1	79 ± 1	8,1 ± 0,2
0,185		121 ± 3	
0,172	39 ± 2	187 ± 2	7,9 ± 0,4
0,159		266 ± 2	
0,149		305 ± 1	8,5 ± 0,5
0,139		331 ± 2	
0,136		342 ± 1	
0,131		329 ± 2	
0,127	43,9 ± 0,7	310 ± 1	8,8 ± 0,2
0,118		268 ± 1	
0,112	45,4 ± 0,9	222 ± 1	9,2 ± 0,2
0,0994	44,2 ± 0,5	168 ± 1	
0,0888	45,5 ± 0,9	136 ± 1	10,0 ± 0,2
0,0724	48,7 ± 0,3	113,6 ± 0,9	10,8 ± 0,2
0,0595	54 ± 1	102,9 ± 0,7	12,1 ± 0,2
0,0470	54,2 ± 0,3	102,5 ± 0,4	12,9 ± 0,5
0,0434			12,8 ± 0,2
0,0390		108 ± 1	13,2 ± 0,1
0,0378		114 ± 2	
0,0328	59,4 ± 0,7	110 ± 2	14,6 ± 0,3
0,0290		118 ± 2	15,4 ± 0,2
0,0259		118 ± 4	
0,0244	68 ± 1	116 ± 2	16,5 ± 0,2
0,0232		128 ± 3	
0,0210		126 ± 3	19,6 ± 0,4
0,0185	69 ± 1	131 ± 2	19,5 ± 0,3
0,0150	86 ± 1		21,6 ± 0,6

* Secção de choque total para neutrons em barns, estando também indicados os erros estatísticos.

TABELA III*

	Resultados por nós obtidos			Resultados publicados anteriormente	
	$\bar{\sigma}_{total}$	$\bar{\sigma}_a$	$\bar{\sigma}_s$	$\bar{\sigma}_a$	$\bar{\sigma}_s$
praseodímio	16,3±0,3	13,0±0,5	3,3±0,5	11,6±0,6	4,0±0,4
lutécio	118 ± 1	108 ± 5	(10±5)	112 ± 5	
itérbio	69 ± 1	51 ± 2	18±2	37 ± 4	12 ± 5

* Secções de choque para neutrons térmicos. Os resultados publicados anteriormente são todos tirados de D.J. Hughes e R.B.Schwartz, Neutron Cross Section, U.S.Government Printing Office, (1958). A maioria dos valores da secção de choque de absorção, que haviam sido medidos precedentemente, foram obtidos com um oscilador de pilha, mas os valores são expressos para uma energia dos neutrons igual a 0,0253 ev., corrigida para o efeito da distribuição Maxwelliana de energias usada na experiência. A secção de choque de espalhamento do lutécio, entre parênteses, foi admitida para os cálculos.

E R R A T A

<u>pg.</u>	<u>linha</u>	<u>onde se lê</u>	<u>leia-se</u>
9	2ª	n é a massa	m é a massa
9	24ª	$E_0 = 0,597$	$E_0 = 0,597 \text{ ev.}$
14	3ª	e das secções de choque parciais σ_s e σ_a podem ser também determinados	e as secções de choque parciais σ_s e σ_a podem ser também determinadas
15	11ª	vêr tabela II	vêr tabela III
16	14ª	frasco de ambar	frasco ambar
17	13ª	$V = \frac{V \cdot 1,6492}{m - 0,08V}$	$W = \frac{V \cdot 1,6492}{m - 0,08V}$
17	13ª	fórmula grama PrO_3	fórmula grama Pr_2O_3
18	15ª	$\sigma =$ secção de choque na energia $E_2 = 4E_1$	$\sigma' =$ secção de choque na energia $E_2 = 4E_1$