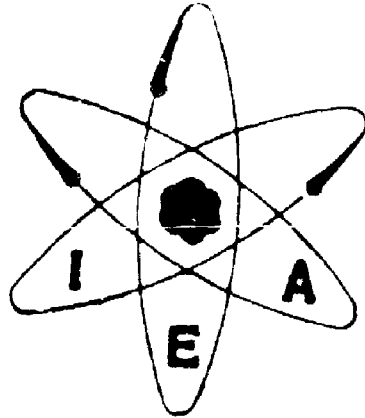


BR 75 00535



**IMPLANTAÇÃO DE UM SISTEMA DE ANÁLISE POR ATIVAÇÃO
COM NEUTRONS DE 14 MeV**

CLEVES ERAALDO CALADO e EDUARDO LAVENERE MACHADO

PUBLICAÇÃO IEA N.º 332
Abril — 1971

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal 11049 (Pinheiros)
CIDADE UNIVERSITÁRIA — ARMANDO DE SALES OLIVEIRA
SAO PAULO — BRASIL

**IMPLANTAÇÃO DE UM SISTEMA DE ANÁLISE POR ATIVAÇÃO
COM NEUTRONS DE 14 MeV**

Cleves Eraldo Calado e Eduardo Lavenère Machado

**Coordenadoria de Engenharia Nuclear
Instituto de Energia Atômica
São Paulo - Brasil**

**Publicação IEA Nº 332
Abril - 1974**

Instituto de Energia Atômica

Conselho Superior

Eng^o Roberto N. Jalet – Presidente
Prof.Dr Emilio Matter – Vice-Presidente
Prof.Dr.José Augusto Martins
Dr.Affonso Celso Pastore
Prof.Dr.Milton Campos
Eng^o Helcio Modesto da Costa

Superintendente

Rômulo Ribeiro Pieroni

IMPLANTAÇÃO DE UM SISTEMA DE ANÁLISE POR ATIVAÇÃO COM NEUTRONS DE 14 MeV

Cleves Eraldo Calado e Eduardo Lavenère Machado

RESUMO

É descrito o sistema de análise por ativação com neutrons de 14 MeV implantado no Instituto de Energia Atômica. A análise é feita por comparação direta com uma amostra padrão, contendo quantidade do elemento analisado conhecida. A amostra é ativada com neutrons produzidos por um acelerador Van de Graaff de 400 KV, através da reação ${}^3\text{H} (d,n) {}^4\text{He}$.

A atividade da amostra é medida com um detector de NaI(Tl) de 3 x 3" ou com um detector de Ge(Li) de 41 cm³ acoplado a um analisador multi-canal de 1024 canais. A transferência da amostra entre os locais de irradiação e contagens é feita pneumaticamente em tempos tão curtos quanto 0,5 seg.

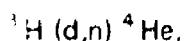
A monitoração do fluxo de neutrons é feita irradiando-se, simultaneamente com a amostra, uma segunda amostra contendo o elemento analisado, que é mantida fixa na posição de irradiação. É feita uma análise das principais fontes de erro e são apresentadas tabelas de sensibilidade deste tipo de análise, para a determinação de diversos elementos. Medidas preliminares feitas com este sistema forneceram uma sensibilidade de 25 ppm na análise do Oxigênio em aços.

1 - INTRODUÇÃO

A análise por ativação é baseada na medida da radioatividade produzida pelo bombardeamento da amostra, a ser analisada, com partículas adequadas. Esta análise é caracterizada pelo tipo de partícula empregada no bombardeio e pela natureza da reação causada. As partículas mais empregadas em análise por ativação, são os neutrons que, para este fim, são geralmente classificados em neutrons rápidos e neutrons térmicos.

Na análise por ativação com neutrons térmicos, as reações que induzem a radioatividade na amostra são principalmente do tipo (n, γ) , enquanto que, na análise por ativação com neutrons rápidos, as principais reações que produzem nucleos radioativos são do tipo (n,p) , (n, α) e $(n, 2n)$. Os isótopos formados pela ativação com neutrons rápidos tem em geral meia vida mais curta do que os formados por ativação com neutrons térmicos, o que leva a métodos de análise mais rápidos. Os elementos mais leves (número atômico menor que ~ 30) são em geral mais facilmente ativados com neutrons rápidos do que com neutrons térmicos, por exemplo: H, He, Li, Be, B, C, N, O, Si, P, S, Cr e Fe produzem muito pouca ou nenhuma atividade gama após a irradiação com neutrons térmicos, por períodos moderados de tempo, mas a maioria deles pode ser facilmente ativada com neutrons rápidos.

A possibilidade de utilização de neutrons de 14 MeV, da reação



produzidos por pequenos aceleradores de custo muito baixo e operação muito simples, comparados aos reatores nucleares, normalmente necessários à análise por ativação com neutrons térmicos, tornam o campo da análise por ativação com neutrons de 14 MeV altamente

atrativo. Uma comparação feita por Wood⁽²⁸⁾ entre a análise por ativação com neutrons de 14 MeV e com neutrons de reatores, para os 26 primeiros elementos mostra que a sensibilidade da primeira é melhor para a determinação de Ba, B, N, O, F, Si, P, Sc, Ti, Cr e Fe enquanto que a sensibilidade da segunda é melhor para a determinação de Na, Mg, Al, S, Cl, K, Ca, V e Mn. Os restantes elementos (H, He, Li, C, e Ne) não apresentam boa sensibilidade para a análise por ativação com neutrons devido à pequeníssima seção de choque para ativação.

2 - DESCRIÇÃO DO METODO

O método da análise por ativação, consiste basicamente em irradiar a amostra a ser analisada junto a uma fonte de neutrons, colocá-la em frente a um detetor e contar a radiação característica emitida durante o decaimento dos núcleos ativados.

2.1 - Equações da Ativação

A equação diferencial básica que governa o processo de ativação da amostra, é a seguinte:

$$\frac{dN^*}{dt} = N\sigma\phi(t) - \lambda N^* \quad (1)$$

onde:

- N^* = N^0 de átomos ativados na amostra
- N = N^0 de átomos alvo na amostra
- t = Tempo (seg)
- σ = Seção de choque (barn = 10^{-28} cm²)
- $\phi(t)$ = Fluxo de neutrons (neutrons / cm² / seg⁻¹)
- $\lambda = \frac{0.693}{T_{1/2}}$ Constante de decaimento do isotopo produzido (seg⁻¹)
- $T_{1/2}$ = meia vida (seg)

A solução desta equação, durante a ativação, para fluxo independente do tempo, é:

$$A = N\sigma\phi(1 - e^{-\lambda t_i}) \quad (2)$$

onde:

- $A = \lambda N^*$ = atividade da amostra (desintegração por seg.)
- t_i = Tempo de irradiação

A atividade da amostra, neste caso, cresce assintoticamente para o valor $N\sigma\phi$, que é chamado de atividade saturada. Fica claro da equação (2) que para $t_i \gg T_{1/2}$ a saturação é obtida, e a atividade da amostra não cresce mais significativamente.

2.2 - Determinação da Massa

A massa do elemento analisado na amostra, pode ser determinada pela equação (2), medindo-se a atividade absoluta da amostra e o fluxo de neutrons. Estas medidas são difíceis de ser obtidas com precisão e geralmente a determinação é feita por comparação da amostra com um padrão semelhante, (mesmas dimensões, densidade e composição semelhante), com massa

de elemento conhecida, usado nas mesmas condições. Neste caso a razão das atividades pode ser obtida diretamente da relação dos ritmos de contagem. A massa do elemento na amostra, pode ser determinada pela equação:

$$m_A = m_P \frac{A_A}{A_P} = m_P \frac{R_A}{R_P} \quad (3)$$

com

$$m_A = \frac{M N}{N_o}$$

onde:

- m_A = Massa do elemento na amostra (g)
- M = Massa atômica do elemento
- N = N^o de átomos do elemento na amostra
- N_o = N^o de Avogadro
- A_A = Atividade absoluta da amostra
- R_A = Ritmo de contagem da amostra.

As grandezas com índice P se referem ao padrão.

2.3 - Normalização do fluxo

Na realidade, é muito difícil, usando aceleradores, conseguir-se um fluxo de neutrons constante, tanto durante uma irradiação, como em irradiações diferentes. Para contornar este problema, tem sido usados basicamente dois métodos distintos:

- Ativação simultânea de duas amostras
- Medida do fluxo de neutrons.

2.3.1 - Ativação simultânea de duas amostras

A maioria dos trabalhos publicados neste campo, utiliza este tipo de normalização do fluxo.

Hoste⁽¹⁾ e Gijbels⁽²⁾, por exemplo, irradiaram e contaram simultaneamente com a amostra, um padrão de massa do elemento analisado conhecida, e de forma e densidade idênticas às da amostra. A relação dos ritmos de contagem obtidos no padrão e na amostra, é proporcional à relação de massas do elemento a ser determinado.

$$\frac{m_A}{m_P} = K \frac{R_A}{R_P}$$

A constante de proporcionalidade K depende das posições relativas do padrão e da amostra na irradiação, e dos sistemas de contagem, mas independente de variações de fluxo durante a irradiação, porque os ritmos de contagem medidos são devido ao mesmo elemento (meia vida idêntica), e o fluxo varia igualmente na amostra e no padrão, durante a irradiação. Neste caso, a segunda amostra tem duas finalidades: a de servir como padrão, e para normalização do fluxo de neutrons.

Gilmore e Hull⁽³⁾ utilizaram um método semelhante, com a diferença de que a amostra que serve para normalização do fluxo, permanece fixa perto da fonte de neutrons, onde sua

atividade é medida simultaneamente com a da amostra analisada. Neste caso, devido às diferenças geométricas e de densidade, a segunda amostra não serve como padrão, tendo este que ser irradiado e contado, antes ou após a amostra analisada.

2.3.2 - Medida do fluxo

Fujii⁽⁴⁾ e Anders⁽⁵⁾, utilizaram o circuito eletrônico mostrado na figura 1. A equação diferencial deste circuito é:

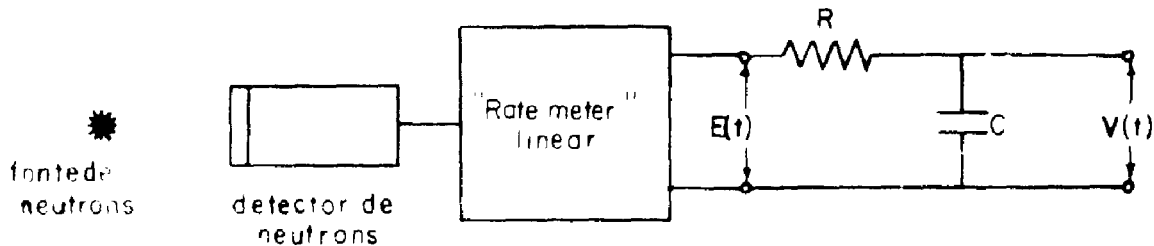


Fig. 1 - Circuito Eletrônico para Monitoração do Fluxo de Neutrons.

$$\frac{dV}{dt} = \frac{1}{RC} E(t) - \frac{V}{RC},$$

que é análoga à equação (1), sendo;

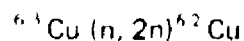
$E(t)$ - análoga ao fluxo $\phi(t)$

$V(t)$ - análoga a N^*

se a constante de tempo do circuito for posta igual à constante de decaimento, $\frac{1}{RC} = \lambda$, a saída $V(t)$ é em qualquer instante proporcional à fração dos átomos do elemento ativados na amostra. Fujii, mede continuamente o valor de $V(t)$, interrompendo a irradiação quando este atinge um valor pré-determinado V_m . Assim, os ritmos de contagem, fornecidos pela amostra e pelo padrão, são independentes das variações de fluxo, e a determinação da massa do elemento analisado pode ser feita diretamente pela equação (3).

Horta⁽⁶⁾ estudou um método que mede o fluxo de neutrons rápidos, durante a irradiação, com um detector ligado a um multi-canal, usado como multi-scaler, e fez as correções para as variações de fluxo, considerando este constante durante pequenos intervalos de tempo correspondente à largura do canal. Este método tem a desvantagem de exigir muitos cálculos para a obtenção do resultado.

Auboin⁽⁷⁾ irradiou juntamente com a amostra, um monitor de cobre, e mediu a atividade dos gamas de aniquilação dos pósitrons emitidos pelo ^{62}Cu , formado pela reação;



O ritmo de contagens obtido é proporcional ao fluxo de neutrons rápidos integrado durante o intervalo de irradiação, desde que os intervalos de irradiação utilizados, são muito

menores que a meia vida do ^{64}Cu que é de 9,8 minutos. Esse método apresenta erros, quando a saída de neutrons varia durante a irradiação.

Em todos os casos, direta ou indiretamente, o cálculo da massa de elemento analisado, é feito pela equação (3), onde os ritmos de contagem que aparecem, são normalizados para as variações do fluxo.

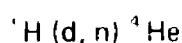
3 - SISTEMA IMPLANTADO NO I.E.A.

3.1 - Descrição do Sistema.

O sistema implantado consta de uma fonte de neutrons, um sistema pneumático de transferência de amostras, um sistema de contagens da amostra, um monitor e sistema de contagens do monitor, e um sistema de controle automático do ciclo de análise. A disposição dos elementos na sala de irradiação e contagem é mostrada na Figura 2. Os controles do acelerador e do ciclo de análise ficam situados em outra sala distante cerca de 20 metros da sala de irradiação e contagem.

3.1.1 - Fonte de Neutrons

Como fonte de neutrons rápidos, é usado um acelerador Van de Graaff modelo PN-400 da High Voltage Engineering Corporation. A produção de neutrons é feita através da reação:



Os neutrons são emitidos de maneira praticamente isotrópica com energia de aproximadamente 14 MeV. O acelerador bombardeia um alvo de Trítio com deuterons de até 400 keV. A corrente máxima de deuterons é da ordem de 0,15 mA e nas condições máximas o acelerador é capaz de fornecer uma saída de neutrons da ordem de 10^{10} neutrons por segundo.

A figura 3 é um desenho esquemático mostrando o acelerador, o terminal do sistema de transferência de amostras e o interruptor do feixe de deuterons. O interruptor é atuado pneumaticamente e foi projetado para definir com precisão o intervalo de irradiação. O suporte do alvo de Trítio original do acelerador foi substituído por outro projetado para se obter um melhor aproveitamento do fluxo de neutrons.

3.1.2 - Sistema de Transferência de Amostras

A transferência de amostras entre os locais de irradiação e contagem é feita pneumaticamente através de um tubo denominado tubo de transferência. O tubo de transferência, de que se dispunha inicialmente, era de secção transversal circular e aceitava coelhos cilíndricos de 1 polegada de diâmetro. Este tubo era bastante versátil quanto as dimensões da amostra, mas permitia uma incerteza no posicionamento da amostra, ou seja a face da amostra situada mais próxima do alvo durante a irradiação, e portanto a de maior atividade, podia não manter a mesma posição em relação ao detetor em diferentes irradiações. Isto podia levar a erros de até 30% para uma simples determinação. Este tubo foi recentemente substituído por um outro de alumínio com secção transversal retangular de dimensões internas 0,97 x 2,25 cm, semelhante ao usado por Hoste⁽¹⁾. O novo tubo aceita amostras cilíndricas de

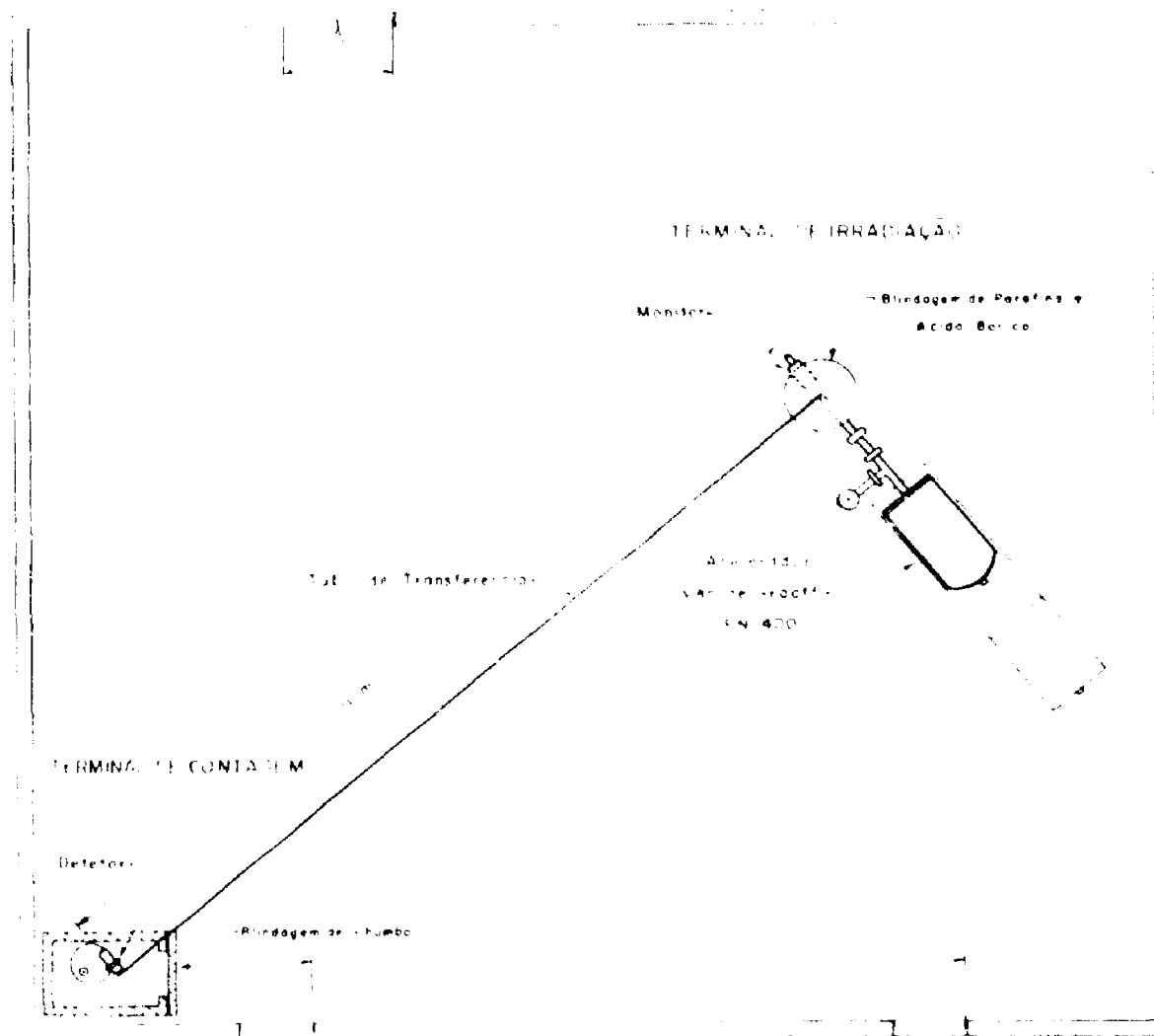


Fig. 2 - Disposição dos elementos do sistema de análise por ativação com neutrons de 14 MeV, na sala de irradiação e contagem.

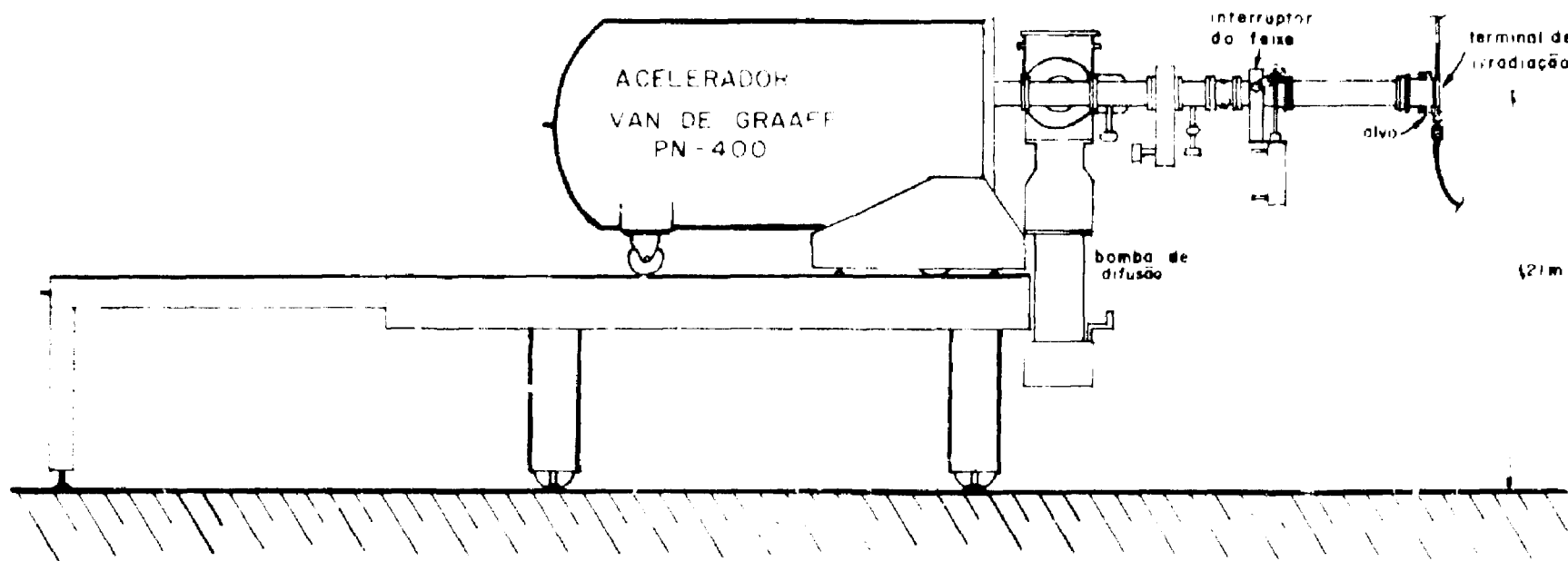


Fig. 3 - Componentes do sistema de irradiação.

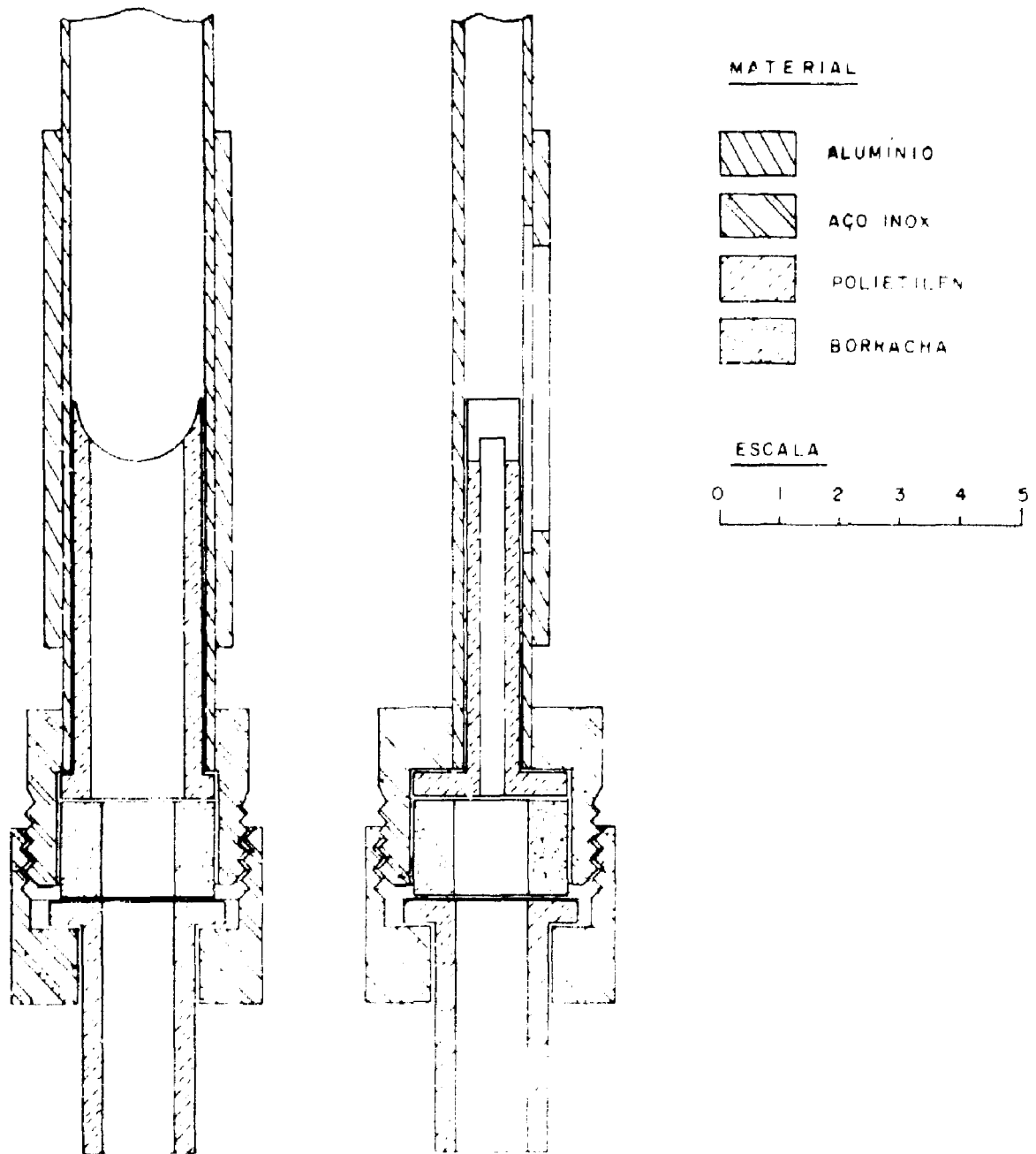


Fig. 4 - Terminal do tubo pneumático de transferencia de amostras.

0,94 x 2,22 cm de diâmetro, elimina as incertezas no posicionamento da amostra, permite uma maior aproximação da amostra com o detector e com o alvo de Trítio, e possibilita a utilização de amostras metálicas sem coelho. Isto leva a um melhor aproveitamento do fluxo de neutrons e melhor geometria de contagem, possibilitando uma diminuição no desvio padrão e um grande aumento na sensibilidade. A figura 4 mostra detalhes do terminal deste tubo de transferência. O tempo de trânsito da amostra entre os terminais de irradiação e contagem pode ser feito tão curto quanto 0,4 seg., possibilitando a utilização do sistema para a análise de elementos cujos produtos da ativação tenham meias vidas curtas.

3.1.3 - Sistema de Contagens

A detecção da radiação gama emitida pela amostra ativada pode ser feita usando-se um detector de NaI(Tl) de 3 x 3", ou um detector de Ge(Li) de 41 cm³, localizados dentro de uma blindagem de chumbo de 10 cm. de parede revestida internamente com Cádmio e Cobre. O detector de NaI(Tl) tem maior eficiência intrínseca e é normalmente usado quando não existem problemas de interferências. O detector de Ge(Li), por ter ótima resolução (2,2 KeV), é usado nos casos em que existam problemas de interferências, sendo necessária a separação de contagens devido a fotopicos de energias muito próximas. Este detector é usado também nas fases iniciais para estudo mais detalhado dos espectros de altura de pulso e para verificação de possíveis interferências.

O sistema de contagens dispõe de um analisador multicanal TMC de 1024 canais que é usado como analisador de altura de pulso ou como multi-scaler, e demais componentes eletrônicos necessários a sistemas de contagens. Um sistema de aquisição de dados modelo HP 2116C, para o qual foram desenvolvidos programas de análise de espectros (ver: apêndice), pode ser usado na análise dos resultados.

3.1.4 - Monitor do Fluxo

Foi desenvolvido um monitor especialmente voltado para a análise do Oxigênio, semelhante ao proposto por Gilmore⁽³⁾. Este monitor baseia-se na medição da atividade do ¹⁶N produzida por ativação do Oxigênio, contido no monitor, irradiado simultaneamente com a amostra a ser analisada. A figura 5 mostra o monitor utilizado. A água que envolve o cintilador, serve como amostra contendo Oxigênio. O cintilador plástico Ne 102 acoplado óticamente à fotomultiplicadora, detecta a radiação beta de 10,3 MeV emitida no decaimento do ¹⁶N. O disco de Lucite de 1" de espessura, colocado entre a fotomultiplicadora e o cintilador, funciona como blindagem à radiação beta emitida no decaimento de outros elementos existentes na fotomultiplicadora, ativados durante a irradiação. A alta tensão da fotomultiplicadora é reduzida durante a irradiação para evitar variações de ganho devido ao alto nível de contagens durante este intervalo.

Para a análise de outros elementos, a normalização do fluxo de neutrons pode ser feita medindo-se a forma do fluxo diretamente com um detector de neutrons rápidos, como proposto por Horta⁽⁶⁾.

3.1.5 - Sistema de Contrôlo Automático do Ciclo de Análise.

A unidade "Rapid Transfer Electronic Control Programmer", modelo 9615 da Texas Nuclear, foi interligada aos demais componentes do sistema de análise. Esta unidade estabelece

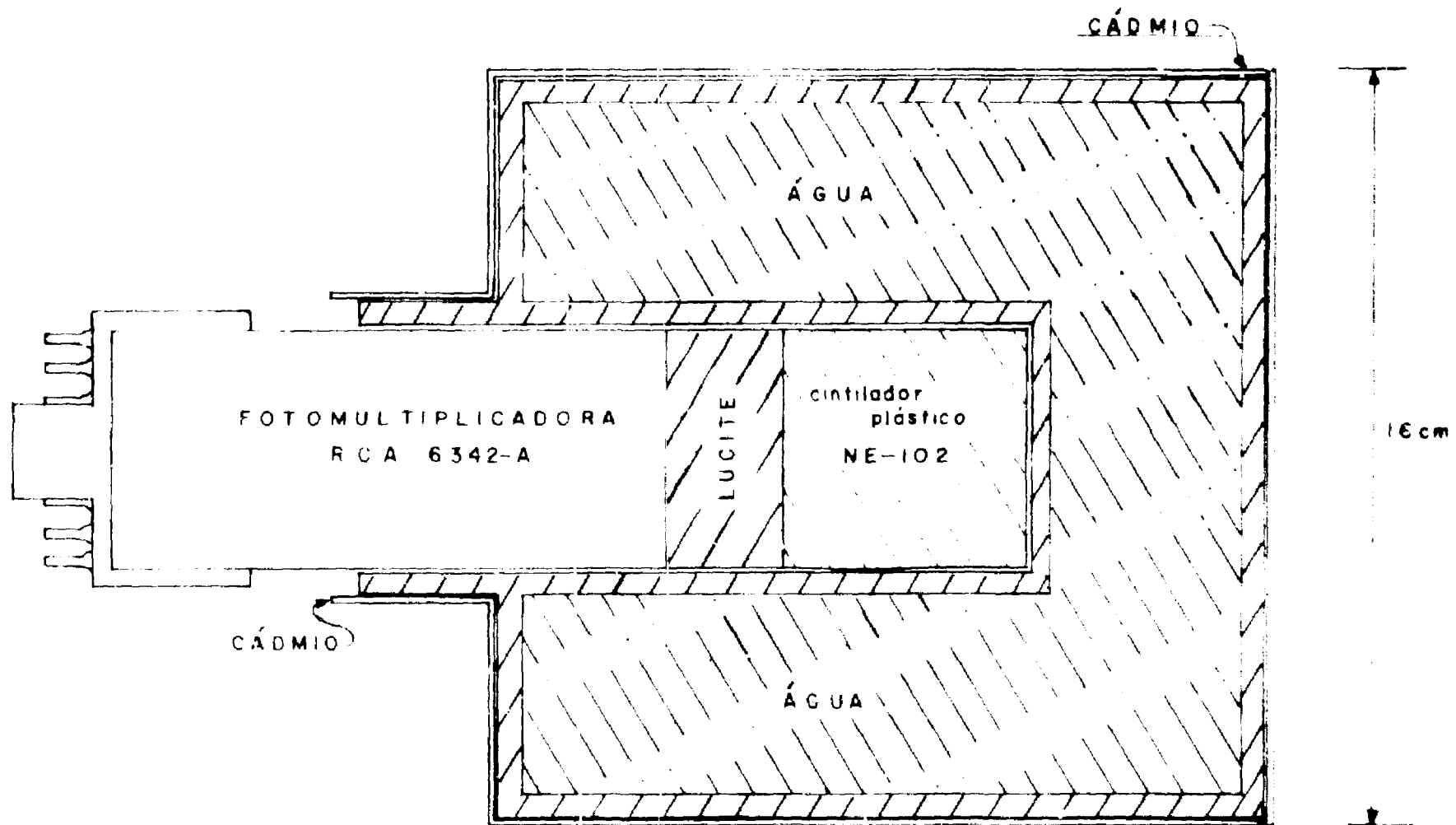


Fig. 5 - Monitor do fluxo de neutrons utilizado na análise por ativação do Oxigênio.

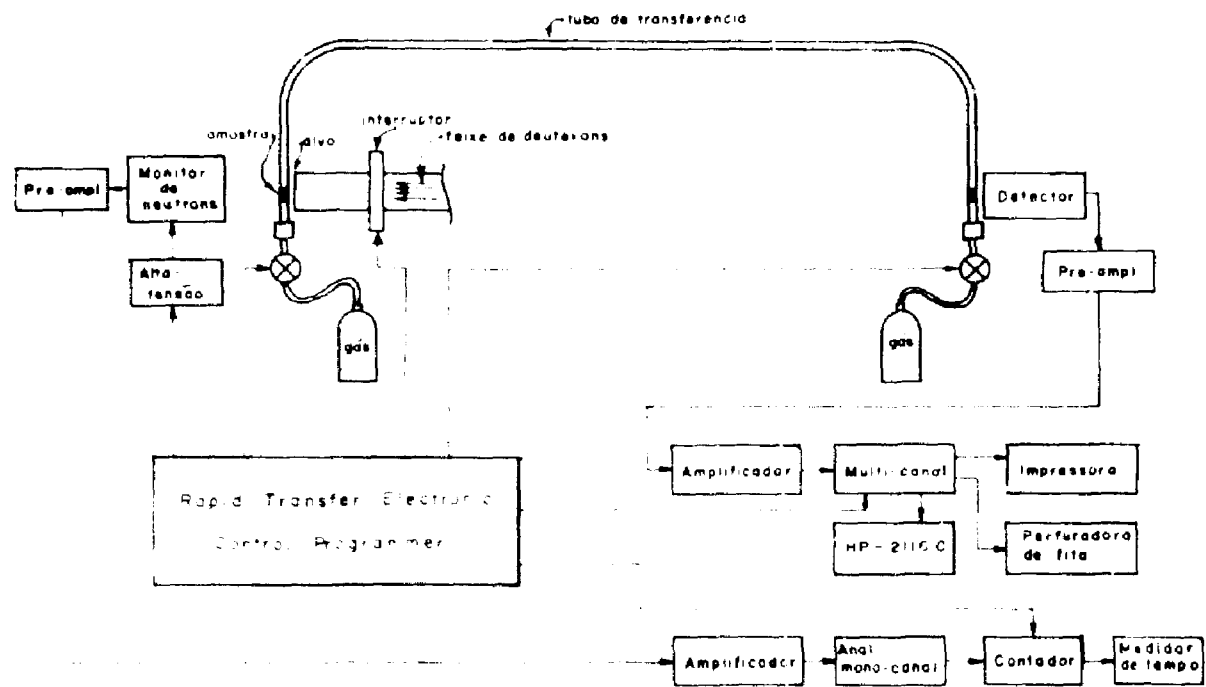


Fig. 6 - Diagrama de bloco do sistema de análise por ativação com neutrons de 14 MeV.

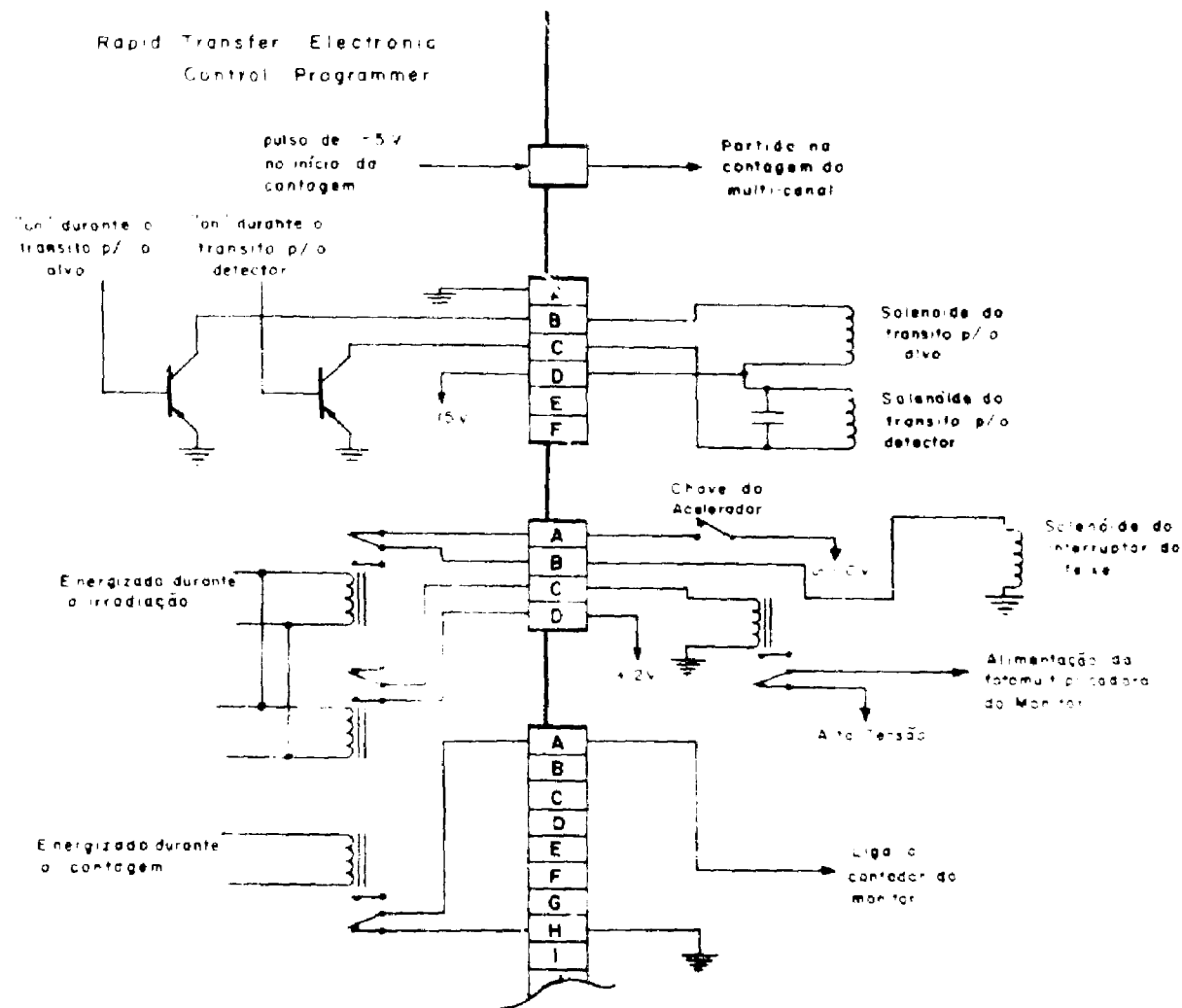


Fig. 7 - Circuito de interligação da unidade de controle automático do ciclo de análise com os demais componentes do sistema de análise por ativação com neutrons de 14 MeV.

a sequência de atuação dos diversos componentes do sistema, e permite selecionar os tempos das diversas fases do ciclo de análise. As figuras 6 e 7 mostram respectivamente o diagrama de bloco do sistema de análise por ativação e o circuito de interligação desta unidade com os diversos componentes do sistema.

3.2 - Operação de Sistema.

Numa análise típica, a amostra é inicialmente colocada no terminal de contagens e obedece automaticamente às seguintes fases:

a - Transferência para o Alvo.

Nesta fase a amostra é transferida do terminal de contagens para o terminal de irradiação, ficando posicionada paralelamente ao alvo, a uma distância de 6 mm deste. O tempo de transferência pode ser ajustado desde 0,4 seg até 9,9 seg, selecionando-se estes tempos na unidade controladora do ciclo de análise e ajustando-se convenientemente a pressão do Nitrogênio, que é o gás de transporte normalmente usado.

b - Irradiação.

Nesta fase o interruptor do feixe é aberto, permitindo ao feixe de deuterons atingir o alvo de Trítio, para produzir os neutrons que irão irradiar a amostra. O tempo de irradiação pode ser ajustado desde 1 até 9999 segundos. No final do tempo selecionado, o interruptor é novamente fechado, permanecendo assim durante todas as demais fases do ciclo. Durante esta fase a alta tensão de alimentação da fotomultiplicadora do monitor é reduzida pelas razões já expostas.

c - Transferência para o Detetor.

Nesta fase a amostra é trazida de volta para o terminal de contagens, ficando posicionada bem em frente ao detetor. O início desta fase foi atrasado de 0,1 segundos em relação ao fim da irradiação, para evitar que a amostra iniciasse o trânsito antes que o interruptor estivesse completamente fechado, o que iria provocar uma irradiação mais longa no monitor do que na amostra. O tempo de transferência pode ser selecionado entre 0,4 a 9,9 segundos.

d - Espera para o início da contagem.

Esta fase introduz um intervalo de tempo selecionável de 0,7 a 99,9 segundos, entre o fim da irradiação e o início do intervalo de contagens. Esta espera permite uma estabilização da fotomultiplicadora do monitor, que ficou com a alta tensão reduzida durante a irradiação, e possibilita a diminuição da atividade dos elementos de meia-vida mais curta do que o de interesse.

e - Contagem

Nesta fase a unidade controladora do ciclo de análise, liga o sistema de contagem do monitor durante um intervalo de tempo selecionável de 1 a 9999 segundos, e comanda o início da contagem do analisador multi-canal. A seleção do tempo de contagem do multi-canal é feita no próprio aparelho.

Depois de retirados os dados referentes à amostra, esta é substituída pelo padrão, no terminal de contagens, e é iniciado outro ciclo com o padrão, idêntico ao seguido pela amostra.

4 - APLICAÇÕES.

Com a finalidade de determinar as possibilidades de aplicação da análise por ativação com neutrons de 14 MeV, foram feitas pesquisas bibliográficas de trabalhos publicados na literatura. Perdijon⁽⁸⁾, utilizando um acelerador SAMES de 150 KV, com um fluxo de neutrons na amostra de 10^9 n. cm⁻². seg⁻¹, e um detector de NaI(Tl) de 3 x 3" conectado a um analisador multi-canal de 400 canais, fez um estudo da sensibilidade deste sistema para a determinação de diversos elementos. Os elementos analisados foram divididos em 2 grupos: os de meia vida curta, nos quais o tempo de irradiação foi de 30 seg, 3 seg de espera e 30 seg de contagem, e os de meia vida mais longa, nos quais os tempos usados foram de 5 min. de irradiação, 10 min. de espera e 5 min. de contagem. Os resultados deste estudo são mostrados na Tabela 1.

Fujii⁽⁹⁾ utilizando um sistema semelhante ao anterior, mas com um detector de Ge(Li) de 22 cm³ e um analisador de 800 canais, estudou a sensibilidade deste sistema para a determinação de mais de 60 elementos. A sensibilidade deste tipo de análise na determinação do Oxigênio já foi bastante estudada em inúmeros trabalhos e por isso, os autores não se preocuparam com este elemento. Os resultados obtidos são mostrados na Tabela 2

4.1 - O Oxigênio.

A análise por ativação com neutrons de 14 MeV é particularmente aplicável na análise do Oxigênio em matrizes diversas, como mostra o grande número de artigos publicados sobre este assunto nos últimos anos^(1, 2, 3, 4, 5, 6). A reação importante do Oxigênio com neutrons de 14 MeV é a reação (n,p), de secção de choque 40 mb, com o ¹⁶O de abundância isotópica 99,7%, formando o ¹⁶N. Este isótopo tem meia vida de 7,36 seg e decai obedecendo ao esquema da Figura 8. A atividade de ¹⁶N atinge 94% da saturada depois de 30 seg de irradiação e, 30 seg após o término da irradiação, 94% do ¹⁶N terá retornado a ¹⁶O, permitindo limitar o tempo de irradiação e contagem em cerca de 1 minuto.

4.1.1 - Interferências

O curto tempo de irradiação e a alta energia dos gama emitidos pelo ¹⁶N, eliminam a maioria das possíveis interferências. Utilizando-se um nível de discriminação de 4,5 MeV, somente isótopos com meia vida maior que 0,5 segundos, e que emitam radiação gama ou beta de energia maior que 4,5 MeV, poderão interferir diretamente. Elementos que produzam isótopos com estas características, são poucos, sendo de interesse apenas o Flúor e o Boro. Além disso, elementos que produzam isótopos com atividade gama ou beta excessivamente alta, mesmo de energia abaixo de 4,5 MeV, poderão interferir indiretamente, por efeito de saturação e de coincidência, no detector e no circuito eletrônico.

O Fluor, quando irradiado com neutrons de 14 MeV, produz ¹⁶N pela reação ¹⁹F (n, α)¹⁶N. Esta interferência é impossível de ser eliminada e, para a determinação da quantidade de Oxigênio, é necessário o conhecimento da quantidade de Fluor na amostra. Esta determinação pode ser feita por Análise por Ativação com neutrons de 14 MeV, através da reação ¹⁹F (n,p)¹⁹O. Hoste⁽¹¹⁾ mostrou que, 2,44 mg de Fluor produzem a mesma atividade de

TABELA 1

LIMITES DE DETECÇÃO PARA ANÁLISE POR ATIVAÇÃO COM NEUTRONS DE 14 MeV
USANDO DETETOR DE NaI(Tl) de 3" x 3" E FLUXO DE 10^9 n/cm² seg. REPRODUZIDA DA REFERÊNCIA (8).

Limit of detection (μg)	Element	Radioisotope	Half life	Energy of main peak (MeV)	Interference	Other peak or R.I. usable
14-MeV neutrons: 10^9 n/cm ² sec						
From 1 to 10	Ag	¹⁰⁸ Ag	24.0 min	0.51	Sb, In, Cl, Sn...	¹⁰⁸ Ag
	Al	²⁷ Mg	9.45 min	0.84		
	Ba	^{135m} Ba	2.60 min	0.66	Ag	
	Br	⁷⁶ Br	6.4 min	0.51	Cu, N, K...	0.61
	Co	^{57m} Co	48.6 min	0.25		
	Cu	⁶⁴ Cu	9.80 min	0.51	Br, Sb, N, In, K...	
	Ga	⁶⁶ Ga	68 min	0.51	Cd, Se, Cr...	⁶⁶ Ga
	Hg	^{199m} Hg	44 min	0.158	Cd, Cl, Sn	0.37
	Sb	¹²⁰ Sb	16.4 min	0.51	Ag, In, Mo...	^{120m} Sb
	Si	²⁸ Al	2.30 min	1.78	P	
	Sr	^{87m} Sr	2.80 hr	0.39		
	Zn	⁶⁵ Zn	38.3 min	0.51	Cl, Sn, Se...	
	Zr	⁹¹ Y	16.5 min	0.92	Sr	^{91m} Zr
14-MeV neutrons: 10^9 n/cm ² sec						
From 10 to 100	Cl	³⁶ Cl	32.4 min	0.51	Zn, Sn...	³⁶ S
	Cr	⁵¹ V	3.76 min	1.44	Mn	
	F	¹⁸ O	29.4 sec	0.20	Pd, Ag	¹⁸ N
	Fe	⁵⁴ Mn	2.58 hr	0.85	Co	
	Ge	^{76m} Ge	48 sec	0.139	As, Pd	⁷⁶ Ge
	K	⁴⁰ K	7.75 min	0.51	Br, Cu, N...	2.16
	Mg	²³ Na	15.0 hr	1.37-2.75	Al	²³ Ne
	Mo	⁹¹ Mo	15.5 min	0.51	Sb, In, Ag...	
	N	¹⁴ N	10 min	0.51	Cu, Br, K...	
	Na	²² Ne	37.6 sec	0.44-1.65	Mg	
	O	¹⁶ N	7.4 sec	6.13	F, B	
	P	²⁷ Al	2.30 min	1.78	Si	
	Pd	^{105m} Pd	4.8 min	0.188		
	Se	^{81m} Se	56.8 min	0.103		
	Sn	¹¹³ Sn	40.0 min	0.153	Hg, Cd, Cl	
	Te	¹²⁷ Te	74 min	0.40		
	W	^{187m} W	1.7 min	0.130	Fe, Pd	^{187m} W
From 100 to 1000	As	^{76m} Ge	48 sec	0.139	Ce, Pd	⁷⁶ As
	Au	^{197m} Au	7.4 sec	0.28		
	Nb	⁹¹ Y	3.60 hr	0.91-0.94		
	Ni	⁵⁸ Co	13.9 min	1.17	Cd	^{58m} Co
	Pt	^{191m} Pt	80 min	0.34	Au	
	Ta	^{180m} Ta	8.15 hr	0.993-0.102		
Ti	⁴⁸ Sc	19.5 sec	0.142	Se	⁴⁸ Ti	
From 1000 to 10000	B	¹⁰ Be	13.7 sec	5.60-6.76	O, F	2.12
	Ca	⁴⁵ K	22.0 min	1.13	Cl	
	Pb	²⁰⁹ Pb	0.84 sec	0.57		
	S	³² P	12.4 sec	2.13	Cl, B	

* $t_{1/2}$ and $t_{1/2\beta}$ = 4 half-lives or maximum 20 min, $t_{1/2\alpha}$ = 3 sec.

TABELA 2

SENSIBILIDADE PARA ANÁLISE POR ATIVAÇÃO COM NEUTRONS
DE 14 MeV, USANDO DETETOR DE Ge(Li) DE 22 cm³ E
ACELERADOR COM SAÍDA DE NEUTRONS DE 5 x 10¹⁰ NEUTRONS/seg.
REPRODUZIDA DA REFERÊNCIA (9).

Element	Nuclear reaction	Radio-nuclide produced	Half-life	Energy of emitted γ -ray, keV	Amount of target material, g	Chemical form of target material	Sensitivity, μ g per 10 counts
Nitrogen	(n,2n)	¹⁴ N	10.05 minutes	511	0.9845	(NH ₄) ₂ CO	11.0
Fluorine	(n,p)	¹⁸ O	29.4 seconds	200	1.0497	LiF	13.4
				1336			276
	(n,2n)	¹⁹ F	112 minutes	511			14.9
Sodium	(n,p)	²³ Ne	40.2 seconds	436	1.4399	Na ₂ CO ₃	57.93
	(n, α)	²⁰ F	10.7 seconds	1640			178.3
Magnesium	(n, α)	²³ Ne	40.2 seconds	440	0.4610	MgO	369
	(n,2n)	²⁴ Mg	11.9 seconds	511			760
	(n,p)	²³ Na	14.97 hours	1370			328
Aluminium	(n,p)	²⁷ Mg	9.45 minutes	842	3.2069	Al	11.2
				1010			37.3
	(n, α)	²⁴ Na	14.97 hours	1370			487
	(n, γ)	²⁷ Al	2.27 minutes	1780			1056
Silicon	(n,p)	²⁸ Al	2.27 minutes	1780	2.6344	Si	13.22
Phosphorus	(n,2n)	³⁰ P	2.5 minutes	511	1.6748	Ca(H ₂ PO ₄) ₂	15.98
	(n, α)	²⁷ Al	2.27 minutes	1780		H ₂ O	11.20
Chlorine	(n,2n)	³⁴ Cl	32.4 minutes	1160	0.9240	NH ₄ Cl	3769
				2100			472
Potassium	(n,2n)	³⁹ K	7.7 minutes	511	1.2577	K ₂ CO ₃	51.75
				2160			506.1
	(n,p)	⁴¹ A	110 minutes	1290			1990
Scandium	(n,2n)	⁴⁴ Sc	2.44 days	271	0.8702	Sc ₂ O ₃	210
	(n,2n)	⁴⁶ Sc	3.92 hours	511			20.2
Vanadium	(n, α)	⁵¹ Ti	5.79 minutes	323	0.6045	V ₂ O ₅	14.49
Chromium	(n,2n)	⁵⁰ Cr	41.9 minutes	511	5.4902	Cr	668
	(n,p)	⁵¹ V	3.77 minutes	1433			43.5
Manganese	(n, α)	⁵¹ V	3.77 minutes	1433	1.5606	MnCO ₃	49.0
Iron	(n,p)	⁵⁵ Mn	2.576 hours	845	8.6296	Fe	135
				1810			1280
				2130			2525
	(n,2n)	⁵⁴ Fe	8.9 minutes	511			604
	(n,2n)	⁵⁶ Co	71.3 days	511	2.6793	Co ₃ O ₄	2107
	(n, α)	⁵⁵ Mn	2.576 hours	845			372
				1810			5478
				2130			8327
Nickel	(n,2n)	⁵⁸ Ni	36 hours	511	9.8921	Ni	4556
	(n,p)	⁵⁸ Co	13.9 minutes	1170			1653
Copper	(n,2n)	⁶³ Cu	9.73 minutes	511	9.6814	Cu	2.208
				1170			1095
Zinc	(n,2n)	⁶³ Zn	38.3 minutes	511	4.2880	Zn	18.4
				870			557
				960			1145
	(n,p)	⁶⁵ Cu	5.1 minutes	1040			1080
Gallium	(n,2n)	⁶⁷ Ga	68 minutes	511	7.5465	Ga	5.49
				1078			537
	(n,2n)	⁶⁹ Ga	21.1 minutes	1040			561
Arsenic	(n,p)	⁷⁰ Ge	48 seconds	139	2.6551	As	78.72
	(n,p)	⁷⁰ Ge	82 minutes	264			1052
	(n, α)	⁷³ Ge	14.3 hours	834			7085

TABELA 2 - continuação

Element	Nuclear reaction	Radio-nuclide produced	Half-life	Energy of emitted γ -ray, keV	Amount of target material, g	Chemical form of target material	Sensitivity, μ S per 10 ⁵ counts
Selenium	(n, 2n)	⁷⁷ Se	17.5 seconds	162	3-1113	Se	14-10
Bromine	(n, 2n)	⁸⁰ Br	7.6 minutes	620	2-0701	KBr	19-5
Rubidium	(n, 2n)	⁸⁴ Rb	23 minutes	239	1-8414	Rb ₂ CO ₃	3-09
				463			10-36
	(n, 2n)	⁸⁶ Rb	1-02 minutes	580			14-91
Strontium	(n, 2n)	⁸⁷ Sr	2-80 hours	388	1-9786	Sr(NO ₃) ₂	~2-16
Yttrium	(n, α)	⁸⁸ Rb	1-02 minutes	580	2-3375	Y ₂ O ₃	979
	(n, n')	⁸⁹ Y	16 seconds	913			41-7
Zirconium	(n, 2n)	⁹¹ Zr	4.4 minutes	589	2-3808	ZrO ₂	15-4
				1539			636
Niobium	(n, α)	⁹² Y	3-6 hours	210	7-6653	Nb	877
				480			3021
Molybdenum	(n, 2n)	⁹¹ Mo	86 seconds	511	2-5900	Mo	18-39
				658			1032
Ruthenium	(n, p)	¹⁰¹ Tc	14.0 minutes	307	0-9526	Ru	150-4
	(n, p)	¹⁰² Tc	4.5 minutes	470			309-3
	(n, 2n)	⁹⁶ Ru	1-85 hours	340			28-2
Silver	(n, 2n)	¹⁰⁸ Ag	24 minutes	511	8-3174	Ag	6-60
	(n, 2n)	¹⁰⁶ Ag	2.3 minutes	620			1060
Cadmium	(n, 2n)	¹¹¹ Cd	48.6 minutes	150	5-0000	Cd	13-84
				246			15-69
Indium	(n, 2n)	¹¹³ In	20.7 minutes	155	1-4683	In ₂ O ₃	138
	(n, α)	¹¹² Ag	3.2 hours	618			1263
	(n, 2n)	¹¹⁴ In	72 seconds	511			163
	(n, 2n)	¹¹⁵ In	4.50 hours	335			369
	(n, 2n)	¹¹⁶ In	53.99 minutes	406			784
				1085			1134
				1274			326
Tin	(n, 2n)	¹²⁵ Sn	39.5 minutes	153	4-1981	Sn	2-10
	(n, 2n)	¹¹³ Sn	35 minutes	511			340-5
Antimony	(n, 2n)	¹²⁰ Sb	16.4 minutes	511	3-6723	Sb	4-22
				1180			41-2
	(n, 2n)	¹²² Sb	3.5 minutes	70			21-0
Iodine	(n, 2n)	¹³¹ I	13.3 days	390	1-5002	KI	20-50
				668			50-1
Caesium	(n, 2n)	¹³² Cs	6.2 days	670	2-5685	CsNO ₃	50-1
Barium	(n, 2n)	¹³⁷ Ba	2.6 minutes	662	1-3011	Ba(OH) ₂	2-20
						8H ₂ O	
Cerium	(n, 2n)	¹³⁹ Ce	55 seconds	740	2-9434	CeO ₂	8-10
Praseodymium	(n, 2n)	¹⁴⁰ Pr	3.4 minutes	511	1-1452	Pr ₂ O ₃	1-10
	(n, γ)	¹⁴¹ Pr	19.2 hours	1570			722
Neodymium	(n, 2n)	¹⁴³ Nb	64 seconds	760	1-0176	Nd ₂ O ₃	31-1
Europium	(n, α)	¹⁴⁷ Pm	2.7 hours	340	1-7354	Eu ₂ O ₃	3329
	(n, 2n)	¹⁵⁰ Eu	9.3 hours	511			3492
				960			4383
Gadolinium	(n, 2n)	¹⁵³ Gd	18.0 hours	364	1-8672	Gd ₂ O ₃	71-1
Hafnium	(n, 2n)	¹⁷⁶ Hf	19 seconds	215	2-4772	HfO ₂	36-06
Gold	(n, 2n)	¹⁹⁸ Au	8.55 days	354	21-265	A	1432

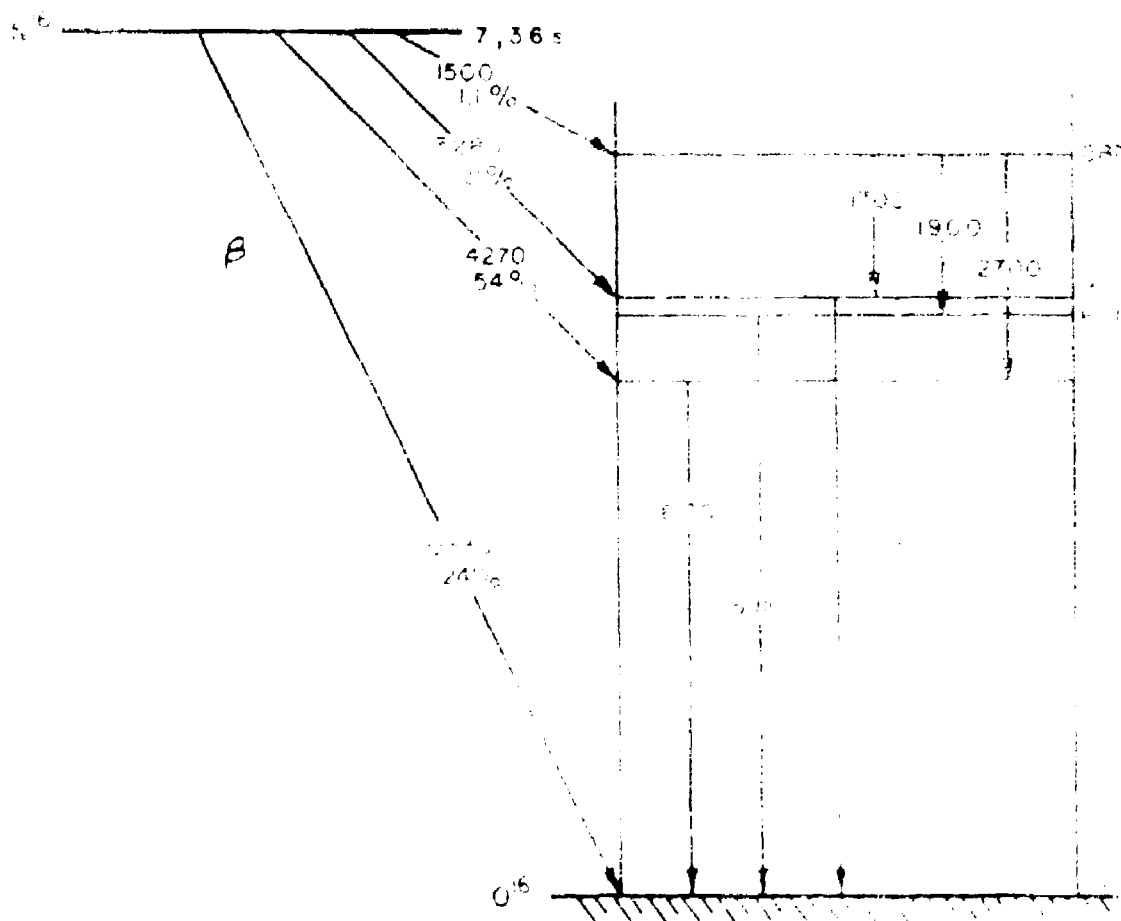
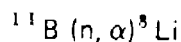


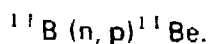
Fig. 8 - Esquema de decaimento do ^{16}N

^{16}N que 1 mg de Oxigênio.

O Boro, interfere na determinação do Oxigênio, através das reações:



e



O ^8Li , é emissor beta de energia máxima, 13 MeV e tem meia vida de 0,84 segundos. O ^{11}Be é emissor beta de energia máxima, 11,5 MeV e gama de energias, 9,3 MeV e 4,5 MeV, com meia vida de 13,6 segundos. Estas interferências, podem ser sensivelmente diminuídas, escolhendo-se convenientemente os tempos de irradiação, espera e contagem, e colocando-se uma lâmina de Chumbo entre a amostra e o detetor, para absorver a radiação beta. Hoste⁽¹⁾ utilizando 5 segundos de irradiação, 2 segundos de espera e um nível de discriminação de 4,5 MeV, mostrou que: para 30 segundos de contagem, 12 mg de Boro equivalem a 1 mg de Oxigênio; e para 7 segundos de contagem, com absorvedor de Chumbo de 2 mm, 40 mg de Boro equivalem a 1 mg de Oxigênio.

4.1.2 - Determinação do Oxigênio

O sistema implantado, é capaz de determinar Oxigênio em matrizes que não contenham Fluor ou Boro ou que contenham quantidades conhecidas destes elementos. Os tempos típicos utilizados neste tipo de análise são:

- Trânsito para o alvo	- 1 segundo
- Irradiação	- 30 segundos
- Trânsito para o detetor	- 1 segundo
- Espera para contagem	- 2 segundos
- Contagem	- 30 segundos

Espectros do ^{16}N produzido por irradiação do Oxigênio contido em matrizes de Lucite (32% de Oxigênio), obtidos com os detetores de Ge(Li) e de NaI(Tl), são mostrados respectivamente nas Figuras 9 e 10. A Figura 11, é a reta de calibração do sistema, com o detetor de Ge(Li), feita usando-se amostras cilíndricas de Lucite, com teor de Oxigênio conhecido a um nível de discriminação de 4,5 MeV. Neste caso tem-se uma sensibilidade de 7 mg e o desvio padrão, ao nível de 150 mg é de 12,5%, para uma única determinação. Usando-se o detetor de NaI(Tl), nestas mesmas condições, a sensibilidade é de 1 mg, e o desvio padrão é de 11%, ao nível de 150 mg, para uma simples determinação. Estas medidas foram feitas, usando-se o tubo de transferência de secção circular. Com a utilização do novo tubo de secção retangular, recentemente construído, a sensibilidade deve ser muito melhorada, e o desvio padrão diminuído.

5 - FONTES DE ÉRRO

As principais fontes de erro neste método de análise podem ser classificadas em 4 diferentes tipos:

Definição dos intervalos de tempo.

Variações de ganho.

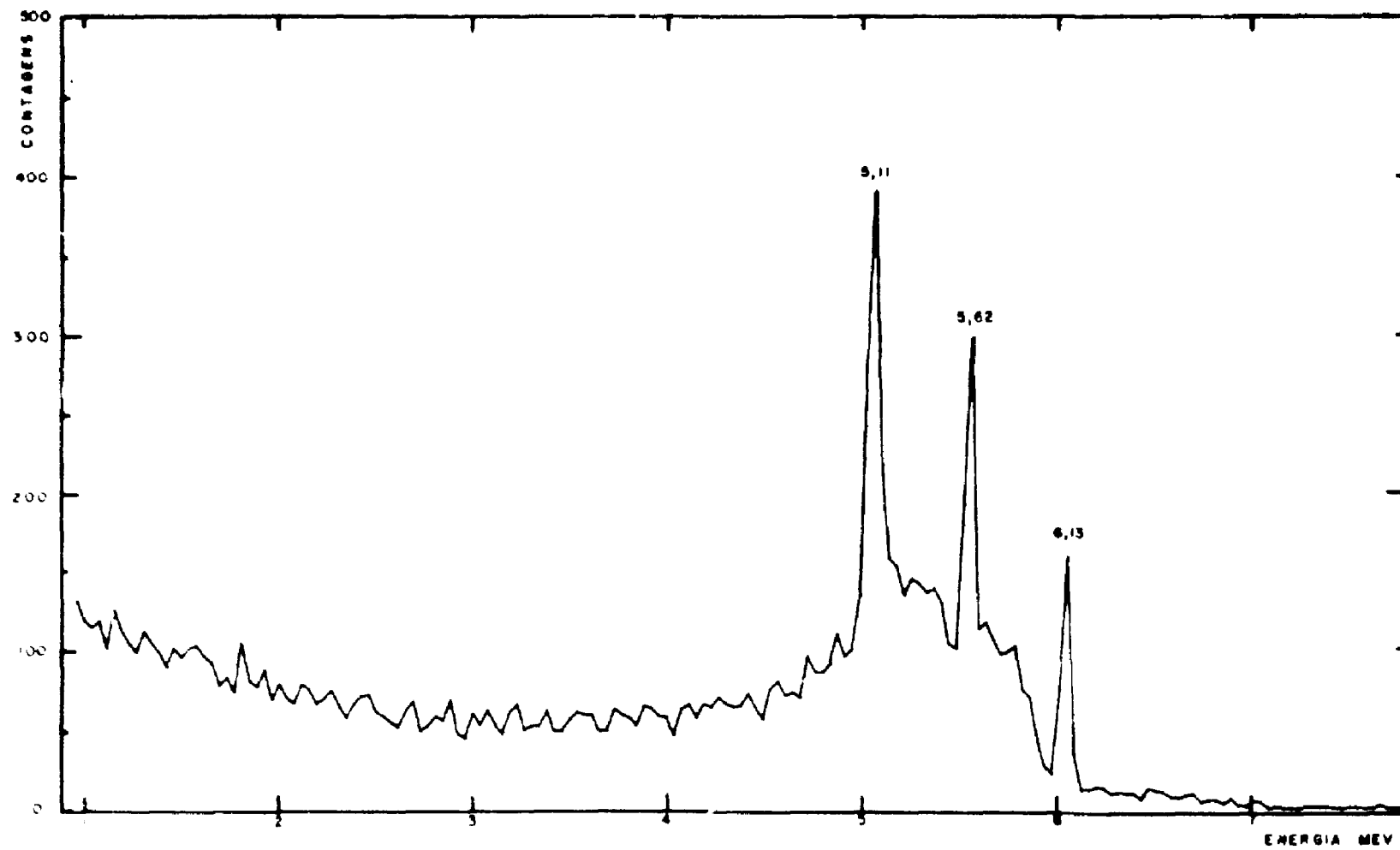


Fig. 9 - Espectro do ^{10}N obtido com detector de Ge(Li).

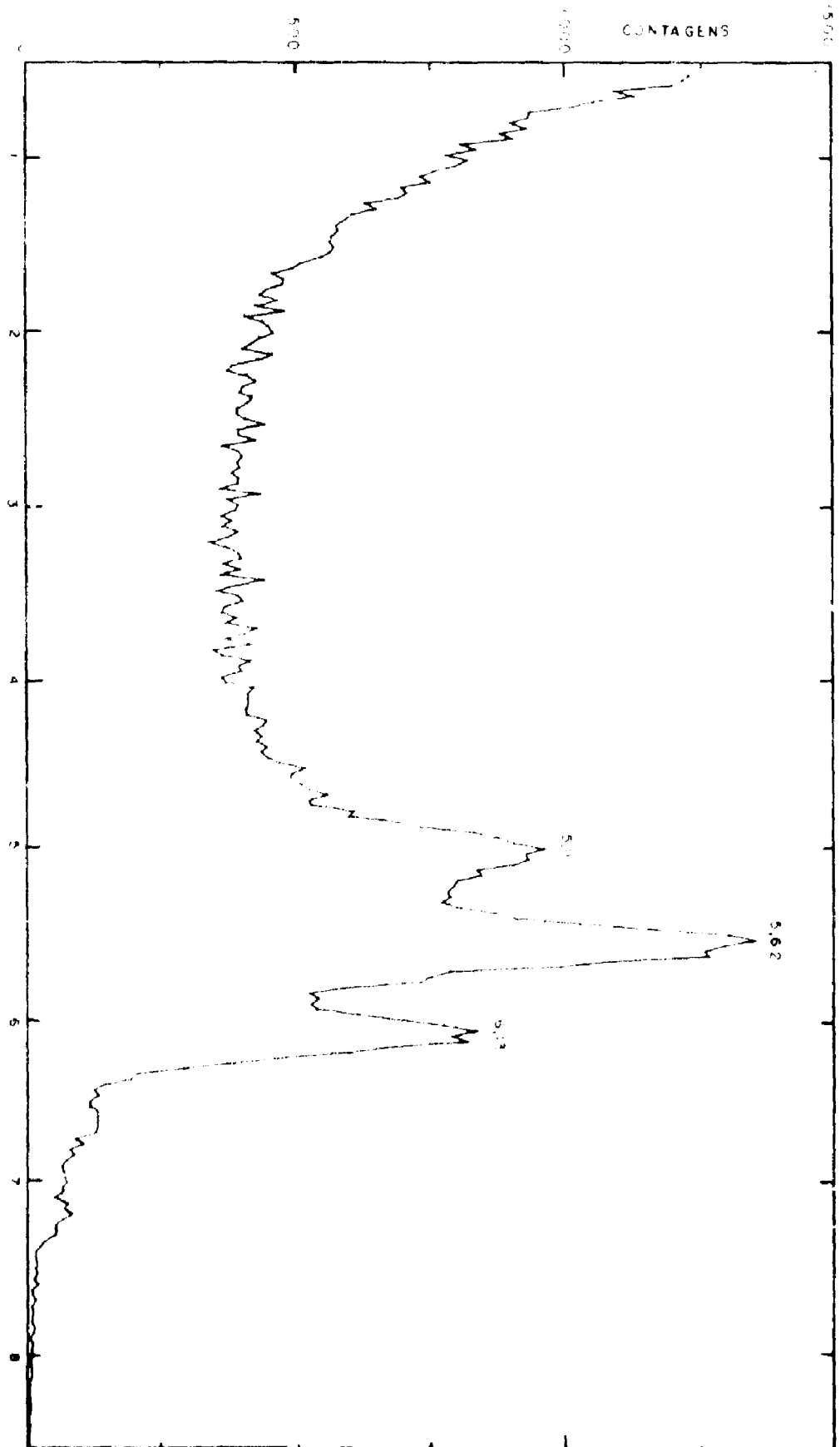


Fig. 10 - Espectro do ^{16}N obtido com detector de NaI (TK).

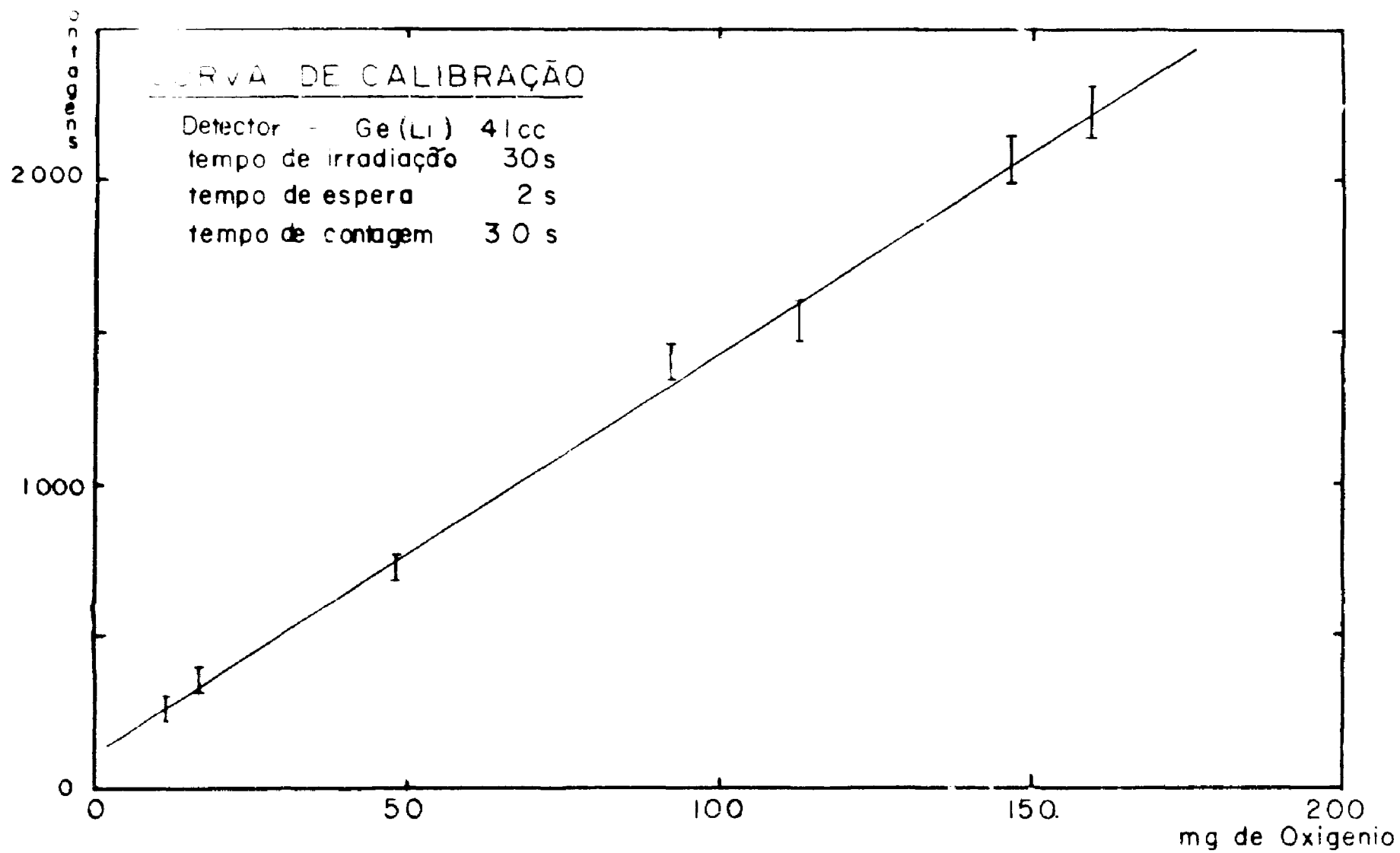


Fig. 11 - Calibração do sistema de análise por ativação para o Oxigênio.

- Variações no posicionamento da amostra e do padrão.
- Flutuação estatística das contagens.

5.1 - Definição dos Intervalos de Tempo.

Utilizando um monitor do tipo descrito no item 3.4, a medida fica independente dos tempos utilizados, sendo necessário somente que o monitor e a amostra sejam irradiados e contados simultaneamente, como foi mostrado por Gilmore⁽³⁾. Então a equação (3) pode ser escrita na forma

$$m_A = m_p \frac{C_A}{C_p},$$

com:

- C_A - Contagem da amostra normalizada para as variações de fluxo pelo monitor.
- C_p - Contagem do Padrão normalizada do mesmo modo.

No sistema implantado, a irradiação é determinada pela abertura e fechamento do interruptor do feixe. Para que a amostra e o padrão sejam irradiados simultaneamente, é necessário que a amostra esteja na posição de irradiação durante todo o intervalo que o interruptor permanece aberto.

Foram feitas medidas para a determinação do tempo de resposta do interruptor, utilizando-se um detetor BF₃ e o multi-canal com uma unidade multi-scaler. Os resultados obtidos foram:

- Abertura - o interruptor abre 125 ms depois do início do intervalo de irradiação.
- Fechamento - o interruptor só corta completamente o feixe de deuterons, 64 ms após o término do intervalo de irradiação.

Medidas feitas mostram que a amostra iniciava o trânsito para o detetor, 20 ms após o fim da irradiação, o que levaria a intervalos diferentes de irradiação na amostra e no monitor. Este problema foi eliminado retardando de 95 ms o início do trânsito da amostra para o detetor, utilizando-se um capacitor de 25×10^{-3} microfaradays em paralelo com o solenóide de válvula de abertura do gás impulsor da amostra.

As contagens do monitor e da amostra são iniciadas simultaneamente. O tempo de contagem no monitor é determinado pela unidade controladora do ciclo de análise, enquanto que o tempo de contagem na amostra é determinado pelo analisador multi-canal. A precisão dos relógios destes dois instrumentos é muito boa (5 ms), além do mais, pequenas diferenças entre eles, irão provocar diferenças nos instantes finais de contagem, quando as atividades estão mais baixas. Em particular, no caso de análise de Oxigênio, as atividades no instante final de contagem seriam somente 6% das atividades iniciais.

No sistema implantado, os erros devido a imprecisões na definição dos intervalos de tempo, são muito pequenos e podem ser desprezados diante dos demais erros.

5.2 - Variações de Ganho nos Sistemas de Contagem.

As principais causas que podem provocar variações de ganho nos sistemas de contagem, são: Variações de Temperatura, e Variações da Tensão de Alimentação. As variações devido à tensão de alimentação, são minimizadas, usando um estabilizador de tensão para todo o sistema. O uso de aparelhos de ar condicionado nas salas de irradiação e de controle, diminuem as variações de temperatura do ambiente. Mesmo assim, são observadas variações de ganho a longo prazo. A estimativa do erro produzido por estas variações, é difícil de ser feita.

Teoricamente, a irradiação e contagem do padrão bastaria ser feita uma única vez. Na prática esta irradiação e contagem deve ser repetida em intervalos de tempo convenientes, de modo a corrigir os efeitos de variações eventuais do ganho.

5.3 - Variações no Posicionamento da Amostra.

A secção interna dos terminais de irradiação e de contagem do tubo de secção retangular, têm 9,7 mm x 22,5 mm e a amostra usada tem 9,4 mm x 22,2 mm de diâmetro, permitindo uma variação de 3 décimos de milímetro, tanto na posição radial como na posição axial. Cálculos feitos, baseados no trabalho de Hoste⁽¹⁾, que mostra a distribuição do fluxo de neutrons perto do alvo, indicam que o erro devido à variações no posicionamento da amostra no terminal de irradiação, é no máximo igual a 1,1%. O erro devido a variações no posicionamento da amostra no terminal de contagens, é difícil de ser estimado, mas é seguramente inferior ao da posição de irradiação.

5.4 - Flutuação Estatística das Contagens.

Como foi visto no item 5.1, a quantidade do elemento analisado, contida na amostra, é dada por:

$$m_A = m_p \frac{C_A}{C_p}$$

Considerando-se desprezível o erro em m_p , o desvio padrão na determinação de m_A , será:

$$\frac{S_{m_A}}{m_A} = \sqrt{\left(\frac{S_{C_A}}{C_A}\right)^2 + \left(\frac{S_{C_p}}{C_p}\right)^2}$$

A determinação de C_A , contagens devido à amostra, é feita em dois ciclos de análise consecutivos, um do coelho com a amostra, e outro do coelho somente. As contagens são normalizadas e subtraídas, para se obter a contagem líquida na amostra, ou seja:

$$C_A = \frac{C_{T_A}}{M_{T_A}} - \frac{C_{B_A}}{M_{B_A}}$$

onde:

C_{T_A} = Contagem obtida da irradiação do coelho com a amostra.

M_{T_A} = Contagem obtida no monitor, nesta irradiação.

C_{B_A} = Contagem obtida da irradiação do coelho somente.

M_{BA} = Contagem obtida no monitor, nesta irradiação.

Analogamente, a determinação de C_P , contagem devida ao padrão, é dada por:

$$C_P = \frac{C_{TP}}{M_{TP}} - \frac{C_{BP}}{M_{BP}}$$

Com o tubo de secção retangular, o uso de coelho é na maioria das vezes desnecessário, e na determinação de C_{BP} , a irradiação é feita só para a medida da radiação de fundo. Na prática, não é necessária a determinação de C_{BA} e de C_{BP} em todas as análises.

O desvio padrão s numa medida, devido a flutuação estatística da desintegração radioativa, é dado pela raiz quadrada do número de contagens, ou seja.

$$s = \sqrt{C}$$

O monitor foi construído de modo a fornecer um número total de contagens maior que 10^4 , e o desvio padrão nesta contagem é menor que 1%, podendo ser desprezado diante dos desvios padrões das contagens fornecidas pela amostra e pelo padrão. Então:

$$(S_{CA})^2 = \left(\frac{S_{CTA}}{M_{TA}}\right)^2 + \left(\frac{S_{CBA}}{M_{BA}}\right)^2$$

e

$$(S_{CP})^2 = \left(\frac{S_{CTP}}{M_{TP}}\right)^2 + \left(\frac{S_{CBP}}{M_{BP}}\right)^2$$

E o desvio padrão na determinação de m_A , fica:

$$\frac{S_{m_A}}{m_A} = \sqrt{\frac{\frac{C_{TA}}{M_{TA}^2} + \frac{C_{BA}}{M_{BA}^2}}{C_A^2} + \frac{\frac{C_{TP}}{M_{TP}^2} + \frac{C_{BP}}{M_{BP}^2}}{C_P^2}}$$

Pode-se utilizar padrões com concentração do elemento a ser determinado muito maiores que a concentração na amostra. Neste caso, o desvio padrão S_{CP} será muito menor que o desvio S_{CA} . O desvio padrão será tanto menor, quanto mais alto for o número de contagens na amostra, e para uma mesma amostra, o desvio será reduzido se a saída de neutrons for aumentada. Contudo, é preciso ressaltar que uma diferença substancial entre a amostra e o padrão poderá causar outros tipos de problemas, tais como, diferenças na atenuação do fluxo de neutrons e na auto absorção da radiação gama.

6. - UTILIZAÇÃO DO SISTEMA

Atualmente, estão sendo desenvolvidos dois trabalhos, utilizando o sistema de análise por ativação com neutrons de 14 MeV implantado:

- Determinação da relação O/U em pastilhas de UO_2
- Determinação de Oxigênio em aços.

6.1 - Determinação da Relação O/U em pastilhas de UO_2

A maioria dos reatores de potência em operação ou com término da construção previsto para antes de 1982, usa combustível cerâmico de dióxido de urânio, o qual em geral tem a composição $UO_2 + x$, onde X depende das condições de fabricação destas pastilhas. A influência da estequiometria nas propriedades físicas das pastilhas tem sido muito estudada^(11,12,13,14), mostrando ser o seu controle de grande importância na fabricação de elementos combustíveis para reatores de potência.

Muitos métodos foram desenvolvidos para a determinação da relação O/U, podendo destacar dentre eles:

- reação do UO_2 com o trifluoreto de bromo⁽¹⁵⁾.
- redução com hidrogenio ou monóxido de carbono⁽¹⁶⁾.
- termogravimetria⁽¹⁷⁾.
- análise do U(IV) ou do U (VI)⁽¹⁸⁾.
- eletroquímica (não destrutivo)⁽¹⁹⁾.

Todos estes métodos apresentam vantagens e desvantagens para o controle de qualidade na fabricação de elementos combustíveis, sendo as principais desvantagens: a destrutibilidade, o tempo de análise por amostra e o custo da análise.

6.1.1 - Método da Análise por Ativação com Neutrons de 14 MeV.

A tabela 3 mostra as principais secções de choque para a ativação do Urânio com neutrons de 14 MeV. Examinando esta tabela e considerando os tempos de irradiação e contagem empregados na análise do Oxigênio, pode-se concluir que os principais isótopos que contribuem para a atividade da amostra durante a contagem, são os produtos de fissão rápida do ^{238}U . Não foi encontrado na literatura nenhuma referência aos produtos de fissão do ^{238}U com neutrons de 14 MeV, de meia vida curta.

Espectros feitos com detetor de NaI(Tl) e com detetor de Ge(Li) (Figura 12), de pastilhas de UO_2 irradiadas com neutrons de 14 MeV, mostram que os produtos desta irradiação causam interferência no espectro do ^{16}N , não permitindo um método simples para a determinação da relação O/U.

Atualmente, estão sendo estudados dois modos de contornar o problema da interferência, analisando-se espectros com o sistema de aquisição de dados HP 2116C, (ver apendice 1) que são os seguintes:

- a - Determinação da quantidade de Oxigênio, pela medida da área dos picos do ^{16}N .

TABELA 3

Principais Reações do Urânio com Neutrons de 14 MeV

<u>Isótopo</u>	<u>Abundância Isotópica %</u>	<u>Reação</u>	<u>Secção de Choque Barn</u>	<u>Produto</u>	<u>meia vida</u>
^{235}U	0,7	(n,f)	2	—	—
		(n,p)	0,002	^{235}Pa	24 min
		(n,2n)	0,70	^{234}mU ^{234}U	34 s 2,5 x 10 ⁵ anos
^{238}U	99,3	(n,f)	1,2	—	—
		(n,2n)	1	^{237}U	6,75 dias
		(n,3n)	0,70	^{236}U	2,4 x 10 ⁷ anos

Isto pode ser feito aplicando a função de "cross correlation" ao espectro obtido⁽²⁰⁾.

b - Isolando os dois espectros por mínimos quadrados e determinando a relação O/U pela razão entre o número de contagens de cada espectro⁽²¹⁾.

6.2 - Determinação da Quantidade de Oxigênio em Aços.

As propriedades físicas e mecânicas dos metais e ligas são, na maioria das vezes, consideravelmente alteradas pela presença de gases. O Oxigênio, em particular, geralmente aumenta a dureza e causa perda de ductibilidade em metais refratários. No aço ele também afeta:

- a - A solubilidade do carbono na ferrita e na austenita⁽²²⁾
- b - Propriedades tais como; resistência, limite de elasticidade, resistência ao impacto, e permeabilidade magnética. Provoca a formação de fissuras e a tendência ao envelhecimento⁽²³⁾.

Havendo evidências de que algumas das propriedades mencionadas são afetadas para um nível de Oxigênio acima de aproximadamente 30 ppm⁽²³⁾, é então necessário um método sensível e preciso, para a determinação do Oxigênio no aço e em outros metais. Este método deve ser aplicável, não somente na pesquisa e desenvolvimento da metalurgia, como também para o controle crítico deste gás, durante a produção.

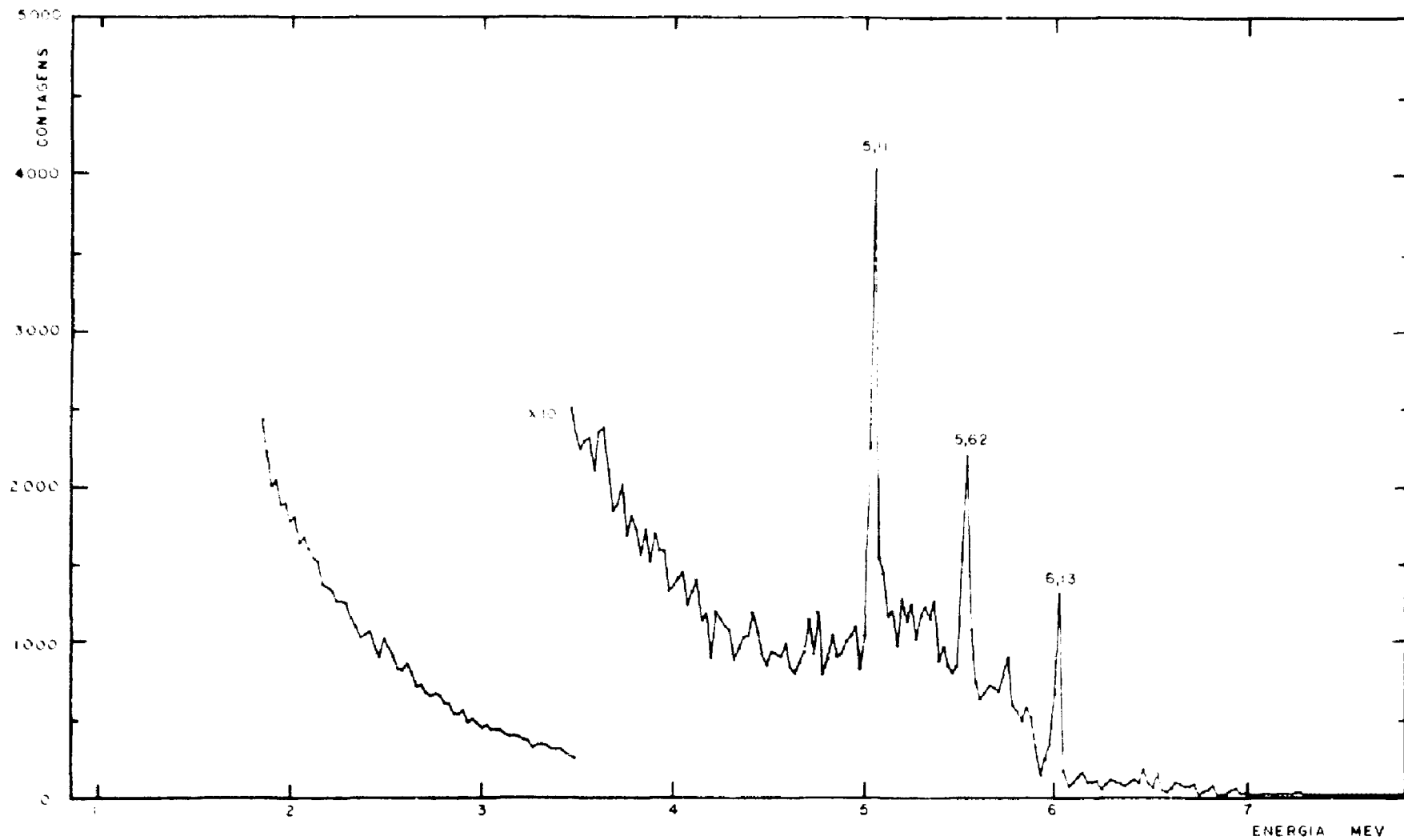


Fig. 12 - Espectro de pastilha de UO_2 , irradiada com neutrons de 14 MeV, obtido com detector de Ge(Li).

Até cerca de dez anos atrás, os métodos empregados eram químicos e baseados na fusão redutora a vácuo ou sob fluxo de gás inerte (Nitrogênio, Argônio ou Hélio)^(22, 24, 25). Estes métodos, apesar do aprimoramento conseguido através de várias décadas, apresentam alguns inconvenientes. Podemos citar entre os principais: a dificuldade na separação do elemento a ser dosado; a deposição de elementos de baixo ponto de fusão nas paredes da aparelhagem; as pequenas dimensões das amostras (variam de 0,5 a 5 gramas - representatividade por análise, pequena); e sobretudo por serem métodos destrutivos.

6.2.1. - O método de análise por ativação com neutrons de 14 MeV:

Mais recentemente foi proposto um método rápido e não destrutivo de análise do Oxigênio, baseado na reação $^{16}\text{O} (n,p)^{16}\text{N}$, com neutrons de 14 MeV^(26, 27), cujo esquema de decaimento é mostrado na figura 8.

As atividades induzidas nas amostras, devem ser corrigidas para a variação do fluxo de neutrons durante a irradiação. No nosso sistema a correção é feita, baseando-se na atividade induzida num alvo contendo Oxigênio (H_2O), tomada como base para a monitoração do fluxo.

Boro e fluor, não são normalmente encontrados nos aços, e portanto, não há interferências (ver item 4.1.2) na região dos fotopicos do ^{16}N , como vemos na figura 13. A medição da atividade absoluta, no entanto, é difícil de ser conseguida e, por isso, adota-se um processo de medição relativa, onde a concentração de Oxigênio na amostra é determinada, comparando-se a atividade detectada com a de um padrão^(1, 2). Dispõe-se de padrões de Oxigênio em aços, fornecidos pela NBS e que cobrem uma faixa de 4,5 a 500 ppm de Oxigênio.

Com o tubo de transferência de secção circular, a sensibilidade do sistema é de 1 mg de Oxigênio. Para amostras de 40 gramas, esta sensibilidade equivale a 25 ppm. O desvio em cada medida, para este baixo nível de Oxigênio, é muito grande pois o erro devido a variações de posicionamento de amostra é bastante alto. Com o novo tubo de transferência, de secção retangular, este erro fica praticamente eliminado, diminuindo consideravelmente o desvio em cada medida e aumentando a sensibilidade, não só por uma melhoria das geometrias de irradiação e de contagem, como também por tornar desnecessário o uso de coelhos. Este tubo aceita amostras de até 30 gramas e permitirá ainda, localizar possíveis irregularidades da distribuição do Oxigênio na amostra, pela variação, em medições diferentes, da face da amostra que ficará mais próxima do alvo e do detetor.

Amostras que não contenham Boro ou Fluor, poderão ser analisadas sem maiores problemas, e a sensibilidade e precisão, com o novo tubo de transferência, deverão atingir níveis considerados muito bons se comparados com outros sistemas semelhantes.

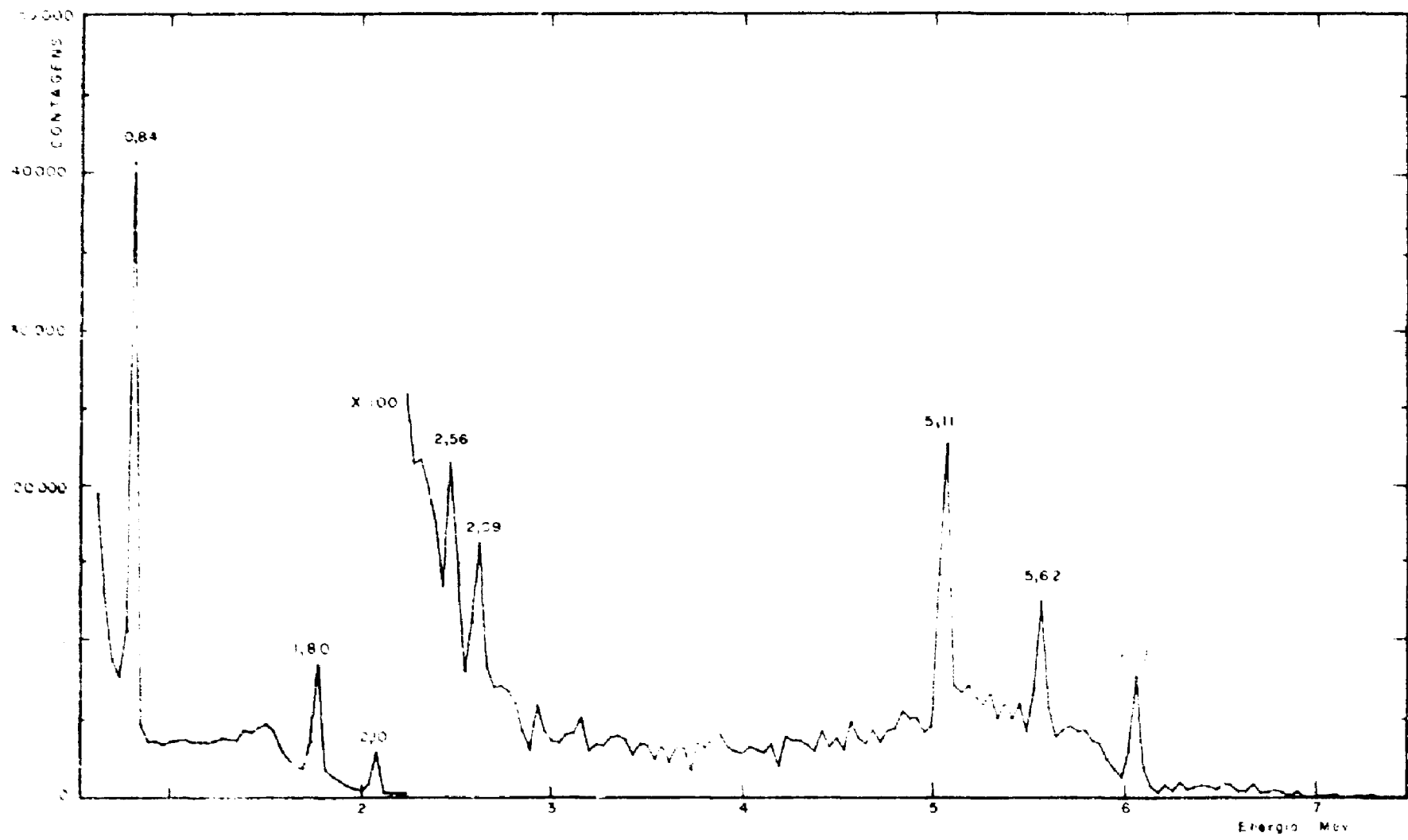


Fig. 13 - Espectro de aço 1020, irradiado com neutrons de 14 MeV, obtido com detector de Ge(Li).

APÊNDICE.**PROGRAMA DE ANÁLISE DE ESPECTROS.**

O programa apresentado neste apêndice foi desenvolvido em FORTRAN II, para o sistema de aquisição de dados HP 2116C. O programa é composto de sete partes que podem ser executadas independentemente. O início do programa é feito pela parte 1. Depois de concluída esta parte, a execução é desviada para o seletor de funções onde é escolhida a próxima parte do programa a ser executada. No fim da execução de qualquer parte é novamente desviada para o seletor de funções.

1ª parte. Ler um espectro em fita perfurada.

Nesta parte é feita a entrada de dados, por fita perfurada. O programa aceita fita em código BCD, da perfuradora Tally 420 usada como saída do multi-canal, ou fita em código ASCII, da teleimpressora do sistema de aquisição de dados.

2ª parte. Executar o alisamento (smoothing) do espectro.

O alisamento tem por objetivo diminuir as flutuações estatísticas das contagens no espectro. Isto é feito aproximando-se, por mínimos quadrados, as contagens em cada cinco canais por um polinômio do segundo grau e fazendo o novo valor das contagens do canal central igual ao obtido deste polinômio. O alisamento é feito para todos os canais exceto os dois iniciais e os dois finais do espectro. Este método de fazer alisamento deforma os picos quando existem menos que seis canais na meia largura.

3ª parte. Escrever no Teletipo o Espectro e sair fita em ASCII.

Esta parte serve para se obter saída de espectro em fita perfurada em código ASCII ou impresso na teleimpressora.

4ª parte. Plotar o Espectro.

Nesta parte o espectro é desenhado no traçador de gráficos HP 7200A. O espectro pode ser desenhado em forma linear ou logarítmica e a escala das contagens pode ser modificada durante o traçado.

5ª parte. Fazer regressão multi-linear.

Esta parte do programa faz a decomposição de um espectro composto, em dois espectros simples, por regressão multi-linear⁽²¹⁾. É necessário entrar inicialmente com os dois espectros simples no programa, e depois com o espectro composto. O programa fornece a proporção com que cada espectro simples entra na composição do espectro composto.

6ª parte. Fazer análise do espectro por Correlações Cruzadas (cross correlation).

Esta parte do programa identifica os picos do espectro aplicando a função de correlação, considerando os picos na forma de uma gaussiana. A saída fornece a área sob o pico, já

descontado o back-ground, e o número do canal em que o pico está centrado.

7ª parte. Combinação Linear de Dois Espectros.

Esta parte faz combinação linear de dois espectros canal a canal. A combinação de mais de dois espectros pode ser feita usando-se mais de uma vez esta parte.

A listagem completa do programa é mostrada nas páginas seguintes.

```

PROGRAM MULTI
C
C
C          ***** ANALISE DE ESPECTROS *****
C
C
C          ESTE PROGRAMA E COMPOSTO DE 7 PARTES EXECUTADAS INDEPEN-
C          DENTEMENTE, SELECIONADAS PELO "SELETOR DE FUNCOES"
C
C
C          PARTES DO PROGRAMA:
C
C          1- LER UM ESPECTRO EM FITA PERFURADA
C          2- FAZER O SMOOTHING DO ESPECTRO
C          3- ESCRIVER NO TELETIPO O ESPECTRO E SAIR FITA EM ASCII
C          4- PLOTAR O ESPECTRO
C          5- FAZER REGRESSAO MULTI-LINEAR
C          6- FAZER ANALISE DO ESPECTRO POR "CROSS CORRELATION"
C          7- COMBINACAO LINEAR DE DOIS ESPECTROS
C
C          AS DIVERSAS PARTES PODEM SER EXECUTADAS EM QUALQUER ORDEM
C
C          DIMENSION Y(1200), C(1,4), T(1200), T2(12,4), D(120)
C
C          1 MC=1
C          MR=1
C
C          *** READ *****
C
C          WRITE(2,5)
C          5 FORMAT('1-3000 1000 4000000')
C          READ(1,*)I1N1
C          12 IF (I1N1-2)GOTO 13
C          20 GO TO (22,24), I1
C          22 WRITE(2,23)
C          23 FORMAT('K=1  L=1  M=1')
C          READ(1,*)N1L
C          K=N1L-1
C          L=L-K+1
C          M=M
C          24 CALL RPT (Y,K,L)
C          GO TO 1200

```

```

30 GO TO (32,34),MR
32 WRITE(2,33)
33 FORMAT("K?")
   READ (1,*)M
   K0=0
34 READ (5,40)(Y(I),I=1,M)
40 FORMAT(9(I6," ",),I6)
   AM=M
   AM=M
   GO TO 1300

C
C
C           *** SMOOTHING *****
C
127 DO 105 J=1,5
128 C(J)=Y(J)
   LI=M-4
   DO 130 I=1,LI
   Y(I+2)=-3.*(C(1)/35.+C(5)/35.)+12.*(C(2)/35.+C(4)/35.)
   C+17.*C(3)/35.
   IF (I-LI)110,130
110 DO 120 J=1,4
120 C(J)=C(J+1)
   C(5)=Y(I+5)
130 CONTINUE
220 GO TO 1200

C
C
C           ** SAIDA DE FITA **
C
275 WRITE (0,208)
276 FORM(277,////)
   CARD=1,10R(25,10)
   WRITE (0,40)(Y(I),I=1,4)
   CARD=10R(20,10)
   WRITE (0,208)
   GO TO 1220

C
C
C           ** PLOT **
C
220 M01=1
   WRITE(2,221)
221 FORMAT(" 1- LINEA?  01  2- LOG")
   READ(1,*)ML
   WRITE(2,225)
225 FORMAT("1- PONTO OU 2- LINEA?")
   READ(1,*)L2
230 A=1
   A=100000.
   DO 240 I=M01,M
   IF (A-Y(I))235,236
235 A=Y(I)
236 IF(Y(I)-A)237,240
237 B=Y(I)
240 CONTINUE

```

```

        WRITE (2,245)A,B
245  FORMAT(/"MAIOR="F7.0/"MENOR="F7.0/"ESCALA?")
        READ (1,*)B,A
        GO TO (247,300),ML
C          :::**          LINAR          **:::
247  GO TO (250,260),L2
250  WRITE (2,251)
251  FORMAT("PLTP")
        GO TO 262
260  WRITE (2,261)
261  FORMAT("PLTL")
262  CH=9998./AM
        CO=9998./(A-B)
        JA=1
        DO 292 I=M01,M
C  -- SWITCH 14 ON  PARAR DE PLOTAR
C
C  -- SWITCH 13 ON  MUDAR DE ESCALA
C
        IF (ISSW(14))375,263
263  IF (ISSW(13))264,271
264  M01=I-1
        WRITE(2,380)
        GO TO 233
271  A1=I
        JAI=1
        JBI=1
        ABI=Y(I)
        IF (A-ABI)272,271
272  IF (ABI-B)275,276
273  GO TO (274,292,273),JA
274  JBI=2
275  ABI=A-.30001
        JA=2
        GO TO (289,282),JBI
276  GO TO (277,276,292),JA
277  JAI=2
278  A1=I+.30001
        JA=3
        GO TO (289,281),JAI
279  GO TO (289,279,281),JA
279  JA=1
280  ACO=9999.
        GO TO 283
281  JA=1
282  ACO=0.
283  ACH=(A1-1.)*CH
        WRITE(2,295)ACH,ACO
289  ACH=A1*CH
        ACO=(ABI-B)*CO
290  WRITE (2,295)ACH,ACO
292  CONTINUE
295  FORMAT(I4,IY,I4)
        GO TO 375
C          :::**          LOG          **:::
300  IF (B-1.)302,304
302  BL=-1
        GO TO 306
304  BL=ALOG(B)
306  AL=ALOG(A)

```

```

        GO TO (310,320),L2
310 WRITE (2,251)
    GOTO 321
320 WRITE(2,261)
321 CH=9998./AM
    CO=9998./(AL-BL)
    JA=1
    DO 360 I=M01,M
C
C
C -- SWITCH 13 ON      MUDAR DE ESCALA
C
        IF(ISSW(14))375,323
323 IF(ISSW(13))325,330
325 M01=I-1
    WRITE(2,380)
    GO TO 230
330 AI=I
    JAI=1
    JBI=1
    ABI=Y(I)
    IF(A-ABI)332,331
331 IF(ABI-B)335,338
332 GO TO (334,360,333),JA
333 JBI=2
334 ABI=A-.00001
    JA=2
    GO TO (345,342),JBI
335 GO TO (337,336,360),JA
336 JAI=2
337 ABI=B+.00001
    JA=3
    GO TO (345,340),JAI
338 GO TO (345,339,341),JA
339 JA=1
340 ACO=9999.
    GO TO 343
341 JA=1
342 ACO=0.
343 ACH=(AI-1.)*CH
    WRITE(2,295)ACH,ACO
345 IF(ABI-1.)347,348
347 AZ=-1
    GO TO 355
348 AZ=ALOG(ABI)
355 ACH=AI*CH
    ACO=(AZ-BL)*CO
    WRITE (2,295)ACH,ACO
360 CONTINUE
    WRITE(2,251)
    DO 372 J=1,2
    CH=(J-1)*9999
    DO 372 I=1,6
    T=I-1
    IF(A-13.**T)372,361
361 IF(10.**T-B)372,362
362 CO =9999.9/(AL-BL)
    CO=(T*ALOG(17.)-BL)*CO
370 WRITE (2,295)CH,CO
372 CONTINUE

```



```

C          *****      CALCULO DOS DESVIOS NOS PESOS      *****
DA1=DESV*(B111*Z/Z1)**.5
DA2=DESV*(B122*Z/Z1)**.5
C          *****      SAIDA DE DADOS      * * *
WRITE (2,520)DESV,A1,DA1,A2,DA2
520 FORMAT(/"DESVIO=",E12.6,/,/,10X,"A1=",E12.6," +- ",E12.6,/,
C,10X,"A2=",E12.6," +- ",E12.6,/)
GO TO 440

C
C
C          ::::: CROSS CORRELATION :::::
C
C
C
C
C
C
C
C
C
C
700 WRITE(2,720)
C          *****CALCULO DA GAUSSIANA      ***
720 FORMAT(" FWHM ?")
READ (1,*)FW
B2=(FW/2.49)*(FW/2.49)
IW=FW*3.+1.
AW=IW
MI=2*IW+1
C          ***      NOS      ***
DO 725 K=1,MI
AK=K
725 C(K)=EXP(-(AK-AW-1.)*(AK-AW-1.)/B2)*.54
C          CALC. DO ESPEC. DE CROSS COR.
DO 840 I=1,M
J1=I-IW
J2=I+IW
IF(I=730,730,740)
730 J1=I
740 IF(I=J2)750,760
750 J2=I
760 AJ1=J1
AJ2=J2
OJ=0
AI=0
S(I)=0
SG=0
DO 770 K=J1,J2
KA=K-I+IW+1
CA=I-K
ACA=ABS(CA)
IF(ACA=4.*FW/5.)768,765
765 AI=AI+Y(K)
OJU=OJU+1.
768 S(I)=S(I)+Y(K)*C(KA)
770 SG=SG+C(KA)
A2=A1/OJU
IF(ISSV(11))790,780
780 A3=A2+A2**.5
GO TO 820
790 A3=A2
800 S(I)=S(I)-SG*A3

```

```

      IF (ISSW(11))840,810
810  IF(S(1))840,820
820  S(1)=S(1)+SG*A2**.5
840  CONTINUE
C    ***      SAIDA DE FITA      ***
      IL=0
      IF(ISSW(10))843,844
843  ISP=1
      GO TO 845
C    ****      CALCULO DOS PICOS      ****
844  ISP=0
845  IQ=1
      L3=0
      DO 910 I=1,M
      - IF(ISP*(-1))846,847
846  Y(I)=S(I)
847  IF(S(I))900,900,850
850  IL=IL+1
      C(IL)=S(I)
      IQ=2
      IF(I-M)855,853
853  IQ=1
855  GO TO 910
860  AR=0
      X=0
      IQ=1
      DO 880 K=1,IL
      AR=AR+C(K)
      IF(C(K)-X)880,880,870
870  X=C(K)
      CH=K
880  CONTINUE
      ICH=CH
      CH=I-IL+ICH+K0
      WRITE(2,890)CH,AR
890  FORMAT(14,1X,F7.0)
      IL=0
900  GO TO (910,860),IQ
910  CONTINUE
      GO TO 1000
C
C
C
C
C    *****:::***+COMBINACAO LINEAR *****:::
C
C
C
C
2020  GO TO (2010,2030),MRI
2010  MRI=0
      DO 2020 I=1,M
2020  S(I)=Y(I)
C
C  -- SWITCH 9 ON      ENTRAR I SO ESPECTRO
C
      IF (ISSW(9))2030,10
2030  WRITE (2,2040)
2040  FORMAT("K1 & K2")
      READ(1,*)XK1,XK2

```

```
2070 DO 2100 I=1,M
2080 Y(I)=XK1*S(I)+XK2*Y(I)
2100 CONTINUE
      MR1=1
```

```
C
C
C
C
C
```

```
      ***SELECAO DAS FUNCOES****
```

```
1000 WRITE(2,1010)
1010 FORMAT(/"FUNCAO ?")
1020 READ(1,*)MT
      GO TO (1,100,205,230,300,700,2000),MT
      END
      ENDS
```

AGRADECIMENTOS

Os Autores agradecem as valiosas orientações dos Drs. SILVESTRE P. SOBRINHO, na fase inicial e LAO HOLLAND, na fase final de implantação do Sistema e, aos Drs. ROBERTO Y. HUKAI E LAO HOLLAND pelas valiosas sugestões e correções na redação deste trabalho.

RÉSUMÉ

On décrit un système d'analyse par activation avec des neutrons de 14 MeV, établi dans l'Institut de Energia Atômica. Ce système, utilise-t-il un accélérateur Van de Graaff de 400 KV, un détecteur de NaI(Tl), mesure 3 x 3", ou bien un détecteur de Ge(Li) de 41 cm³. Couple avec un analyseur multicanal avec 1024 canaux. Le contrôle du flux de neutrons est accompli tout en irradiant ou même temps que l'échantillon, un autre échantillon contrôle qui contient l'élément qu'on analyse, placé dans une position fixée. Les échantillons sont transportés par moyen pneumatique en 0,5 secondes.

On fait l'analyse aussi des sources d'erreurs et on présente des tables de sensibilité pour ce type d'analyse dans la détermination de plusieurs éléments. Des mesures préliminaires faites avec ce système, on démontré une sensibilité de 25 ppm, dans l'analyse de l'oxygène contenu dans l'acier.

ABSTRACT

A description is given of the fast neutron activation analysis system developed at the Instituto de Energia Atômica. Samples are analyzed by direct comparison with standards containing known quantities of the elements being evaluated. Activation of the sample by 14 MeV neutrons, produced by the $^3\text{H}(d,n)^4\text{He}$ reaction using a 400 KV Van de Graaff Accelerator is followed by pneumatic transfer to a distant counter in times as short as 0,5 s. The sample activity is measured using either a "3 x 3" NaI(Tl) crystal or a 41 cm³ Ge(Li) detector coupled to a 1024 channel analyzer and the fast neutron flux is monitored by measuring the activity of a fixed position sample irradiated at the same time as the test sample.

The main sources of error are analyzed and detection sensitivities for different elements presented. In preliminary runs, a sensitivity of 25 ppm for oxygen in steel has been measured.

BIBLIOGRAFIA

- 1 - Hoste, J.; Soete, D. & Speecke, A. - The determination of Oxygen in metals by 14 MeV neutron activation analysis. EUR3565e (1967).
- 2 - Gijbels, R.; Speecke, A. & Hoste, J. - An Oxygen standard for the determination of Oxygen in steel by 14 MeV neutron activation analysis. Anal. Chim. Acta, 43 (1968) 183-198.
- 3 - Gilmore, J.T. & Hull, D. E. - Neutron flux monitoring for activation analysis of Oxygen. Anal. Chem., 35 (1963) 1623-1625.
- 4 - Fujii, I.; Muto, H. & Maeda, Y. - Industrial Activation analysis unit with 14 MeV neutron generator and its application. Toshiba Review, 15 (1963) 32-39.
- 5 - Anders, O. U. & Briden, D. W. - A rapid, nondestructive method of precision Oxygen analysis by neutron activation. Anal. Chem., 36 (1964) 287-292.
- 6 - Horta, J.A.L. - Análise de Oxigênio com neutrons de 14 MeV. Trabalho de Mestrado IPR - UFMG (1971).
- 7 - Auboim, G.; Guazzoni, P. & Laverlochere, J. - Utilization de Neutrons de 14 MeV en analyse par activation. CEA 2358 (1963).
- 8 - Perdijon, J. - Experimental sensitivities in neutron activation and gamma spectrometry with a 150 KV accelerator. Anal. Chem., 39 (1967) 448-456.
- 9 - Fujii, I.; Inouye, T.; Muto, H. & Onodera, K. - Investigation of a rapid and nondestructive fast neutron activation analysis for many elements by using a semi-conductor detector. Analyst, 94 (1969) 189-197.

- 10 - Freitas, C. T. - Sinterização de Urânio em atmosfera redutora. Trabalho apresentado no 14^o Congresso da Associação Brasileira de Cerâmica. (1971).
- 11 - Marchandise, H. - Conductibilité thermique du Bioxide d'Uranium. EUR-4568(1970)
- 12 - Keller, D. L. - Progress on development of fuels and technology for advanced reactors during January-March 1971, BMI-1905.
- 13 - Godfrey, T. G.; Fulkerson, W.; Kome, T. A.; Moore, J. P. & McElroy, D. L. - Thermal conductivity of Uranium Dioxide and UO_2 from by an improved radial heat flow technique. ORNL-3556 (1964).
- 14 - Cristensen, J. A. - Stoichiometry effects in Oxide Nuclear Fuels. BNWL-536 (1967)
- 15 - Hoekstra, H. R. & Katz, J. J. - Direct determination of Oxygen in less familiar metal oxides. Anal. Chem., 25 (1953) 1608-1612
- 16 - Roberts, L. E. J & Harder, E. A. - The determination of Oxygen in Uranium Oxides. AERE-C/R 885.
- 17 - Stonhill, L. G. - The determination of the atomic ratio in the Uranium - Oxygen system by Thermo-Gravimetric method. Can. J. Chem. 37 (1959) 454-459
- 18 - Burd, R. M. & Goward, G. M. - The Polorgraphic determination of Hexavalent Uranium in Uranium Oxides. WAPD-205 (1959).
- 19 - Ferro, C., Moletti, S. & Patino, C. - Nondestructive Method for the determination of O/U insintered pellets. LA 4160-TR.
- 20 - Black, W. W. - Applications of Correlation to isolate structure in experimental data. Nucl. Inst. Meth., 71 (1969) 317-327.
- 21 - Schonfeld, E., Kibbey, A. H. & Davis, J. W. - Determination of fluoride concentrations in solutions containing low level of radioactivity by Least-Squares resolution of the gamma-ray spectra. ORNL-3744 (1965)
- 22 - Krishnamoorthy, T. S.; Krishna, S. V. & Venkateswarlu, Ch. - Accum Fusion Techniques for Gases in Metals. BARC, 277 (1967)
- 23 - Rees, W. P. & Hopkins, B. E. - Intergranular brittleness in iron-oxygen alloys. J. Iron Steel Inst., 172 (1952) 403-409.
- 24 - Strömler, J. - Dosage de l'Oxygène et de l'Azote dans les aciers. Chim. Anal. 51 (1969) 644-651.
- 25 - Hanin, M. - Les fusions réductrices sous vide et sous gaz porteur appliquées au dosage de l'Oxygène dans les aciers - Chim. Anal. 51 (1969) 417
- 26 - Veal, D. J. & Cook, C. F. - A rapid method for the determination of elemental Oxygen by activation with fast neutrons. Anal. Chem. 34 (1962) 178-184
- 27 - Steele, E. L. & Meinke, W. W. - Determination of Oxygen by Activation Analysis with fast neutrons using a low-cost portable neutron generator. Anal. Chem., 34 (1962) 185-187
- 28 - Wood, D. E. - Some Principles of Activation Analysis. KN 68-71(R) (1968)

