



DETERMINAÇÃO DA RELAÇÃO O/U EM ÓXIDOS
DE URÂNIO ATRAVÉS DA ANÁLISE POR ATIVAÇÃO
DO OXIGÊNIO COM NÉUTRONS DE 14 MeV

Eduardo Lavenère Machado

DISSERTAÇÃO E TESE-IEA 042

JANEIRO/1978

**DETERMINAÇÃO DA RELAÇÃO O/U EM ÓXIDOS
DE URÂNIO ATRAVÉS DA ANÁLISE POR ATIVAÇÃO
DO OXIGÊNIO COM NÊUTRONS DE 14 MeV**

Eduardo Lavenère Machado

Dissertação para obtenção do Título de "Mestre em
Engenharia" — Orientador Prof. Dr. Leo Holland.
Apresentada e defendida em 28 de dezembro de 1976,
à Escola Politécnica de Universidade de São Paulo.

APROVADA PARA PUBLICAÇÃO EM JUNHO/1977

CONSELHO DELIBERATIVO

MEMBROS

Klaus Reinach - Presidente
Roberto D'Utra Vaz
Helcio Modesto da Costa
Ivano Humbert Marchesi
Admar Cervellini

PARTICIPANTES

Regina Elisabete Azevedo Beretta
Flávio Gori

SUPERINTENDENTE

Rômulo Ribeiro Pieroni

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal 11.049 (Pinheiros)
Cidade Universitária "Armando de Salles Oliveira"
SÃO PAULO - BRASIL

ÍNDICE

	Página
1 – INTRODUÇÃO	1
1.1 – Prefácio	1
1.2 – Importância da Estequiometria	2
1.3 – Métodos para a Determinação da Relação O/M	2
1.4 – Objetivo do Trabalho	4
2 – DESCRIÇÃO DO MÉTODO	4
2.1 – Dados Nucleares	8
2.2 – Base Teórica	11
2.2.1 – Equação da Ativação (Atividade da Amostra)	11
2.2.2 – Contagem da Amostra	12
2.2.3 – Contagem do Monitor	13
2.2.4 – Normalização	13
2.2.5 – Equação de Calibração	16
3 – ARRANJO EXPERIMENTAL	17
3.1 – Descrição do Sistema	17
3.2 – Localização	17
3.3 – Fonte de Nêutrons	17
3.4 – Sistema Rápido de Transferência de Amostras	19
3.5 – Sistemas de Contagem	19
3.6 – Monitor do Fluxo de Nêutrons	27
3.7 – Unidade Controladora do Ciclo de Análise	28
3.8 – Operação do Sistema	29
4 – ANÁLISE DOS ERROS	30
4.1 – Erros na Determinação da Massa da Amostra	30
4.2 – Erros na Determinação das Contagens	30
4.2.1 – Interferência Direta	30
4.2.2 – Interferência Indireta	31
4.2.3 – erros Associados à Natureza Estatística da Desintegração Radioativa	32
4.3 – erros Associados à Normalização do Fluxo	33
4.3.1 – Erros Associados aos Tempos de Irradiação e Contagem	34
4.3.2 – Erros Associados às Eficiências	34

4.3.3 – Erros Associados aos Fluxos	35
4.3.4 – Erros Associados à Atenuação de Gamas e Nêutrons	38
4.4 – Variação do Desvio Padrão com Número de Ciclos	39
5 – EXPERIÊNCIAS E RESULTADOS	42
5.1 – Escolha das Condições de Funcionamento do Monitor de Fluxo	42
5.1.1 – Alta Tensão da Fotomultiplicadora	42
5.1.2 – Escolha do Nível de Discriminação do Monitor	42
5.2 – Verificação do Monitor	44
5.3 – Variação da Atividade da Amostra com a Distância Amostra-Alvo	47
5.4 – Influência da Focalização do Feixe de Dêutrons	48
5.5 – Escolha da Espessura do Absorvedor entre a Amostra e o Detetor	48
5.6 – Reprodutibilidade do Sistema	50
5.7 – Medidas em UO_2	50
6 – CONCLUSÕES E SUGESTÕES	59
APÊNDICE – PROGRAMA PARA CÁLCULO DAS ÁREAS DOS PICOS	60
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	67

DETERMINAÇÃO DA RELAÇÃO O/U EM ÓXIDOS DE URÂNIO ATRAVÉS DA ANÁLISE POR ATIVAÇÃO DO OXIGÊNIO COM NÊUTRONS DE 14 MeV

Eduardo Lavenère Machado

RESUMO

É apresentado um método não destrutivo para a determinação da relação O/U em óxidos de urânio, através da medida da concentração relativa do oxigênio, por análise por ativação com nêutrons de 14 MeV.

A determinação é feita pela medida da radiação gama do ^{16}N , formado pela reação $^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$. As amostras são transferidas pneumáticamente entre os locais de irradiação e contagem, distantes entre si, de aproximadamente 10 m. As contagens do ^{16}N na amostra, obtidas com um detetor Ge(Li) de 35 cm^3 acoplado a um analisador multicanal, são normalizadas para as variações de fluxo de nêutrons, dividindo-as pelas contagens do ^{16}N no monitor de fluxo, que é irradiado e contado simultaneamente com a amostra. Com as contagens normalizadas, a relação O/U da amostra é obtida diretamente da curva de calibração do sistema, previamente construída com amostras padrões, com relações O/U conhecidas.

Nas condições utilizadas nas experiências, obteve-se uma precisão de 0,056 unidades de O/U, sendo a estatística de contagem a principal causa desta precisão relativamente baixa. Esta precisão é suficiente para a determinação da relação O/U em óxidos de urânio na fase de pré-sinterização. São sugeridas modificações no sistema, que permitirão obter uma precisão da ordem de 0,004 unidades de O/U, o que torna o método aplicável em operações de controle de pastilhas sinterizadas usadas em reatores de potência, com a vantagem, em relação aos demais métodos, de ser relativamente rápido e não destrutivo.

1 – INTRODUÇÃO

1.1 – Prefácio

A partir de 1954, o interesse na utilização de combustível cerâmico de dióxido de urânio em reatores nucleares começou a desenvolver-se rapidamente, devido principalmente à grande estabilidade dimensional do UO_2 sob irradiação e seu elevado ponto de fusão. Atualmente, o dióxido de urânio, na forma de pastilhas sinterizadas, é o combustível nuclear mais utilizado. Os óxidos mistos de urânio e plutônio, $(\text{U,Pu})\text{O}_2$, pouco utilizados até o momento, terão sua importância muito aumentada com o desenvolvimento dos reatores rápidos. Dos reatores de potência já construídos ou com término de construção previsto para antes do fim de 1984, 82% utilizam combustível cerâmico de UO_2 ou $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ (49).

O dióxido de urânio, mesmo à temperatura ambiente, apresenta uma forte tendência a absorver oxigênio, passando para uma composição hiperestequiométrica, UO_{2+x} , pela formação de óxidos superiores como o U_4O_9 e o U_3O_8 . Quando aquecidos a temperaturas iguais ou superiores a 1600°C , em atmosfera com baixa pressão parcial de oxigênio, estes óxidos podem ficar com uma composição hipoestequiométrica, UO_{2-x} . Estas condições acontecem em geral no processo de sinterização. O UO_{2-x} na temperatura ambiente é uma mistura de urânio metálico com UO_2 , estequiométrico.

1.2 - Importância da Estequiometria

A relação O/U, relação entre o número de átomos de oxigênio e o número de átomos de urânio, tem grande influência em importantes propriedades físicas e químicas do dióxido de urânio.

Para uma relação O/U entre 1,95 e 2,00, o ponto de fusão é 2800°C, diminuindo com a variação da composição para 2600°C em composições equivalentes a relações O/U de 1,75 ou 2,15⁽⁶⁾. A condutibilidade térmica decresce continuamente com o aumento da relação O/U na faixa de O/U entre 1,9 e 2,2^(11,38). Na temperatura de 920°C, ela diminui 40% quando a relação O/U passa de 2,00 para 2,10⁽³⁸⁾. MacEvan⁽³⁶⁾ mediu a integral da condutibilidade térmica de pastilhas cerâmicas de UO₂ entre as temperaturas de 300°C e 1500°C. Para pastilhas com relação O/U de 1,98 e 2,007 não irradiadas, as integrais da condutibilidade não foram significativamente diferentes. Após a irradiação, até uma queima de 460 MW.D por tonelada de urânio, a integral da condutibilidade térmica de UO_{2,007} caiu aproximadamente 15% enquanto que a do UO_{1,98} não sofreu alteração.

Robertson⁽⁵¹⁾ mostrou que a capacidade de retenção dos produtos de fissão pelos óxidos de urânio é influenciada pela relação O/U. Na temperatura de 1700°C, o UO_{2,025} deixa escapar da ordem de quatro vezes mais xenônio que o UO_{2,010} na mesma temperatura. Shiba⁽⁵⁷⁾ estudou a capacidade de retenção do dióxido de urânio para o xenônio e o iodo, chegando à conclusão que o UO_{2,00} tem uma capacidade de retenção, para estes dois gases, bem maior que a do UO_{2+x}, hiperestequiométrico.

Outras propriedades importantes para reatores de potência que são influenciadas pela relação O/U são: plasticidade^(31,52,54) módulo de elasticidade⁽²⁸⁾, dureza⁽¹¹⁾, distribuição dos produtos de fissão no combustível⁽⁴³⁾ e compatibilidade com o material da camisa^(25,30).

Williams⁽⁶⁵⁾ mostrou que a densidade das pastilhas de UO₂ sinterizadas aumenta aproximadamente 10% quando a relação O/U inicial do pó empregado passa de 2,00 para 2,02, aumentando depois, mais lentamente, com o crescimento da relação O/U. Nishioka⁽⁴⁶⁾ sugere a utilização de pós com relação O/U entre 2,06 e 2,16 para se obter densidades próximas da densidade teórica em pastilhas sinterizadas. Após a sinterização, a relação O/U diminuiu para valores próximos de 2,00.

O dióxido de urânio é utilizado na fabricação de UF₄ e UF₆ para a purificação ou enriquecimento do urânio^(18,50). Neste processo é importante manter a relação O/U com valores próximos de 2,00 para diminuir a formação indesejável do fluoreto de urânio (UO₂F₂). Ribas⁽⁵⁰⁾ concluiu que pós de boa qualidade para a produção de UF₄ devem ter relação O/U no máximo igual a 2,05.

Dióxidos mistos de urânio e plutônio (U,Pu)O₂ são usados em reatores rápidos. Nestes óxidos, a relação O/M, relação entre o número de átomos de oxigênio e o número de átomos de metais, tem grande influência no ponto de fusão⁽³⁴⁾ na condutibilidade térmica⁽²⁰⁾, na compatibilidade com o material da camisa⁽²⁵⁾, na redistribuição do urânio e plutônio sob irradiação^(1,47) e na distribuição dos produtos de fissão no combustível⁽⁴³⁾. Embora não tenham sido encontradas na literatura referências sobre a influência da estequiometria em óxidos de tório e em óxidos mistos contendo tório, é de esperar que esta seja tão importante quanto nos óxidos de urânio e plutônio.

1.3 - Métodos para a Determinação da Relação O/M

Uma grande quantidade de métodos foi desenvolvida para a determinação da relação O/M em óxidos de urânio, de plutônio, de tório e óxidos mistos destes elementos. Daremos a seguir uma breve descrição dos principais métodos existentes.

No método desenvolvido por MacDougall⁽³⁶⁾ a amostra é misturada com grafite e aquecida à 2000°C em atmosfera de gás inerte. O oxigênio da amostra reage com o carbono sendo liberado

na forma de CO e CO₂. Estas quantidades de CO e CO₂ tem-se a quantidade de oxigênio na amostra. O tempo por análise é da ordem de 2 horas e a precisão é de 0,005 unidades de O/M. Este método pode ser aplicado a óxidos de U, Pu, Th ou mistos com qualquer estequiometria.

Hoekstra⁽²⁴⁾ mediu a quantidade total de oxigênio na amostra por reação desta com trifluoreto de bromo (BrF₃) a temperatura de 75°C. O oxigênio liberado na reação é medido em volume calibrado. O método foi aplicado a óxidos de urânio com qualquer estequiometria, com uma precisão de 0,008 unidades de O/U e um tempo por análise da ordem de 3 horas.

McNeilly⁽³⁷⁾ e Maurice⁽⁴¹⁾ mediram a quantidade de oxigênio em excesso, ou em falta, para o valor estequiométrico em óxidos de U, Pu ou mistos de U e Pu. A determinação foi feita pela variação do peso da amostra quando a quantidade de oxigênio é equilibrada para uma relação O/M igual a 2,00, em atmosfera de CO-CO₂ (10:1) a uma temperatura de 850°C. McNeilly⁽³⁷⁾ utilizou amostras sinterizadas, o que tornou o método não destrutivo, mas que exige um tempo de 6 horas para equilibrar a amostra. Maurice⁽⁴¹⁾ reduziu as amostras a pó, e que diminuiu este tempo para uma hora. A precisão deste método é de 0,001 unidades de O/M.

Forlano⁽¹⁷⁾ e Shafter⁽⁵³⁾ mediram a variação de peso da amostra quando esta é transformada em U₃O₈ por aquecimento no ar a uma temperatura de 900°C. Este método é muito simples e apresenta uma precisão de 0,004 unidades de O/U, se forem feitas correções para a quantidade de umidade na amostra e adotado um procedimento especial para a produção de U₃O₈ que demora mais que 8 horas⁽⁵⁵⁾. Pode ser aplicado a óxidos de urânio com qualquer estequiometria.

Marken⁽³⁹⁾ e Jones⁽³⁰⁾ reduziram amostras de óxidos de U, Pu, ou mistos de U e Pu, hiperestequiométricos a uma relação O/M igual a 2,00, em uma atmosfera de CO à 850°C. O oxigênio em excesso combina-se com o CO formando CO₂. A atmosfera final deve ser equilibrada para uma proporção de CO-CO₂ de 10:1, para garantir uma relação O/M igual a 2,00. A determinação do CO₂, após ter sido separado do CO, foi feita em volume calibrado. Os óxidos hipostequiométricos foram analisados, após terem sido transformados em hiperestequiométricos, por oxidação com uma quantidade de oxigênio conhecida. Marken⁽³⁹⁾ obteve uma precisão de 0,002 unidades de O/M para óxidos hiperestequiométricos e de 0,003 unidades de O/M para hipostequiométricos, enquanto Jones⁽³⁰⁾ obteve 0,005 unidades de O/M para os dois casos. O tempo por análise é da ordem de 2 horas.

Muitos autores utilizam métodos que são aplicáveis somente a óxidos hiperestequiométricos, onde as amostras são dissolvidas em ácido fosfórico concentrado, em atmosfera de gás inerte em temperatura de aproximadamente 190°C. Durante a dissolução, que tem a duração da ordem de uma hora, não há oxidação ou redução dos íons metálicos. A determinação da relação O/U é feita pela medida da concentração de U(IV) ou U(VI) e U total na solução por diferentes métodos.

Stromatt⁽⁶¹⁾, Zittel⁽⁶⁶⁾ e Baring⁽⁵⁾ mediram a concentração de U(VI) e U total por coulometria a potencial controlado. A precisão neste caso é de 0,0006 unidades de O/U. Baring⁽⁵⁾ aplicou este método para óxidos mistos de U e Pu, medindo também as concentrações de Pu(IV) e Pu total, obtendo uma precisão de 0,002 unidades de O/M.

Burd⁽¹⁰⁾ e Kubota⁽³²⁾ mediram a concentração de U(VI) por polarografia obtendo uma precisão que varia com a relação O/U, sendo de 0,004 para O/U = 2,100 e de 0,03 para O/U = 2,67. Shalgosk⁽⁵⁸⁾ usou um método de polarografia comparativa, determinando a concentração de U(VI), por comparação com uma solução preparada com concentração próxima à da solução testada. A precisão neste caso é de 0,0001 unidades de O/M.

Engelsman⁽¹³⁾, Tolk⁽⁶²⁾ e Federgrün⁽¹⁵⁾ determinaram volumetricamente as concentrações de U(VI) e U total por titulação. A precisão obtida por Tolk foi de 0,0001 unidades de O/U. Federgrün⁽¹⁵⁾ aplicou este método também a óxidos mistos de U e Th com uma precisão de 0,003 unidades de O/M.

Um método específico para dióxido de urânio hipostequiométrico foi desenvolvido por Tolk⁽¹³⁾, o qual se baseia no fato das amostras de dióxido de urânio hipostequiométrico, em temperatura ambiente serem compostas de UO_2 e urânio metálico. Este, quando dissolvido em ácido fosfórico concentrado, transforma-se em U(IV) liberando hidrogênio que é medido por cromatografia gasosa. A precisão deste método, é comparável à do método termogravimétrico⁽⁵⁵⁾, que é de 0,004 unidades de O/U.

Métodos físicos para a determinação da relação O/M em óxido de U e mistos de U e Pu, também têm sido usados. Drummond⁽¹²⁾ utilizou o método da difração de raios X, que pode ser aplicado em óxidos mistos de U e Pu com qualquer estequiometria, mas a medida, que é feita só na camada superficial, tem precisão pior que 0,01 unidades de O/M. Markin⁽⁴⁰⁾ e Ferro⁽¹⁶⁾ utilizaram o método da pilha galvânica em alta temperatura para a determinação da relação O/U em dióxido de urânio hiperestequiométrico. A precisão do método é da ordem de 0,002 unidades de O/U. Embora este método seja não destrutivo e tenha boa precisão, segundo Jones⁽³⁰⁾, não serve para ser utilizado em medidas de rotina.

Na Tabela I é apresentado um resumo das principais características dos métodos de determinação da relação O/M.

1.4 – Objetivo do Trabalho

Este trabalho tem como objetivo desenvolver um método de análise da relação O/U em óxido de urânio, utilizando a técnica não destrutiva de análise por ativação com nêutrons de 14 MeV.

Neste método, a determinação da quantidade de oxigênio é feita pela medida da radiação gama de 6,13 MeV do ^{16}N , formado do ^{16}O por reação (n,p). As contagens do ^{16}N na amostra de óxido de urânio são normalizadas, para variações do fluxo de nêutrons, pelas contagens do ^{16}N no monitor que é irradiado e contado simultaneamente com a amostra. Com as contagens normalizadas, a relação O/U é obtida da curva de calibração do sistema, previamente construída com amostras padrões de relações O/U conhecidas.

A técnica de análise por ativação com nêutrons de 14 MeV tem sido usada para a determinação da quantidade de oxigênio em amostras que não contenham fluor, boro ou urânio^(4,21,22,27,64). Em amostras contendo urânio, a alta atividade dos produtos de fissão rápida interfere na determinação dos gamas do ^{16}N por superposição de pulsos e saturação do sistema de contagem. Este problema foi contornado com a utilização de equipamento apropriado para altas taxas de contagens e de um absorvedor de chumbo entre a amostra e o detetor, funcionando como filtro para as radiações de baixa energia dos produtos de fissão.

Embora neste trabalho tenham sido utilizadas somente amostras de dióxido de urânio natural hiperestequiométrico, este método pode ser também aplicado a óxidos de urânio enriquecido, de plutônio, de tório ou óxidos mistos destes elementos, com qualquer estequiometria.

2 – DESCRIÇÃO DO MÉTODO

A medida da relação O/U em óxido de urânio é feita pela determinação da concentração relativa do oxigênio, por análise por ativação com nêutrons de 14 MeV, através da reação $^{16}O(n,p)^{16}N$.

O espectro de energia da radiação gama emitida pela amostra, após ter sido irradiada com nêutrons de 14 MeV, é obtido com um detetor de Ge(Li) acoplado a um analisador multicanal. O número de contagens do ^{16}N formado do ^{16}O por reação (n,p), é calculado através da área dos picos do

Tabela I

Principais Características dos Métodos de Determinação da Relação O/M

Referência	Processo	Aplicação	Tempo para uma análise (horas)	Desvio padrão (Unid. O/U)	Comentários
MacDougall ⁽³⁵⁾	Mistura a amostra com grafita, aquece a 2000°C e pesa o CO e CO ₂ formados	UO ₂ ± x, PuO ₂ - x, ThO ₂ - x (U,Pu)O ₂ ± x	2	0,005	Destrutivo
Hoekstra ⁽²⁴⁾	Reage as amostras com trifluoreto de bromo e mede o volume total do oxigênio liberado	UO ₂ ± x	3	0,008	"
McNeilly ⁽³⁷⁾	Equilibra a amostra para O/M = 2,00 em atmosfera de CO: CO ₂ de 10:1 à 850°C. Mede a variação de peso.	UO ₂ ± x, PuO ₂ - x, (U,Pu)O ₂ ± x	7	0,001	Amostras sinterizadas Não destrutivo
Maurice ⁽⁴¹⁾	"	"	2	0,001	Reduz as amostras a pó Destrutivo
Forlano ⁽¹⁷⁾ Shafer ⁽⁵⁵⁾	Transforma as amostras em U ₃ O ₈ aquecendo no ar à 900°C. Mede a variação de peso.	UO ₂ ± x	> 8	0,004	Destrutivo Necessário fazer correção para umidade
Shalgolsk ⁽⁵⁶⁾	Dissolve em ácido fosfórico, dilui com ácido sulfúrico e mede a concentração de U(VI) por polarografia comparativa	UO ₂ + x	3	0,0001	Destrutivo

continuação

9

Referência	Processo	Aplicação	Tempo para uma análise (horas)	Desvio padrão (Unid. O/U)	Comentários
Marken ⁽³⁹⁾	Para O/M > 2, reduz com CO à 850°C para O/M = 2,00. Atmosfera final CO:CO ₂ (10:1). Mede o volume de CO ₂ formado. Para O/M < 2, transforma inicialmente em O/M > 2, por oxidação com quantidade de oxigênio medida; e segue o procedimento para O/M > 2.	UO ₂ ± x, PuO ₂ - x, (U,Pu)O ₂ ± x	2	0,003 (O/M < 2) 0,002 (O/M > 2)	Destrutivo
Jones ⁽³⁰⁾	"	UO ₂ ± x, (U,Pu)O ₂ ± x	2	0,0005	"
Stromatt ⁽⁶¹⁾ Zittel ⁽⁶⁶⁾	Dissolve a amostra em ácido fosfórico e mede as concentrações de U(VI) e U-total por coulometria a potencial controlado	UO ₂ + x	2	0,0006	"
Baring ⁽⁵⁾	Idem, mede também Pu(IV) e Pu-total	UO ₂ + x, (U,Pu)O ₂ ± x	3	0,002	"
Burd ⁽¹⁰⁾ Kubota ⁽³²⁾	Dissolve a amostra em ácido fosfórico e mede a concentração de U(VI) por polarografia	UO ₂ + x	2	0,004 (O/U = 2,10) 0,03 (O/U = 2,67)	"
Engelsman ⁽¹³⁾ Tolk ⁽⁶²⁾	Dissolve em ácido fosfórico e mede volumetricamente as quantidades de U(VI) e U-total por titulação	UO ₂ + x	3	0,0001	Destrutivo

continuação

Referência	Processo	Aplicação	Tempo para uma análise (horas)	Desvio padrão (Unid. O/U)	Comentários
Federgrün ⁽¹⁵⁾	Dissolve em ácido fosfórico e mede volumetricamente as quantidades de U(IV), U-total e Th-total por titulação	$UO_2 + x$, $(U,Th)O_2 - x$	3	0,003	"
Tolk ⁽⁶³⁾	Dissolve em ácido fosfórico transformando o U-metálico em U(IV). Mede o H liberado por cromatografia gasosa	$UO_2 - x$	2	0,004	"
Drummond ⁽¹²⁾	Mede os parâmetros de rede cristalina por difração de Raios X	$(U,Pu)O_2 \pm x$	-	> 0,01	Mede somente a camada superficial. Destrutivo
Markin ⁽⁴⁰⁾ Ferro ⁽¹⁶⁾	Mede a força eletromotriz em pilha galvânica a 850°C	$UO_2 + x$	3	0,002	Não serve para medidas de rotina(30). Não destrutivo

^{16}N no espectro. Um monitor de fluxo de nêutrons, do tipo sugerido por Gilmore⁽²²⁾, é usado para normalizar as contagens da amostra, quanto às variações do fluxo de nêutrons durante cada irradiação, e entre diferentes irradiações.

As contagens da amostra são normalizadas dividindo-as pelas contagens do monitor que é irradiado e contado simultaneamente com a amostra. Com as contagens normalizadas (relação de contagens amostra/monitor) a relação O/U da amostra é obtida diretamente da curva de calibração do sistema, feita com a irradiação e contagem de amostras com relações O/U conhecidas.

2.1 – Dados Nucleares

As amostras de óxido de urânio são irradiadas e contadas em coelhos de alumínio. Os principais elementos que compõem o conjunto que é irradiado e contado são: alumínio, urânio, e oxigênio. Na Tabela II são apresentados alguns dados das reações mais importantes, para análise por ativação, destes elementos com nêutrons de 14 MeV.

Tabela II

Reações nucleares mais importantes, para análise por ativação, do alumínio, urânio e oxigênio com nêutrons de 14 MeV(14,29,58).

Reação	Isótopo alvo		Isótopo formado	
	abundância isotópica (%)	seção de choque (mb)	meia vida	energia dos gamas emitidos (KeV)
$^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$	99,76	40	7,14s	6128(69); 7117(5); 2750(1) e outros
$^{16}\text{O}(n,2n)^{15}\text{O}$	99,76	—	2,05m	β^+ 511(200)
$^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$	100	75	9,48m	844(72); 1014(28); 171(0,7)
$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	100	118	15,0h	1369(100); 2754(100); 3861(0,08)
$^{27}\text{Al}(n,2n)^{26\text{m}}\text{Al}$	100	< 0,17	6,4s	β^+ 511(200)
$^{235}\text{U}(n,p)^{235}\text{Pa}$	0,72	1,9	24m	320(100); 265(35); 165(30); 115(25); 75(5)
$^{235}\text{U}(n,2n)^{236}\text{U}$	0,72	650	$2,5 \times 10^6$ a	53(0,88); 121(0,23) e outros
$^{235}\text{U}(n,f)$ PF	0,72	2000	várias	vários
$^{238}\text{U}(n,2n)^{237}\text{U}$	99,27	800	6,75 d	59(35); 1011(27); 208(23); 97(17) e outros
$^{238}\text{U}(n,\alpha)^{235}\text{Th}$	99,27	1,5	6,9 m	418; 659; 727; 747; 932(7)
$^{238}\text{U}(n,3n)^{236}\text{U}$	99,27	700	$2,4 \times 10^6$ a	50(27)
$^{238}\text{U}(n,f)$ PF	99,27	1200	várias	vários

A energia limiar para a reação (n,p) com o ^{16}O é de 10,3 MeV⁽²⁹⁾ e o ^{16}N formado decai com uma meia vida de 7,14 s⁽⁷⁾, segundo o esquema de decaimento mostrado na Figura 1. Um espectro de altura de pulso de ^{16}N obtido com detector Ge(Li) é mostrado na Figura 2

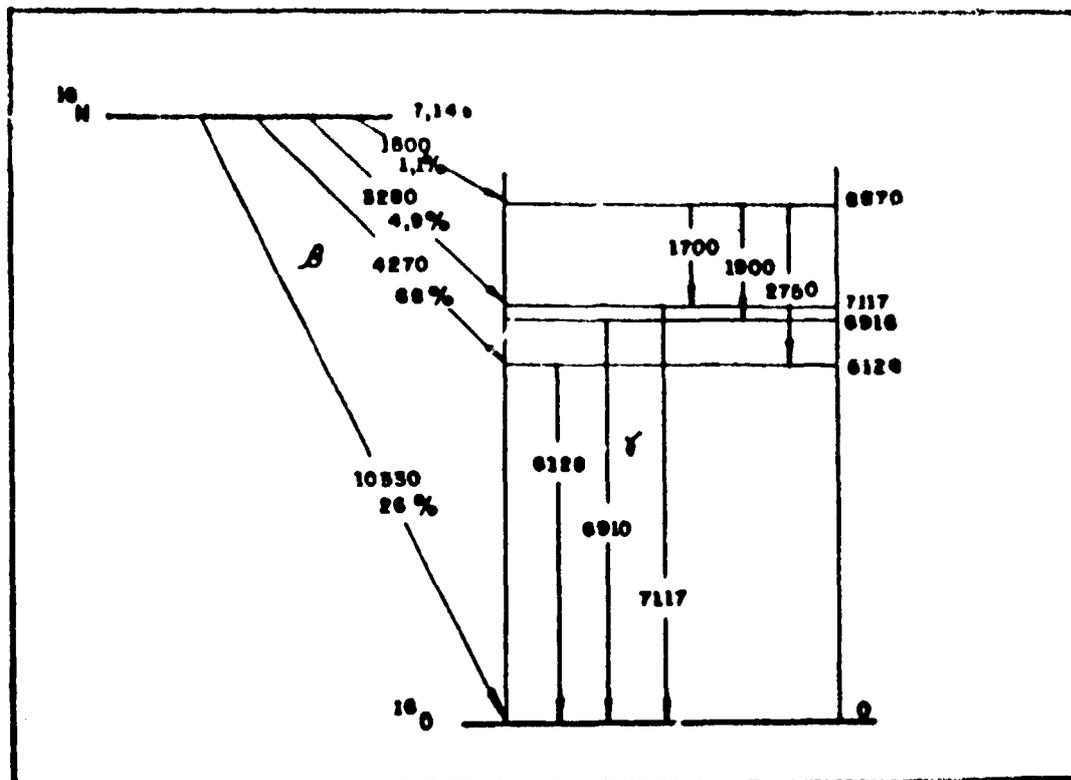


Figura 1 -- Esquema de decaimento do ^{16}N

A alta energia dos gamas emitidos no decaimento do ^{16}N torna sua separação dos demais relativamente simples. Na Tabela II pode-se ver que, excetuando os produtos de fissão e o próprio ^{16}N nenhum radioisótopo emite radiação gama com energia superior a 4 MeV. Produtos de fissão tais como: ^{90}Rb , ^{92}Rb , ^{142}Cs e ^{86}Br emitem gamas com energia superior a 4 MeV, embora nenhum deles tenha energia suficientemente próxima dos picos do ^{16}N , para provocar interferência⁽⁸⁾

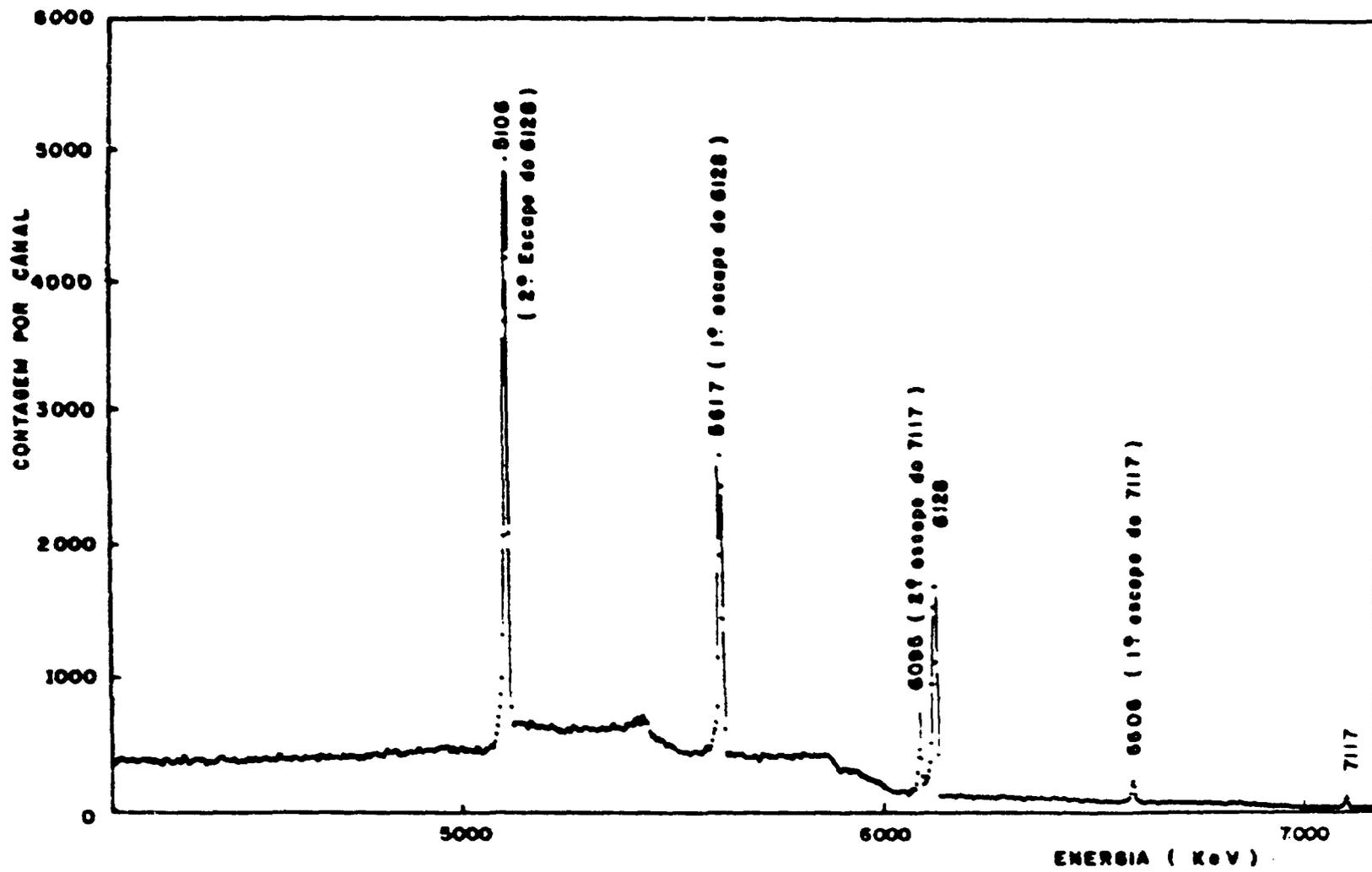


Figura 2 - Espectro de altura de pulso do ^{16}N com detector Ge(Li) obtido ativando-se uma amostra de lucite com nêutrons de 14 MeV

2.2 – Base Teórica

2.2.1 – Equação da Ativação. (Atividade da Amostra)

A equação diferencial para a produção do ^{16}N na amostra é dada por:

$$\frac{dN^*(t)}{dt} = N \cdot \sigma \cdot K_{1a} \cdot \phi_a(t) - \lambda \cdot N^*(t) \quad (2.1)$$

onde

$N^*(t)$ = Número de átomos de ^{16}N na amostra no instante t ;

N = Número de átomos de ^{16}O na amostra;

$\sigma = 40 \text{ mb} = 4 \times 10^{-22} \text{ cm}^2$ = Secção de choque da reação $^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$ para nêutrons de 14 MeV;

K_{1a} = Fator que leva em consideração a atenuação do fluxo de nêutrons na própria amostra;

$\phi_a(t)$ = Fluxo médio não atenuado na posição da amostra;

$$\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} = 9,71 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1} = \text{Constante de decaimento do } ^{16}\text{N}.$$

A solução desta equação, para a condição de concentração de ^{16}N nula no início da irradiação ($t=0$; $N^*(t)=0$) é:

$$N^*(t) = \frac{N \cdot K_{1a} \cdot \sigma \cdot \bar{\phi}_a(t)}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t}) \quad (2.2)$$

onde: $\bar{\phi}_a(t)$ é o fluxo equivalente que é definido como:

$$\bar{\phi}_a(t) = \frac{\int_0^t \phi_a(t') \cdot e^{-\lambda \cdot t'} \cdot dt'}{\int_0^t e^{-\lambda \cdot t'} \cdot dt'} \quad (2.3)$$

Em geral, nos aceleradores, o fluxo varia bastante durante as irradiações ou entre diferentes irradiações, por flutuação da corrente de íons ou por variação da posição do feixe de íons em relação ao alvo. No caso de fontes isotópicas como califórnio, amerício-berílio, ou mesmo em reatores em regime de operação estacionário, o fluxo pode ser considerado constante durante a irradiação. Nestes casos, o fluxo equivalente é igual ao fluxo convencionalmente definido.

O número de átomos de ^{16}O na amostra é dado por:

$$N = N_A \cdot m_o \cdot \theta / M_o \quad (2.4)$$

sendo:

$N_A = 6,023 \times 10^{23}$ = Número de Avogadro,

m_o = Massa de oxigênio na amostra (gramas);

$\theta = 0,9976$ = Abundância isotópica do ^{16}O ;

$M_o = 16$ = Massa atômica do oxigênio

No fim de um tempo de irradiação, T_i , a atividade da amostra é:

$$A_o = N^*(T_i) \cdot \lambda = m_o \cdot N_A \cdot \theta \cdot \sigma \cdot K_{T_e} \cdot \bar{\phi}_n(T_i) \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot T_i}) / M_o \quad (2.5)$$

No fim da irradiação o fluxo cai a zero, anulando o primeiro termo do segundo membro da Eq. 2.1. A atividade então decai exponencialmente com o tempo:

$$A(t'') = A_o \cdot e^{-\lambda t''}$$

onde

t'' = Tempo contado a partir do fim da irradiação.

2.2.2 – Contagem da Amostra

Após o fim da irradiação, a amostra é transferida pneumaticamente para a posição de contagem, junto ao detector. Para um intervalo de tempo, T_e , entre o fim da irradiação e o início da contagem, e um tempo de contagem T_c , o número de átomos de ^{16}N que decai durante a contagem é

$$C_o = \frac{A_o (e^{-\lambda \cdot T_e} - e^{-\lambda \cdot (T_e + T_c)})}{\lambda} \quad (2.6)$$

O número de contagens registrado neste intervalo será.

$$C_e = D \cdot K_{3e} \cdot E_e \quad (2.7)$$

onde:

$K_{3a} \cdot E_a = \eta =$ Eficiência global, ou seja, fração dos gamas contados por desintegração;

$K_{3a} =$ Fator de auto-absorção da radiação gama na amostra;

$E_a =$ Parte da eficiência que engloba todos os demais fatores: geometria, eficiência intrínseca do detector, partículas emitidas por decaimento, etc.

Juntando as Eqs. 2.5, 2.6 e 2.7 temos:

$$C_a = m_o \cdot N_a \cdot \theta \cdot \sigma \cdot K_{1a} \cdot \bar{\phi}_a \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot T_i}) \cdot (e^{-\lambda \cdot T_e} - e^{-\lambda \cdot (T_e + T_c)}) \cdot K_{3a} \cdot E_a / M_o \cdot \lambda \quad (2.8)$$

A determinação da massa de oxigênio na amostra poderia ser calculada por esta equação, se não fossem as dificuldades na determinação precisa de valores, tais como, fluxo de nêutrons, secção de choque, fatores de absorção de gamas e nêutrons, e eficiência. Em lugar disto, a contagem é normalizada para variações de fluxo, dividindo-a pela contagem do monitor, e a determinação da relação O/U é feita diretamente da curva de calibração.

2.2.3 – Contagem do Monitor

O monitor (Figura 3) consiste de uma amostra contendo oxigênio que é irradiada e contada simultaneamente com a amostra de óxido de urânio. Fica localizado no eixo do alvo e da amostra (Figura 4), ficando esta entre os dois. Analogamente às contagens da amostra, o número de contagens registradas pelo monitor, C_m , pode ser expresso por:

$$C_m = m_{om} \cdot N_a \cdot \theta \cdot \sigma \cdot K_{1m} \cdot \bar{\phi}_m \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot T_i}) \cdot (e^{-\lambda \cdot T_e} - e^{-\lambda \cdot (T_e + T_c)}) \cdot K_{3m} \cdot K_4 \cdot E_m / M_o \cdot \lambda \quad (2.9)$$

onde:

os índices m se referem ao monitor;

$K_4 =$ Fator de atenuação do fluxo de nêutrons na posição do monitor devido à amostra;

$K_{3m} =$ Fator de auto-absorção da radiação beta no monitor

2.2.4 – Normalização

A normalização das contagens da amostra para variações do fluxo é feita, dividindo estas, pelas contagens do monitor. A relação entre as contagens da amostra (Eq. 2.8) e as contagens do monitor (Eq. 2.9) fica:

$$\frac{C_a}{C_m} = \left(\frac{1}{m_{om}} \cdot \frac{E_a}{E_m} \cdot \frac{K_{1a}}{K_{1m}} \cdot \frac{K_{3a}}{K_{3m}} \cdot \frac{\bar{\phi}_a}{\bar{\phi}_m} \cdot \frac{1}{K_4} \right) \cdot m_o \quad (2.10)$$

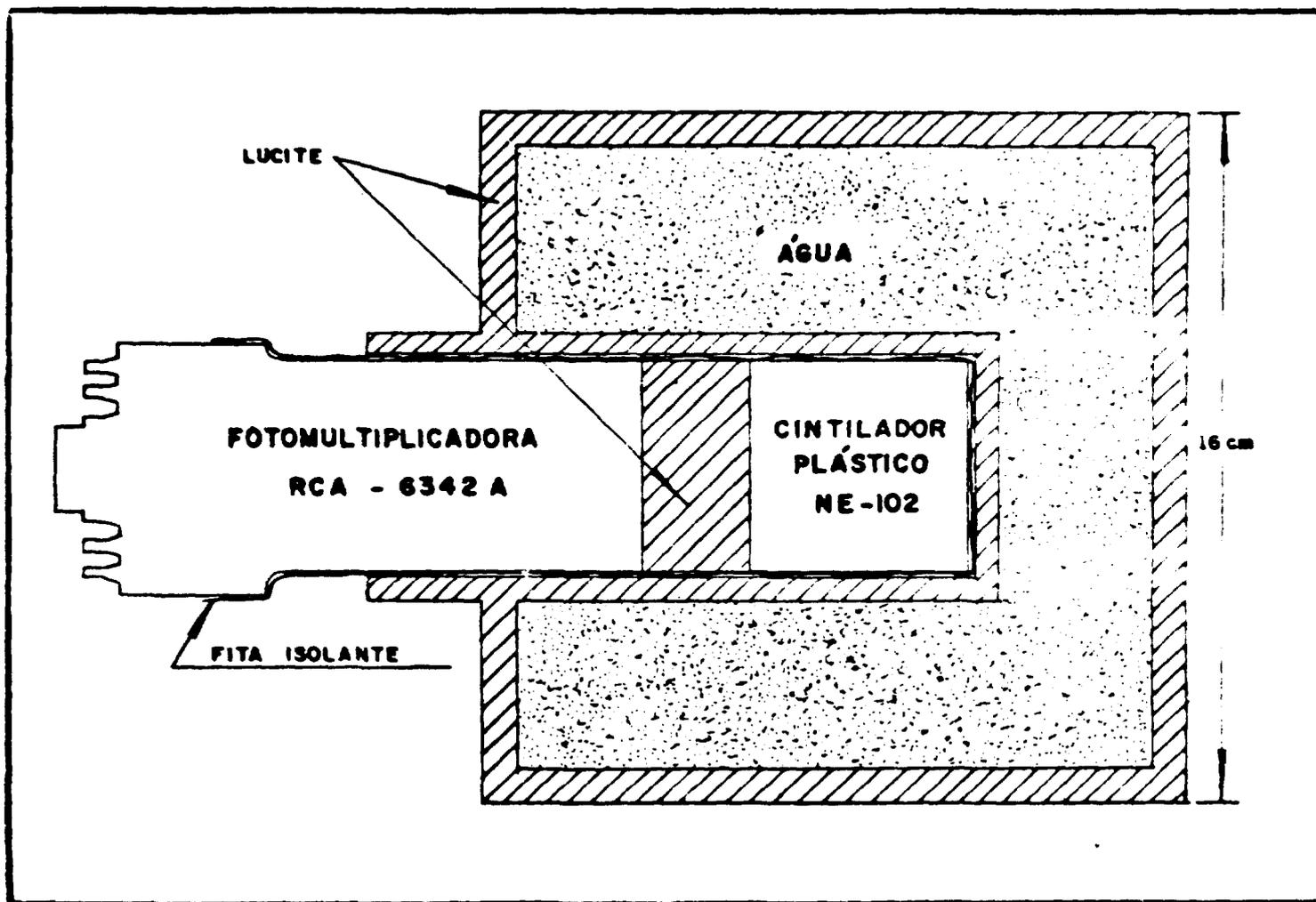


Figura 3 - Monitor do fluxo de nêutrons

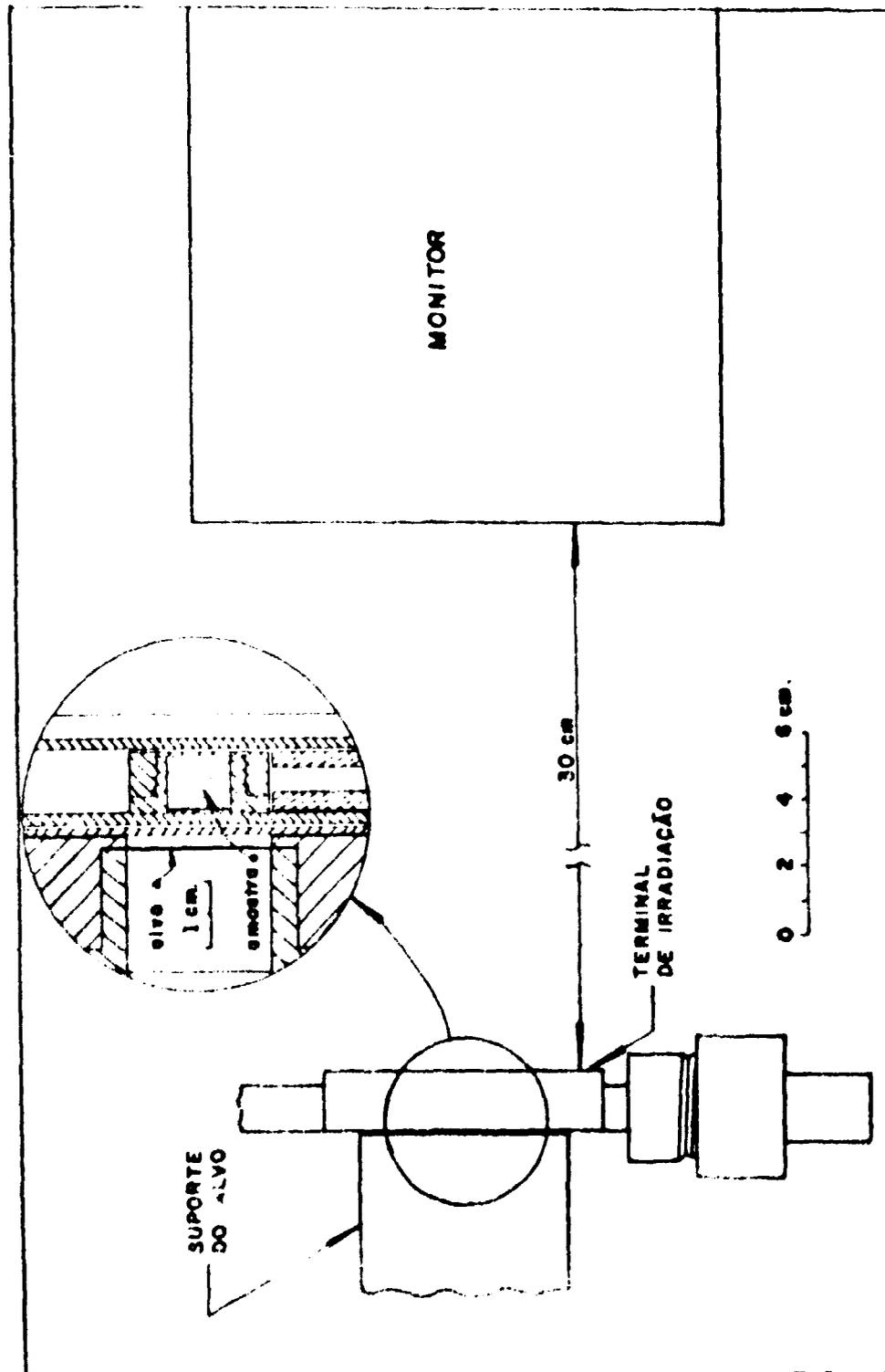


Figura 4 - Geometria de irradiação

Todos os fatores que aparecem entre parênteses na Eq. 2.10 podem ser considerados constantes, desde que as amostras utilizadas tenham as mesmas dimensões, densidade e composição semelhante. Podemos definir a constante de calibração do sistema, K , como sendo:

$$K = \frac{E_m \cdot K_{1m} \cdot K_{3m} \cdot \bar{\phi}_m}{E_a \cdot K_{1a} \cdot K_{3a} \cdot \bar{\phi}_a} \cdot K_4 \cdot m_{om} \quad (2.11)$$

Das Eqs. 2.10 e 2.11 temos:

$$m_o = K \cdot \frac{C_a}{C_m} \quad (2.12)$$

2.2.5 – Equação de Calibração

A relação O/U, R , é definida como sendo a relação entre o número de átomos de oxigênio e o número de átomos de urânio na amostra, e pode ser expressa como:

$$R = \frac{m_o/M_o}{m_u/M_u} = \frac{m_o}{m_u} = \frac{M_u}{M_o} \quad (2.13)$$

onde:

m_o = Massa de oxigênio na amostra (gramas);

m_u = Massa de urânio na amostra (gramas);

M_o = 16 = Massa atômica do oxigênio;

M_u = 238,07 = Massa atômica do urânio natural.

No caso de ser usado urânio enriquecido, a massa atômica do urânio pode ser calculada, desde que o enriquecimento seja conhecido.

A massa de urânio na amostra pode ser calculada da massa total, considerando que a amostra é composta somente de oxigênio e urânio. Isto é uma aproximação bastante razoável para os óxidos de urânio de pureza nuclear usados na fabricação de combustível para reatores. Podemos escrever então:

$$m = m_o + m_u \quad (2.14)$$

onde:

m = Massa da amostra (gramas).

Das Eqs. 2.12, 2.13 e 2.14 temos:

$$R = \frac{M_u}{M_o} \cdot \frac{1}{K \cdot C_a/C_m} \quad (2.15)$$

Esta é a equação de calibração do sistema. A relação O/U depende da massa da amostra, da relação de contagens amostra/monitor, das massas atômicas do oxigênio e do urânio, e da constante de calibração do sistema, K.

A constante de calibração do sistema, K, será obtida ajustando-se, por mínimos quadrados, as relações de contagens amostra/monitor, obtidas da irradiação e contagem de amostras com a relação O/U conhecida, com a equação de calibração.

3 – ARRANJO EXPERIMENTAL

3.1 – Descrição do Sistema

Um sistema de análise por ativação com nêutrons de 14 MeV foi montado, tendo em vista particularmente a análise do oxigênio em matrizes diversas. Este sistema é composto basicamente de uma fonte de nêutrons, um sistema de contagem da amostra, um sistema rápido de transferência, um monitor de fluxo de nêutrons e uma unidade controladora do ciclo de análise.

3.2 – Localização

O sistema de análise por ativação fica localizado no laboratório Van de Graaff, distribuído em duas salas, chamadas de: sala de controle e sala de irradiação e contagem. Na primeira temos o controle do acelerador, a unidade controladora do ciclo de análise, e os amplificadores, contadores e multicanal, dos sistemas de contagem da amostra e do monitor. Na segunda, ficam localizados: o acelerador, o monitor, o sistema de transferência de amostras e o detector. (Figura 5).

Na sala de controle, distante aproximadamente 30 m do acelerador Van de Graaff, a dose de nêutrons não ultrapassa significativamente a radiação de fundo.

3.3 – Fonte de Nêutrons

Aproximadamente 10^{10} nêutrons por segundo são conseguidos pela utilização de um acelerador Van de Graaff modelo PN-400 da High Voltage Engineering Corporation e alvos de trítio.

Neste acelerador, o gás D_2 é introduzido numa garrafa onde é ionizado por um oscilador de rádio frequência de 100 MHz. O plasma resultante é concentrado por um campo magnético e extraído da garrafa para o tubo de aceleração por meio de uma tensão positiva. O controle da corrente do feixe de íons é feito pelo ajuste desta tensão.

Os dêuterons são acelerados até uma energia máxima de 400 KV num campo elétrico formado no tubo de aceleração por um conjunto de 10 resistências de 1500 megaohms, ligadas em série entre o terminal de alta tensão e a terra, através dos anéis de aceleração. Ao atingir o alvo trítio, os dêuterons produzem nêutrons de 14 MeV, de maneira quase isotrópica, através da reação ${}^3\text{H}(d,n){}^4\text{He}$.

Ajustando-se a tensão do primeiro anel da aceleração é possível variar o diâmetro do feixe de dêuterons desde aproximadamente 2 mm até um diâmetro muito superior ao diâmetro útil do alvo (22 mm).

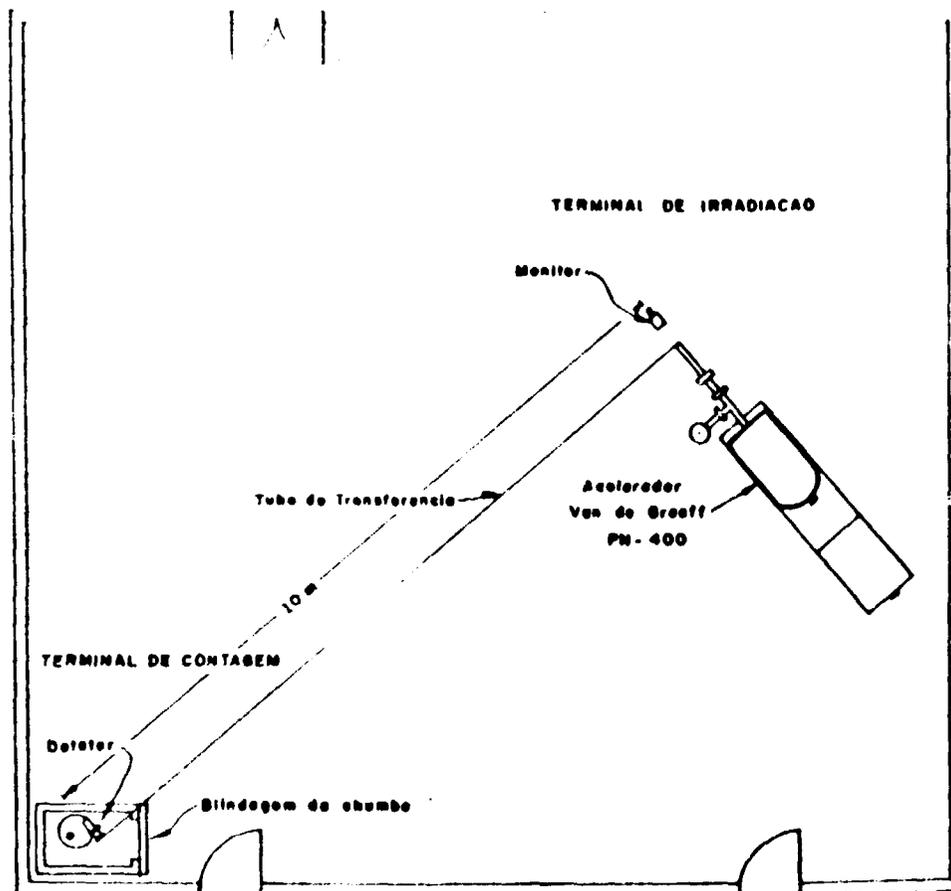


Figura 6 – Disposição dos elementos do sistema de análise por ativação com nêutrons de 14 MeV, na sala de irradiação e contagem

O alvo utilizado foi fabricado pela Amershan, tipo TRT 101, que consiste de uma fina camada de titânio de 25 mm de diâmetro, impregnada com 11 Ci de trítio, sobre uma base de cobre eletrolítico de 28,5 mm de diâmetro por 0,3 mm de espessura. Na Figura 4 vemos o suporte do alvo utilizado, que foi construído para minimizar a separação entre o alvo e a amostra. Nas condições máximas de corrente de íons e de tensão de aceleração, respectivamente 150 μA e 400 KV, o fluxo de nêutrons na posição da amostra é da ordem de $2 \times 10^9 \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$.

Para definir com precisão a saída de nêutrons durante o intervalo de irradiação, foi construído um interruptor mecânico para o feixe de deuteron. Comandado pela unidade controladora do ciclo de análise, o interruptor é aberto durante o intervalo de irradiação, permitindo o feixe atingir o alvo. O tempo de resposta do interruptor para o fechamento, medido com o auxílio da unidade "multi-scaler", é de 64 ms, o que provoca uma irradiação mais longa no monitor do que na amostra. A simultaneidade na irradiação é conseguida, retardando a saída da amostra da posição de irradiação de 90 ms.

Fora do intervalo de irradiação, a alta tensão do acelerador é baixada para evitar a produção de nêutrons por reação ${}^2\text{H}(d,n){}^3\text{He}$ na lâmina do interruptor e o excessivo aquecimento desta. A energia máxima dos nêutrons produzidos por esta reação é de 3,37 MeV, não afetando a produção do ${}^{14}\text{N}$, já que o limiar da reação ${}^{14}\text{O}(n,p){}^{14}\text{N}$ é de 10,3 MeV; mas, estes nêutrons produziram interferência nas contagens do monitor, por meio de prótons.

3.4 – Sistema Rápido de Transferência de Amostras

Um sistema de transporte pneumático foi construído com tubos de alumínio de secção retangular, com dimensões internas de 9,7 x 22,5 mm, para transferir a amostra entre os terminais de irradiação e contagem. As amostras são colocadas em coelhos de alumínio cilíndricos, com dimensões externas de 9,4 x 22,1 mm de diâmetro (Figura 6). A tolerância na altura dos coelhos é de $\pm 0,025$ mm para evitar o problema das amostras provocarem excessivo desgaste no tubo e manter mínima a folga axial da amostra nos terminais de irradiação e contagem.

As amostras são impelidas em tempo da ordem de 0,5 s por jato de nitrogênio a uma precisão de 2 atmosferas. A saída da amostra do terminal de irradiação é retardada de 90 ms, colocando-se em paralelo com o selenóide da válvula, um condensador de 25×10^{-3} F.

Os terminais de irradiação e contagem (Figura 7) foram construídos com o mesmo tubo de alumínio. A amostra pode ser trocada em qualquer um dos dois terminais, mas isto é normalmente feito no terminal de contagem.

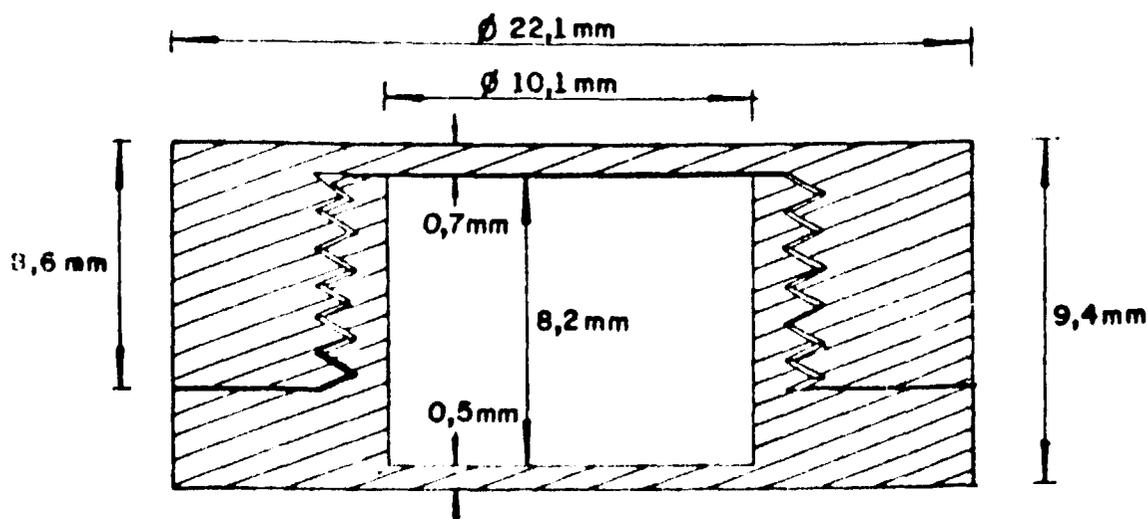


Figura 6 – Coelho de alumínio utilizado nas irradiações de amostras de UO_2

3.5 – Sistemas de Contagem

Após a irradiação, a amostra é transferida para o terminal de contagem, que fica, juntamente com o detetor, dentro de uma blindagem de chumbo de 10 cm de parede. Esta blindagem é revestida internamente com cobre para diminuir o nível de radiação retro-espalhada nas paredes, e está situada a aproximadamente 10 m do terminal de irradiação. A contagem da amostra é feita com o detetor $Ge(Li)$ de 36 cm^3 , cujos pulsos de saída, após serem pré-amplificados, são enviados para a sala de controle. Nesta sala, os pulsos são amplificados e o espectro de altura de pulso é obtido com um analisador de 1024 canais. Um esquema do sistema eletrônico de contagem é visto na Figura 8.

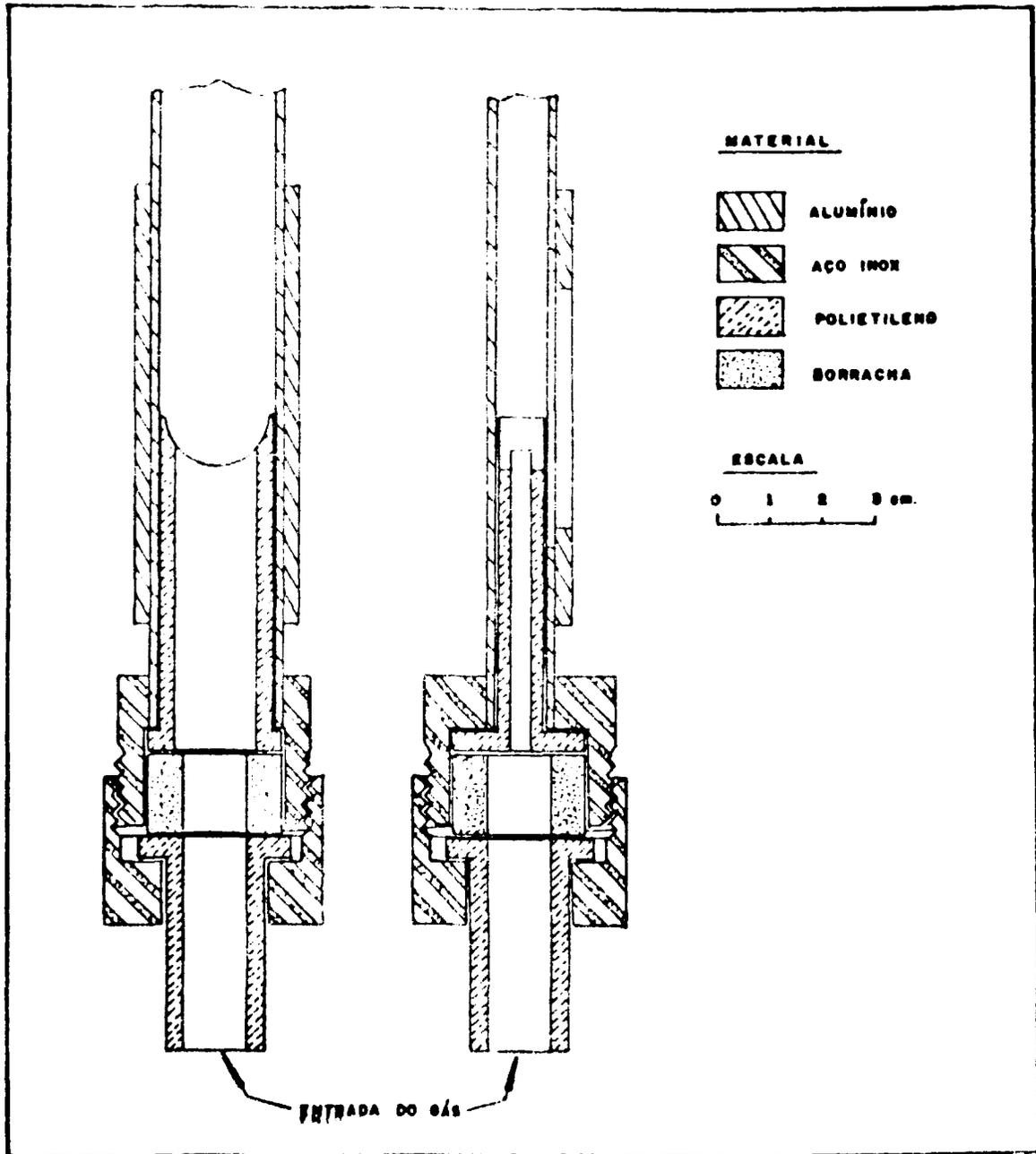


Figura 7 - Terminal do tubo pneumático de transferência de amostras

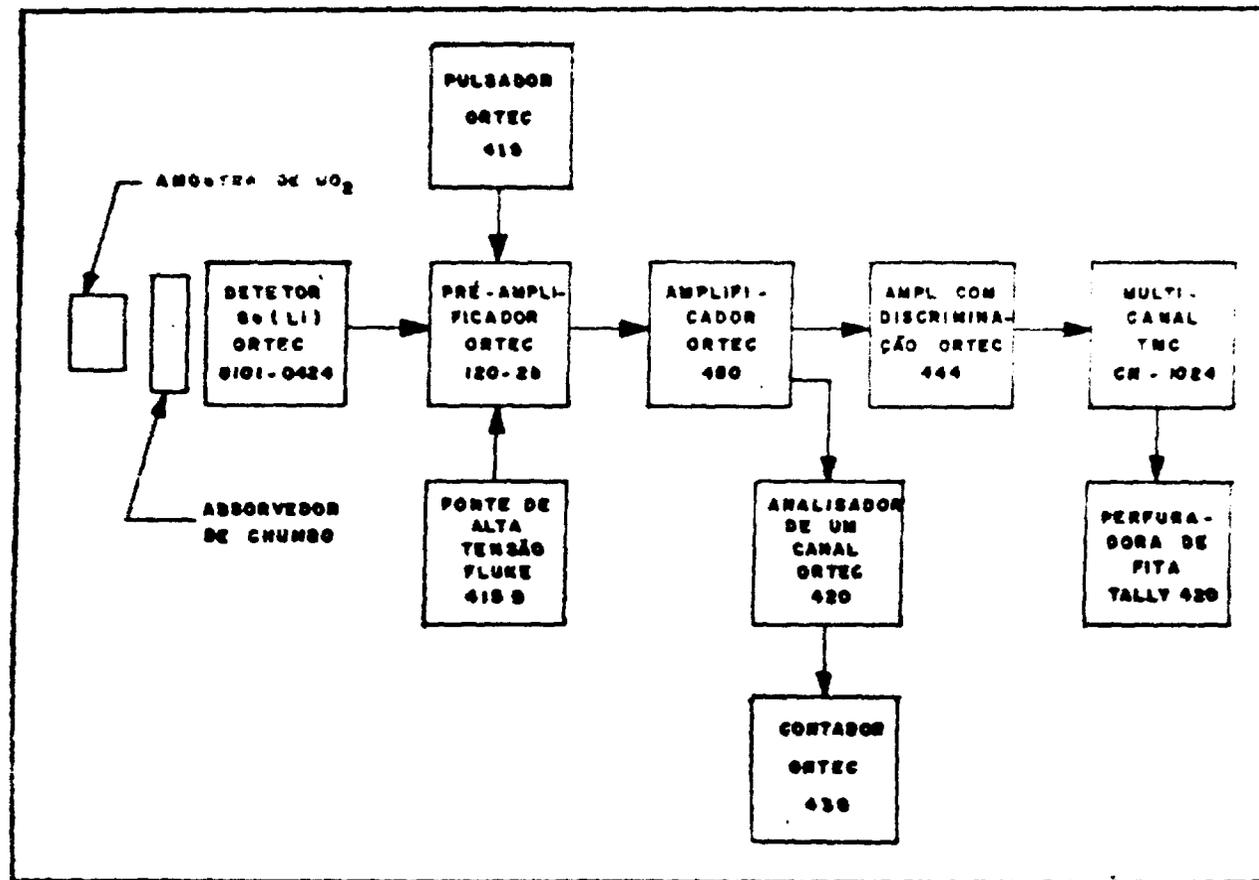


Figura B - Esquema do Sistema de Contagem da amostra

Para se obter uma boa sensibilidade na determinação dos gamas do ^{16}N seria interessante irradiar a amostra no maior fluxo disponível e fazer a contagem com esta bem próxima do detector, aumentando-se a eficiência de contagem. Nestas condições, a grande atividade da amostra após a irradiação, proveniente dos produtos de fissão rápida do ^{235}U , provocaria saturação do sistema de contagem e completa deformação do espectro de altura de pulso, por superposição de pulsos "pile-up"). Um absorvedor de chumbo, entre a amostra e o detector, foi usado para melhorar a relação entre os gamas do ^{16}N e os demais, já que a grande atividade produzida pelo urânio é na região de baixa energia (Figura 9), sendo portanto mais atenuada do que os gamas do ^{16}N . Uma atenuação adicional foi conseguida invertendo-se a posição relativa da amostra entre a irradiação e a contagem, ou seja, a face da amostra que fica voltada para o detector durante a contagem é aquela que ficou na posição mais distante do alvo durante a irradiação. Detalhes do terminal de contagem aparecem na Figura 10.

A determinação do número de contagens do ^{16}N na amostra é feita separando-se os picos de 6,128 MeV (1º escape) e 5,617 MeV (1º escape) e 5,106 MeV (2º escape) do espectro de altura de pulso da amostra.

O detector Ge(Li) de 35 cm³ usado foi um ORTEC modelo 8101-0424 com eficiência de 5,2% em relação à do NaI(Tl) de 3" x 3" para o pico de 1,33 MeV do ^{60}Co . A resolução para este mesmo pico é de 2,3 KeV. O pré-amplificador ORTEC modelo 120-2B tem em FET de entrada e acoplamento direto ("DC coupled"). Este pré-amplificador fica saturado para taxas de contagem superiores a 45.000 MeV.s⁻¹. Valores 5 ou mais vezes superiores a este podem ser obtidos pela troca de resistência de realimentação, sem aumento excessivo do nível de ruído, como sugerido no manual do aparelho. Embora esta máxima capacidade de contagem, relativamente pequena, tenha sido a maior responsável pela limitação de precisão do método, a resistência não foi trocada por falta de equipamento necessário.

O amplificador usado foi um ORTEC modelo 450, com forma de pulso aproximadamente Gaussiana e com constante de tempo e restauração da linha de base ajustáveis. As condições de operação foram escolhidas a partir de experiências onde se fez a medida da resolução para diferentes valores da constante de tempo e da restauração da linha de base, com diferentes taxas de contagens. O gráfico da Figura 11 sumariza os resultados destas experiências.

O amplificador com discriminação, "Biased Amplifier" ORTEC modelo 444, foi usado com a finalidade de colocar no multicanal somente a parte do espectro com energias de 5 à 6,2 MeV, onde estão os picos de interesse. Isto faz com que a taxa de contagem registrada pelo multicanal seja pequena, tornando desprezível o seu tempo morto. O circuito automático de rejeição de pulsos superpostos ("Automatic pile-up rejector") do amplificador elimina grande parte da distorção do espectro causada pela superposição de pulsos que ocorra para altas taxas de contagens.

O multicanal usado foi da Technical Measurement Corporation modelo CN-1024 de 1024 canais com unidade de altura de pulso modelo TMC-213. A saída do espectro é feita em fita perfurada com uma perfuradora Tally modelo 420, com capacidade de perfuração de 60 caracteres por segundo.

Na Figura 12 é mostrado o decaimento no tempo da taxa de contagem entre as energias 4,5 e 7 MeV, de uma amostra de urânio metálico irradiada durante 10 s. Pode-se ver que durante um intervalo de 30 s, começando 2 segundos depois do final da irradiação, a taxa de contagem varia de um fator aproximadamente 10, provocando variação de ganho e resolução no sistema de contagem durante este intervalo. Para evitar a mistura de espectros com características diferentes, foi construído um seletor de área de memória do multicanal que, sob comando da unidade controladora do ciclo de análise, divide o intervalo de contagens em 2, 4 ou 8 partes armazenando os espectros obtidos nestes intervalos em diferentes áreas da memória do analisador multicanal. Evidentemente, quanto maior for o número de intervalos, menor será o número de canais disponíveis para cada espectro.

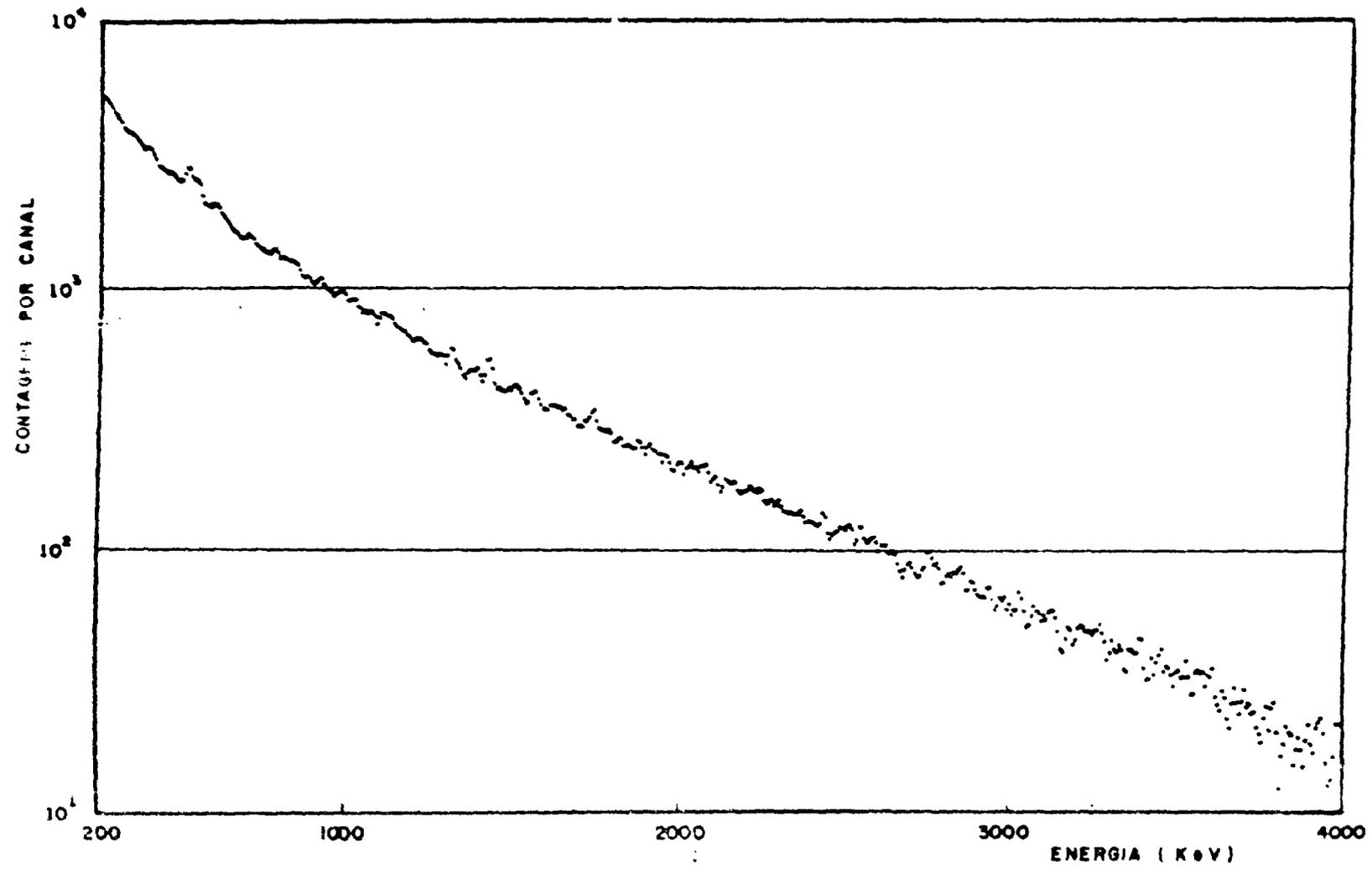


Figura 9 - Espectro de altura de pulso obtido com detector de Ge(Li) de amostra de urânio metálico irradiado durante 15 s. com nêutrons de 14 MeV.

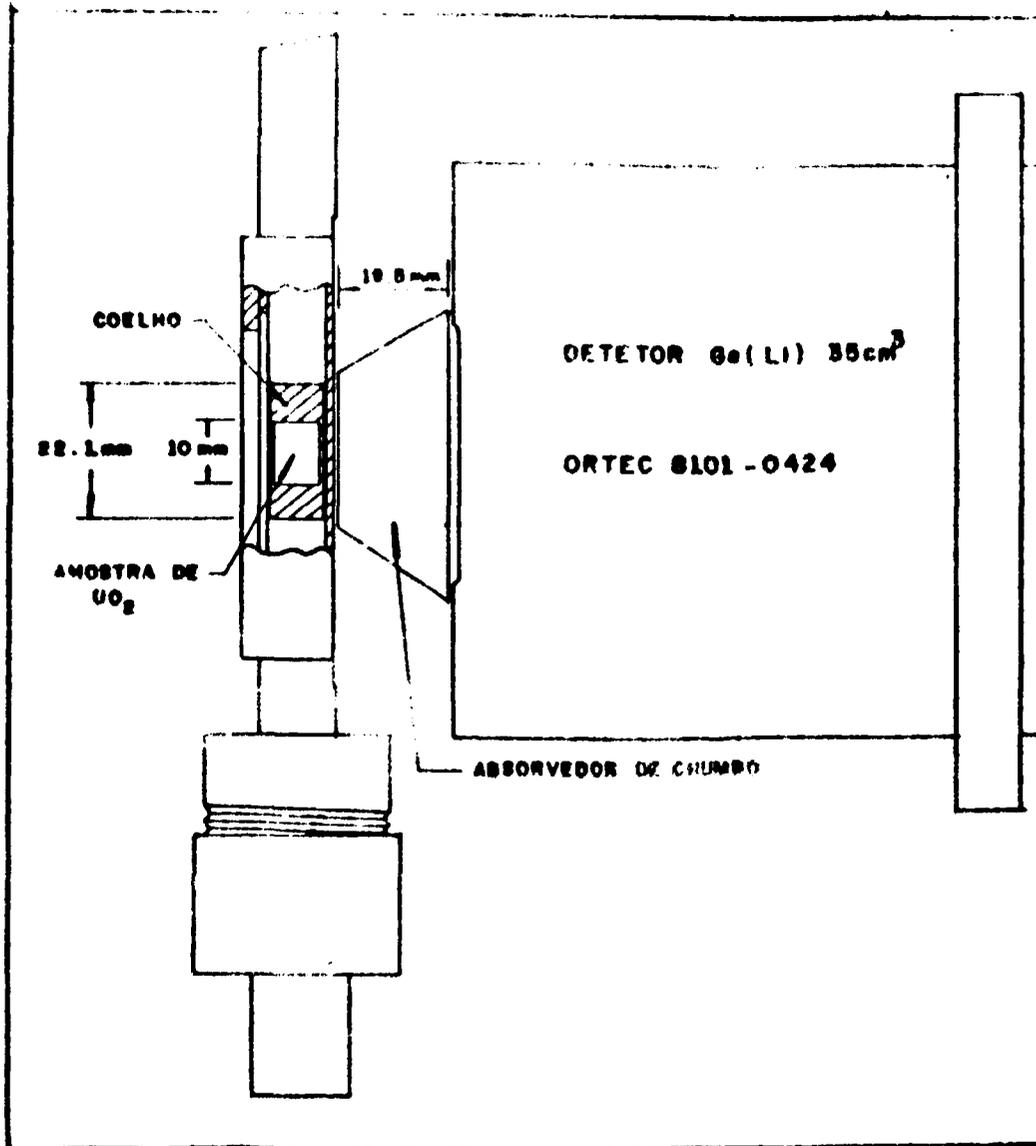


Figura 10 -- Geometria de montagem

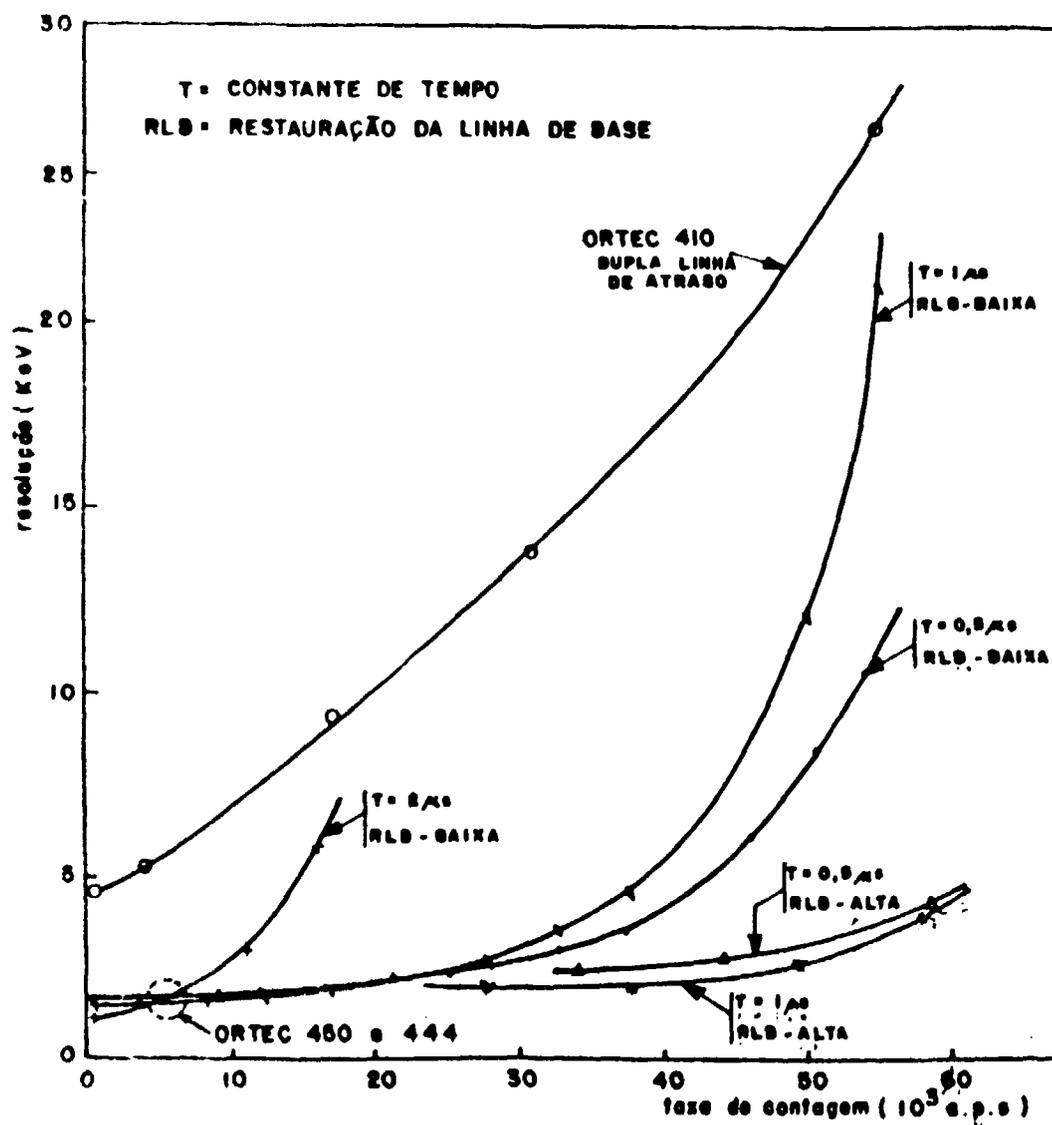


Figura 11 Resolução do pulsador, com amplitude equivalente à energia de 6,13 MeV, em função da taxa de contagem acima de 200 KeV dada por uma fonte de ^{137}Cs .

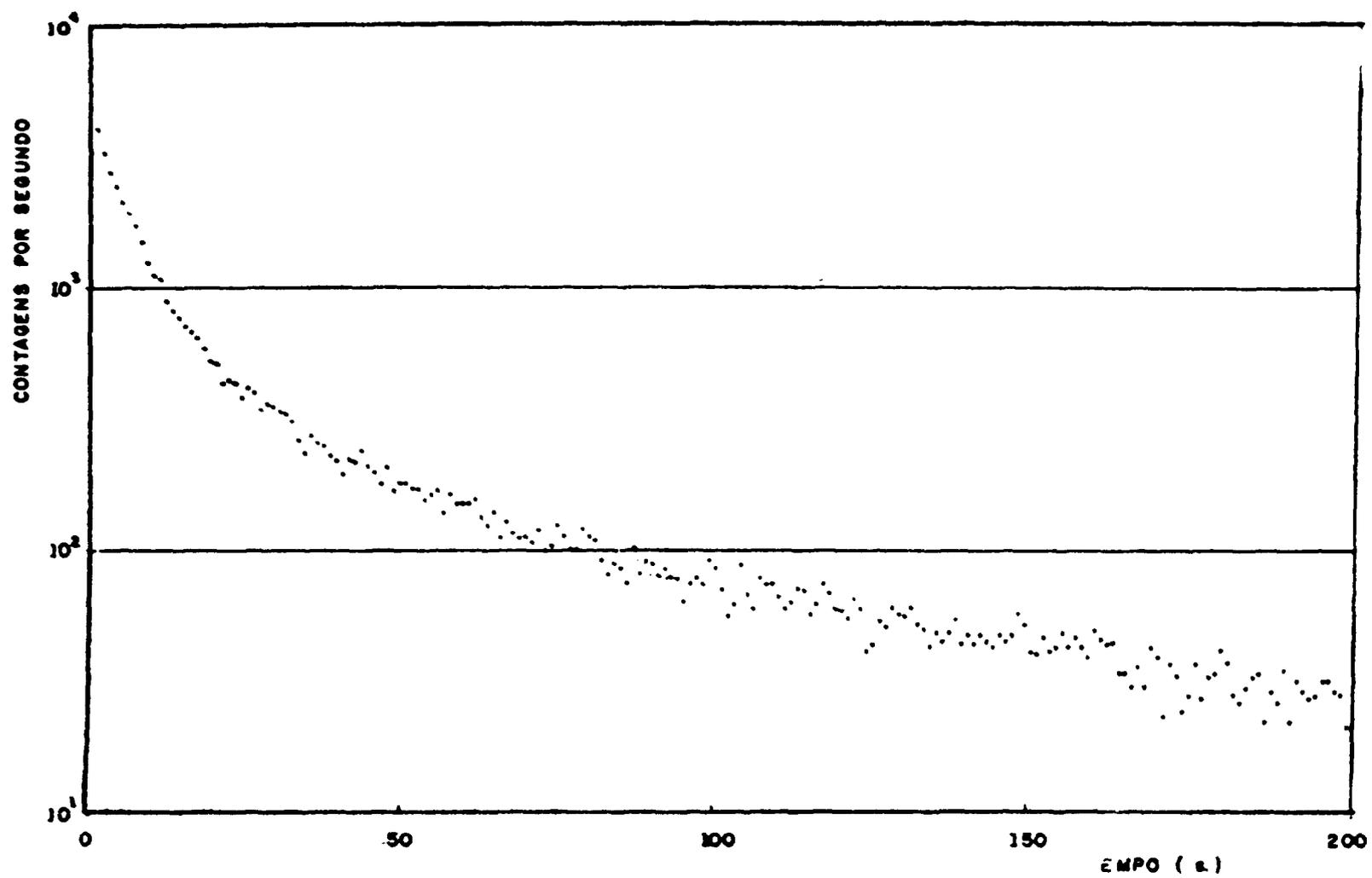


Figura 12 — Decaimento da atividade com energia entre 4,5 e 7,0 MeV de amostra de urânio metálico irradiada com nêutrons de 14 MeV

3.6 - Monitor do Fluxo de Nêutrons

O fluxo de nêutrons produzidos por aceleradores de partículas como o usado, pode variar bastante durante o período de uma irradiação, principalmente por flutuações da corrente de íons e da posição do alvo atingida por estes íons. Para um tempo de irradiação da mesma ordem ou maior que a meia vida do radioisótopo formado, pode-se incorrer em erros significativos, se a normalização do fluxo é feita pelo método do fluxo integrado.

O monitor usado para normalizar as contagens da amostra para variação do fluxo de nêutrons durante a irradiação e entre diferentes irradiações é semelhante ao proposto por Gilmore⁽²²⁾. Consiste num envoltório contendo oxigênio, água, lucite, este com 33% de oxigênio) em torno de um cintilador plástico NE-102 (Figura 3). O cintilador é acoplado opticamente a uma fotomultiplicadora através de uma polegada de lucite que serve para blindar o detetor contra os betas provenientes de elementos da fotomultiplicadora, ativados pelos nêutrons durante a irradiação. O sinal da fotomultiplicadora é pré-amplificado e enviado para a sala de controle onde ficam os demais componentes do sistema de contagens do monitor (Figura 13).

O monitor fica localizado no mesmo eixo do alvo e da amostra ficando esta entre os dois (Figura 4). Desde que o oxigênio contido na água e no lucite do monitor é irradiado simultaneamente com a amostra, a relação das atividades do ^{16}N na amostra e no monitor no final da irradiação é independente das flutuações do fluxo de nêutrons. O detetor NE-102 mede os betas de 10,3 MeV emitidos no decaimento do ^{16}N , simultaneamente com a contagem da amostra. A simultaneidade na irradiação e na contagem da amostra e do monitor, faz com que a relação de contagens fique também independente dos tempos de irradiação, de espera para a contagem, e de contagem.

A alta tensão de alimentação da fotomultiplicadora é reduzida durante a irradiação para evitar variações de ganho causadas pela alta taxa de contagens dos prótons de recuo neste intervalo. Uma experiência feita com uma fonte de ^{60}Co e a unidade "multi-scaler" do multicanal mostrou que, quando se corta totalmente a alta tensão da fotomultiplicadora durante a irradiação, como sugerido por Gilmore⁽²²⁾, o tempo de estabilização da fotomultiplicadora é de 2,9 s após a alta tensão ser religada. Em vez disso, a alta tensão da fotomultiplicadora foi reduzida durante a irradiação pela introdução de uma resistência de 1,5 megahoms no circuito, o que diminuiu o tempo de estabilização para 0,9 s. É necessário utilizar um tempo de espera para a contagem, maior do que o tempo de estabilização.

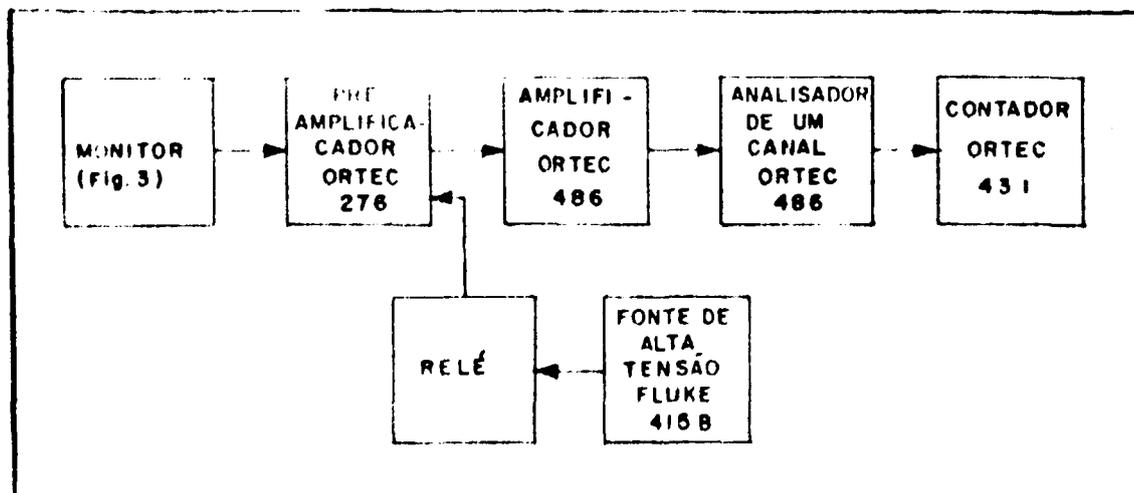


Figura 13 - Esquema do sistema de contagem do monitor

3.7 -- Unidade Controladora do Ciclo de Análise

A unidade "Rapid Transfer Electronic Control Programmer" modelo 961 da Texas Nuclear possibilitou a automatização da maioria das partes do ciclo de análise. Esta unidade é um gerador sequencial de intervalos de tempo, especializado para operações de análise por ativação usando transferência pneumática. Na Figura 14 é mostrado um esquema completo do sistema de análise por ativação onde pode-se notar a interligação da unidade controladora com os demais componentes do sistema. Os tempos das diferentes funções do ciclo podem ser selecionados no painel da unidade dentro dos valores indicados na página seguinte:

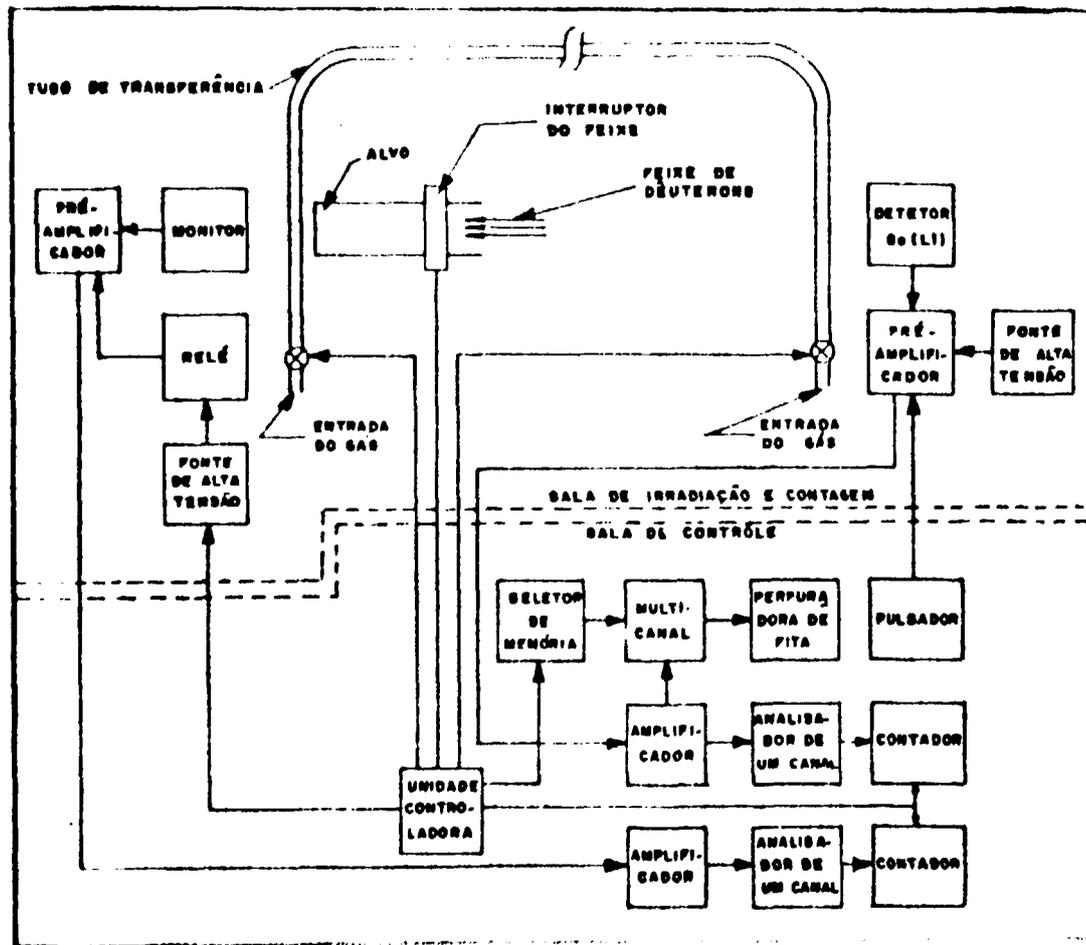


Figura 14 - Esquema do sistema de análise por ativação

-- Trânsito para o alvo	0,1 à 9,9 s;
Irradiação	1 à 9999 s;
-- Trânsito para o detetor	0,1 à 9,9 s;
-- espera para a contagem	0,1 à 99,9 s (a contar do final da irradiação);
Contagem	1 à 9999 s.

Segundo as especificações, os tempos de todas as funções são corretos dentro de uma tolerância de 5 ms, com exceção do tempo de trânsito para o alvo que tem uma tolerância de 20 ms.

3.8 -- Operação do Sistema

No início da operação do sistema, o acelerador é ligado e colocado em condições normais de funcionamento. A seguir, a tensão do acelerador é baixada e a amostra a ser analisada é colocada manualmente no terminal de contagem. O início do ciclo é feito elevando-se a tensão de aceleração e apertando-se o botão de partida na unidade controladora do ciclo de análise. A partir deste instante, esta unidade realiza a operação sequencial das diferentes funções de acordo com os tempos selecionados no painel. A seguir, damos uma descrição da seqüência de operação com os tempos normalmente usados, contados a partir do instante que o botão de partida for pressionado:

- 0 à 1 s Trânsito para o alvo: A válvula de gás (nitrogênio) é aberta fazendo a transferência da amostra para o terminal de irradiação;
- 1 à 16 s Irradiação: O interruptor mecânico do feixe de dêuterons fica aberto durante este intervalo permitindo a produção de nêutrons para a irradiação da amostra e do monitor. A alta tensão da fotomultiplicadora fica reduzida durante este intervalo;
- 16 à 17 s Trânsito para o alvo: A válvula de gás do terminal de irradiação é aberta com 90 ms de retardo, transferindo a amostra de volta para o detetor. O valor normal da alimentação de alta tensão da fotomultiplicadora do monitor é restabelecido;
- 16 à 18 s Espera para a contagem: Este tempo de espera é usado para permitir a transferência da amostra, estabilização do sistema de contagem do monitor e o decaimento de possíveis interferências de meia vida curta;
- 18 à 48 s Contagem: Os sistemas de contagens da amostra e do monitor são postos em funcionamento.

Este ciclo é normalmente repetido 16 vezes acumulando-se as contagens da amostra e do monitor para melhorar a estatística de contagem. No final dos 16 ciclos, a fita perfurada é retirada com o espectro da amostra para posterior processamento no computador HP 2116C com o programa AREAN-16 (Ver Apêndice). As contagens do monitor são anotadas no contador.

Como foi dito anteriormente, durante os ciclos, a tensão de aceleração é controlada manualmente, sendo elevada para seu valor normal no início do ciclo e baixada logo após o final da irradiação, para evitar que a produção de nêutrons por reação ${}^2\text{H}(d,n){}^3\text{He}$ na lâmina do interruptor interfira nas contagens da amostra e principalmente nas contagens do monitor.

4 – ANÁLISE DOS ERROS

Várias causas diferentes podem provocar erros na determinação da relação O/U. Para facilitar a análise destas causas, vamos tomar como base a Ed. 2.15 (item 2,2,5) aqui repetida, que é expressão da relação O/U, calculada no capítulo 2.

$$R = \frac{M_u}{M_o} \cdot \frac{1}{K \cdot C_a / C_m} \quad (\text{Eq. 2.15})$$

As massas atômicas do urânio (M_u) e do oxigênio (M_o) podem ser encontradas em tabelas, com precisão bastante boa. Os erros na relação O/U podem ser agrupados em erros relacionados com:

- a) a determinação da massa da amostra (m);
- b) a determinação das contagens (C_a , C_m);
- c) a normalização do fluxo de nêutrons (K).

4.1 – Erros na Determinação da Massa da Amostra

As amostras de UO_2 , com massa da ordem de 3,3 gramas, foram pesadas numa balança Mettler modelo M5SA que mede até microgramas. A massa das amostras foi medida antes e depois das irradiações, da maneira descrita no ítem 5.7, e o valor tomado foi a média das duas determinações. A maior diferença encontrada entre as duas determinações foi de 0,53 miligramas. Supondo que o erro máximo na determinação da massa seja a metade desta diferença, o erro máximo correspondente na relação O/U será de 0,0002 unidades de O/U.

4.2 – Erros na Determinação das Contagens

Vamos dividir estes erros em três tipos:

- a) os erros relacionados com as interferências diretas;
- b) os erros relacionados com as interferências indiretas;
- c) os erros relacionados com a natureza estatística da desintegração radioativa.

Os erros nas contagens, relacionados com as variações da geometria e das eficiências de contagem, serão englobados nos erros de normalização.

4.2.1 – Interferência Direta

A determinação das contagens da amostra foi feita pela separação dos picos do ^{16}N do espectro de altura de pulso da radiação gama emitida pela amostra irradiada. Os picos com energia de 6,13, 5,62 (1º escape) e 5,11 MeV (2º escape) foram isolados do espectro, fazendo-se o ajuste por mínimos quadrados, a estes, de uma gaussiana mais uma reta. O número de contagens foi obtido pela soma das áreas das gaussianas, ajustadas aos três picos.

Como foi visto na Tabela II dos isótopos formados nas principais reações dos elementos da amostra e do coelho, só os produtos de fissão do ^{235}U e do ^{238}U podem emitir radiação gama com energia superior a 5 MeV. Entretanto, não foi encontrado na literatura, nenhum produto de fissão, que emitisse radiação gama com energia suficientemente próxima dos picos do ^{16}N para causar interferência.

As contagens do ^{16}N no monitor, são obtidas, pela medida da radiação beta de 10,3 MeV emitida em 26% dos decaimentos do ^{16}N . O monitor foi construído de modo que as partes de água e lucite (Figura 3), que servem como materiais contendo oxigênio, sirvam também como blindagem para as radiações beta do ambiente e da própria fotomultiplicadora. Como o cintilador plástico NE-102 é muito pouco sensível às radiações gama, as possibilidades de interferências restringem-se às emissões beta dos produtos da ativação dos elementos da graxa de silicone usada no acoplamento óptico, da camada de fita isolante que fixa o cintilador e evita a entrada de luz para a fotomultiplicadora, e das impurezas no lucite e na água.

Para a escolha das condições de operação do sistema de contagem do monitor foram feitas determinações da curva de decaimento temporal das contagens do monitor para diversos níveis de discriminação (Ver item 5.1.2). No nível escolhido, 3V, o ajuste de uma exponencial, à curva de decaimento, forneceu uma constante de decaimento que não difere significativamente da fornecida pelo ^{16}N , mesmo quando foram retirados os canais iniciais referentes às três primeiras meias vidas. Isto indica que não existe interferência direta no monitor.

4.2.2 – Interferência Indireta

Quaisquer elementos que forneçam uma taxa de contagem excessivamente alta, podem causar interferência indireta por superposição de pulsos e aumento de tempo morto.

Na superposição de pulsos, dois ou mais pulsos de amplitude menor que a do ^{16}N podem se sobrepôr, resultando num pulso de amplitude maior, podendo coincidir com os picos do ^{16}N . Este efeito é pouco importante porque os pulsos superpostos formam um espectro contínuo que é eliminado quando a área dos picos do ^{16}N é calculada. Outro efeito bastante importante é a perda de pulsos dos picos por superposição destes, com outros, resultando num pulso de amplitude diferente.

A importância deste tipo de interferência depende da taxa de contagem e da forma de pulso utilizado, ou seja, é maior quanto maior for a taxa de contagem e o tempo de duração do pulso até retornar à linha de base. A utilização de amplificadores com forma de pulso gaussiana, com restauração de linha de base e com pequena constante de tempo, como os utilizados, é importante para diminuir esta interferência. Além disto, no sistema de contagem da amostra foi utilizado um amplificador com discriminação e com circuito automático de rejeição de pulsos superpostos, que essencialmente elimina este tipo de interferência embora aumente o tempo morto do sistema.

A utilização do amplificador com discriminação ("biased amplifier") no sistema de contagem da amostra, permite colocar no multicanal, somente a faixa do espectro que contém os picos de interesse, tornando desprezível o tempo morto do multicanal. O tempo morto, introduzido pelo circuito automático de rejeição de pulsos superpostos, é de aproximadamente 0,8% durante os 30 s de contagem. O erro decorrente deste tempo é desprezível porque além deste tempo ser pequeno, varia pouco nas diferentes irradiações.

No sistema de contagem do monitor, foi utilizado um amplificador analisador com forma de pulso semi-gaussiana e constante de tempo de 0,5 μs . Nestas condições, o efeito de interferência indireta fica desprezível, já que a análise da curva de decaimento do monitor mostrou que, mesmo com taxa de contagem cinco vezes maior que a normal, a curva não apresenta efeitos de superposição de pulsos. (Ver item 5.2)

4.2.3 – Erros Associados à Natureza Estatística da Desintegração Radioativa

O processo de desintegração radioativa é tal que o número de desintegrações que ocorre num determinado intervalo de tempo t segue uma distribuição binomial. O desvio padrão do número de desintegrações neste intervalo é dado na Referência⁽¹⁹⁾:

$$\sigma = \sqrt{\bar{m} \cdot \exp(-\lambda t)} \quad (4.3)$$

onde:

\bar{m} – é o valor esperado (ou esperança) do número de desintegrações no intervalo de tempo t ;

λ – constante de decaimento do isótopo estudado.

O número de contagens obtido é proporcional ao número de desintegrações, sendo a eficiência global η a constante de proporcionalidade. O desvio padrão nas contagens⁽¹⁹⁾ é dado por:

$$\sigma = \sqrt{\bar{C} (1 - \eta (1 - e^{-\lambda t}))} \quad (4.4)$$

onde:

\bar{C} – é o valor esperado do número de contagens no tempo t .

Podese notar que nos casos onde a eficiência é muito menor que a unidade ($\eta \ll 1$) ou o tempo de contagem é muito menor que a meia vida ($t \ll T_{1/2}$), esta expressão se reduz à forma já conhecida:

$$\sigma = \sqrt{\bar{C}} \quad (4.5)$$

A eficiência global do sistema de contagem da amostra foi calculada, sendo de 5×10^{-4} contagens nos três picos analisados por desintegração. Para o sistema de contagens do monitor, a eficiência calculada foi de aproximadamente 2×10^{-2} contagens por desintegração. O tempo de contagem utilizado foi de 30 s, que corresponde aproximadamente a quatro meias vidas. Com estes valores, a diferença entre o cálculo do desvio padrão pela Eq. 4.4 e pela Eq. 4.5 é de 0,05% para o desvio das contagens e de 1,9% para o desvio das contagens do monitor.

O desvio padrão na relação O/U devido aos desvios padrões nas contagens da amostra e do monitor, pode ser expresso como:

$$\sigma_{R_c} = \sqrt{\left(\frac{\partial R}{\partial C_s}\right)^2 \sigma_{C_s}^2 + \left(\frac{\partial R}{\partial C_m}\right)^2 \sigma_{C_m}^2} \quad (4.6)$$

onde:

σ_{R_c} - desvio padrão na relação O/U devido à estatística de contagem;

R - relação O/U, Eq. 2.15;

σ_{C_a} - desvio padrão da contagem da amostra;

σ_{C_m} - desvio padrão da contagem do monitor

Das Eqs. 2.15 e 4.6 temos:

$$\sigma_{R_c} = \frac{M_u}{M_o} \cdot \frac{1}{\left(\frac{m}{K \cdot C_a / C_m} - 1 \right)^2} \cdot \frac{m}{K \cdot C_a} \cdot \sqrt{\sigma_{C_m}^2 - \frac{C_m^2}{C_a^2} \cdot \sigma_{C_a}^2} \quad (4.7)$$

Este desvio foi o principal responsável pela relativamente baixa precisão do sistema. Nas condições utilizadas, com 16 ciclos de irradiação e contagem por determinação, o desvio padrão devido à estatística de contagem foi de 2,7% ou 0,054 unidades de O/U.

4.3 Erros Associados à Normalização do Fluxo

A determinação da relação O/U baseia-se no fato de que, para amostras com mesmas dimensões, densidade e composições semelhantes, a massa de oxigênio na amostra é proporcional à relação de contagens amostra/monitor (Eq. 2.12), onde a constante de proporcionalidade, K, é dada por (Eq. 2.11):

$$K = \frac{E_m}{E_a} \cdot \frac{K_{1m}}{K_{1a}} \cdot \frac{K_{3m}}{K_{3a}} \cdot \frac{\bar{\psi}_m}{\bar{\psi}_a} \cdot K_4 \cdot m_{om} \quad (4.8)$$

Na dedução desta equação, os termos em que apareciam os tempos de irradiação, espera e contagem, cancelaram-se porque a amostra e o monitor são irradiados e contados simultaneamente. Os fatores K_{1m} , K_{3m} e m_{om} da Eq. 4.8 (respectivamente, fator que leva em conta a atenuação dos nêutrons do monitor, fator de auto-absorção das partículas beta do monitor e massa de oxigênio no monitor) não constituem fonte de erro, já que a composição e a geometria do monitor não variam. Podemos então dividir os erros associados à normalização em:

a - erros associados à não-simultaneidade nos tempos;

b - erros associados às eficiências de contagem $\left(\frac{E_m}{E_a} \right)$;

c - erros associados à atenuação de gamas e nêutrons $\left(\frac{K_4}{K_{1a} \cdot K_{3a}} \right)$;

d - erros associados aos fluxos $\left(\frac{\bar{\psi}_m}{\bar{\psi}_a} \right)$.

4.3.1 – Erros Associados aos Tempos de Irradiação e Contagem

O tempo de irradiação é determinado pelo período que o interruptor do feixe fica aberto, possibilitando aos deutérios atingirem o alvo. O tempo de resposta do interruptor do feixe, para o fechamento, foi medido com a unidade "multi-scaler" do multicanal. Este tempo é de 64 ms, o que levaria a uma irradiação mais longa no monitor do que na amostra. Foi colocado um condensador em paralelo com a válvula solenóide, que abre o gás para transportar a amostra para o detetor, de modo a retardar a saída da amostra da frente do alvo em 90 ms. Deste modo, garante-se a simultaneidade na irradiação da amostra e do monitor.

O início dos intervalos de contagem da amostra e do monitor é comandado por um mesmo sinal da unidade controladora, garantindo a simultaneidade do tempo de espera e do início do intervalo de contagem.

A duração do intervalo de contagem da amostra é controlada pelo relógio do multicanal e a duração do intervalo de contagem do monitor é controlada pela unidade controladora. A precisão nos tempos dos dois aparelhos, segundo os manuais, é igual ou melhor que 5 ms. A pequena diferença que pode ocorrer no final dos intervalos de contagem da amostra e do monitor é pouco significativa, porque neste instante, a atividade do ^{14}N está da ordem de 5% da atividade no início da contagem.

Embora a atividade total da amostra seja bastante grande no início do intervalo de contagem, o tempo morto do multicanal é desprezível porque na região de energia que é armazenada, 4,9 à 6,3 MeV, a máxima taxa de contagem é da ordem de 20 cps.

O tempo morto introduzido pelo circuito automático de rejeição de pulsos superpostos é da ordem de 0,8%, durante os 30 s de contagem. Este tempo morto provoca uma diferença entre os tempos de contagem da amostra e do monitor, não permitindo cancelar os termos em que aparecem os tempos de contagem, na dedução da expressão de K. Se o tempo morto se mantiver constante nas diferentes irradiações, estes termos podem ser substituídos por um fator constante que não causaria erro na determinação da relação O/U, já que o fator K é calculado pelo ajuste por mínimos quadrados. Nas diferentes irradiações procurou-se manter constante a saída de nêutrons, ficando a variação do tempo morto pequena, de modo que não foi notado erro decorrente desta variação.

O sistema de contagem do monitor tem um tempo morto muito pequeno, como concluiu-se a partir de testes feitos em condições de taxa de contagem cinco vezes superior à normal (Ver item 5.2).

Em resumo, os erros associados à não simultaneidade nos tempos são desprezíveis nas condições utilizadas. Em condições onde as taxas de contagens sejam maiores, o tempo morto introduzido pelo circuito de rejeição de pulsos superpostos, pode ter efeitos significativos.

4.3.2 – Erros Associados às Eficiências

No caso do sistema de contagem da amostra, a eficiência de contagem pode variar principalmente por variação do posicionamento da amostra no terminal de contagem. Outras causas de variação da eficiência são: interferência indireta, que foi discutida no item 4.2.2, e variação do fator de auto-absorção de gamas na amostra, que será discutido no item 4.3.4.

A folga axial da amostra no terminal de contagem é da ordem de 0,3 mm. Com a geometria de contagem utilizada (Figura 10), onde a distância face à face entre a amostra e o detetor é 28,5 mm, a máxima variação da eficiência é 1,2%. O desvio padrão nas contagens da amostra devido à variação da eficiência, calculado supondo que a amostra pode ficar localizada com igual probabilidade em qualquer posição dentro da folga, é de 0,35%. Caso exista uma posição privilegiada, onde a amostra fique localizada com maior frequência, o desvio padrão será ainda menor. O desvio padrão na relação O/U,

correspondente é de 0,003 unidades de O/U. Nas medidas feitas, cada determinação consistiu de 16 ciclos de irradiação e contagem, ficando o desvio padrão correspondente à variação da eficiência reduzido à 0,002 unidades de O/U (Ver ítem 4.4).

No monitor, a geometria é constante e a eficiência pode variar principalmente por causa das modificações de ganho da válvula fotomultiplicadora. A alta tensão usada na fotomultiplicadora foi 750 V, embora a tensão máxima recomendada seja 1500 V. Este valor de tensão relativamente baixo foi usado para diminuir as variações de ganho da fotomultiplicadora.

Uma amostra de lucite cilíndrica com 22,1 mm de diâmetro e 9,4 mm de altura, foi usada como padrão de referência de oxigênio, para verificar a ocorrência de variações de ganho no sistema. Uma vez que o lucite é composto somente de C, H e O, a não existência de interferências permitiu a contagem de ^{14}N por integração dos pulsos de alturas equivalentes às energias acima de 4,9 MeV. Durante as medidas das amostras de UO_2 , o sistema manteve-se estável, não sendo necessário efetuar correções de ganho, salvo decorrentes de modificações feitas no monitor.

4.3.3 – Erros Associados aos Fluxos

Na geometria de irradiação utilizada (Figura 4), a separação entre a amostra e o alvo foi cerca de 6 mm face à face, enquanto o monitor ficou aproximadamente à 300 mm do alvo. Pequenas variações do posicionamento da amostra no terminal de irradiação e da posição em que o feixe atinge o alvo, provocam variações significativas na relação entre os fluxos de nêutrons na posição do monitor e na posição da amostra.

As Figuras 15, 16 e 17 são gráficos do fluxo médio na posição da amostra, calculados por integração numérica, supondo que a emissão de nêutrons pelo alvo é isotrópica e que o fluxo de nêutrons varia com o inverso do quadrado da distância.

Na Figura 16 é mostrada a variação relativa do fluxo médio na posição da amostra, quando esta é deslocada de 0,1 mm na direção axial, em função da distância face à face entre a amostra e o alvo. A folga da amostra no terminal de irradiação é 0,3 mm. Na distância amostra-alvo utilizada, 6 mm, a variação máxima do fluxo médio na amostra é 4,4%. O desvio padrão no número de contagens da amostra, supondo que esta não tem posição privilegiada dentro do terminal de irradiação, é 1,3%. O desvio padrão na relação O/U correspondente à folga no terminal de irradiação é 0,029 unidades de O/U.

Aumentando a distância entre a amostra e o alvo, este erro diminui; mas, nas condições utilizadas, o aumento do erro associado à estatística de contagem é maior que a diminuição deste erro. Para 16 ciclos de irradiação e contagem, o desvio padrão na relação O/U devido à folga no terminal de irradiação fica reduzido para 0,007 unidades de O/U (Ver ítem 4.4).

A Figura 15 é um gráfico do fluxo médio na posição da amostra, em relação à posição do alvo atingida pelo feixe de dêuterons, suposto com secção pontual. Por esta figura, pode-se notar que uma variação de 54% no fluxo médio na posição da amostra ocorre quando a posição do feixe de dêuterons passa do centro para a extremidade do alvo. O monitor, por estar muito mais distante do alvo que a amostra, é praticamente insensível às variações da posição que o feixe atinge o alvo. Para diminuir a importância desta possível fonte de erro, teve-se o cuidado de manter o feixe desfocalizado, ou seja, com 10% da corrente total caindo fora do alvo. Deste modo, o feixe fica com distribuição aproximadamente uniforme na superfície do alvo.

Na experiência feita para estimar o erro do monitor (ítem 5.2) onde os erros associados às geometrias de irradiação e contagem foram praticamente eliminados, o desvio padrão obtido na relação de contagens amostra/monitor foi praticamente igual ao desvio padrão esperado considerando somente a estatística de contagem. Na experiência para a medida da reprodutibilidade do sistema (ítem 5.6), o

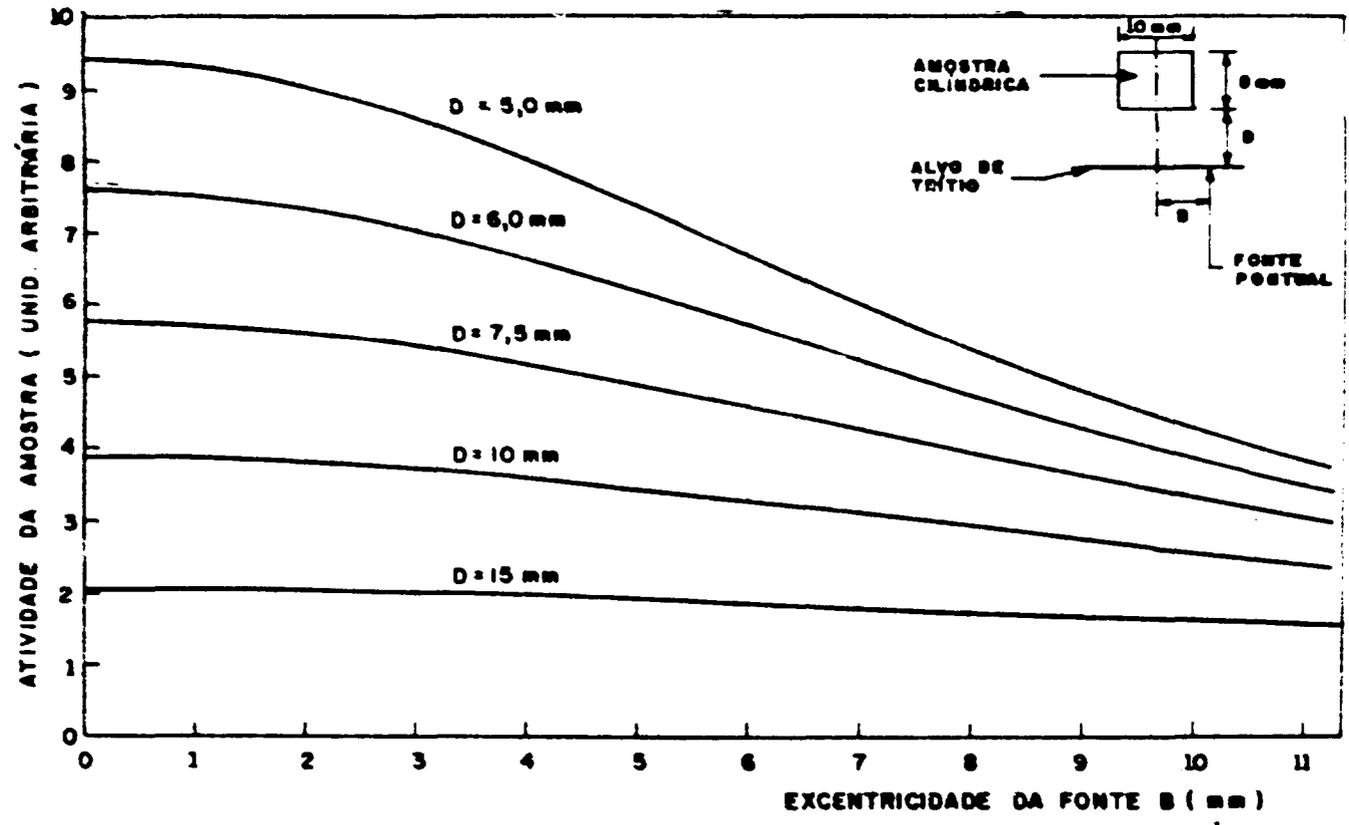


Figura 15 - Variação da atividade da amostra com a distância do centro do alvo à posição atingida pelo feixe pontual

Desvio padrão na relação de contagens amostra/monitor, excetuando a estatística de contagem foi 1,46%. Como a amostra usada foi sempre a mesma, é de se esperar que este desvio seja devido à folga da amostra no terminal de irradiação, à folga da amostra no terminal de contagem e às modificações da posição e forma da fonte de nêutrons. Como os dois primeiros já foram calculados, o desvio padrão na relação de contagens amostra/monitor devido às modificações da posição e forma da fonte de nêutrons, foi estimado como sendo de 0,6%, o que corresponde a um desvio padrão na relação O/U de 0,014 unidades de O/U. Para 16 ciclos de irradiação e contagem, o desvio padrão na relação O/U devido às modificações da posição e forma da fonte de nêutrons, ficou reduzido para 0,004 unidades de O/U (Ver item 4.4).

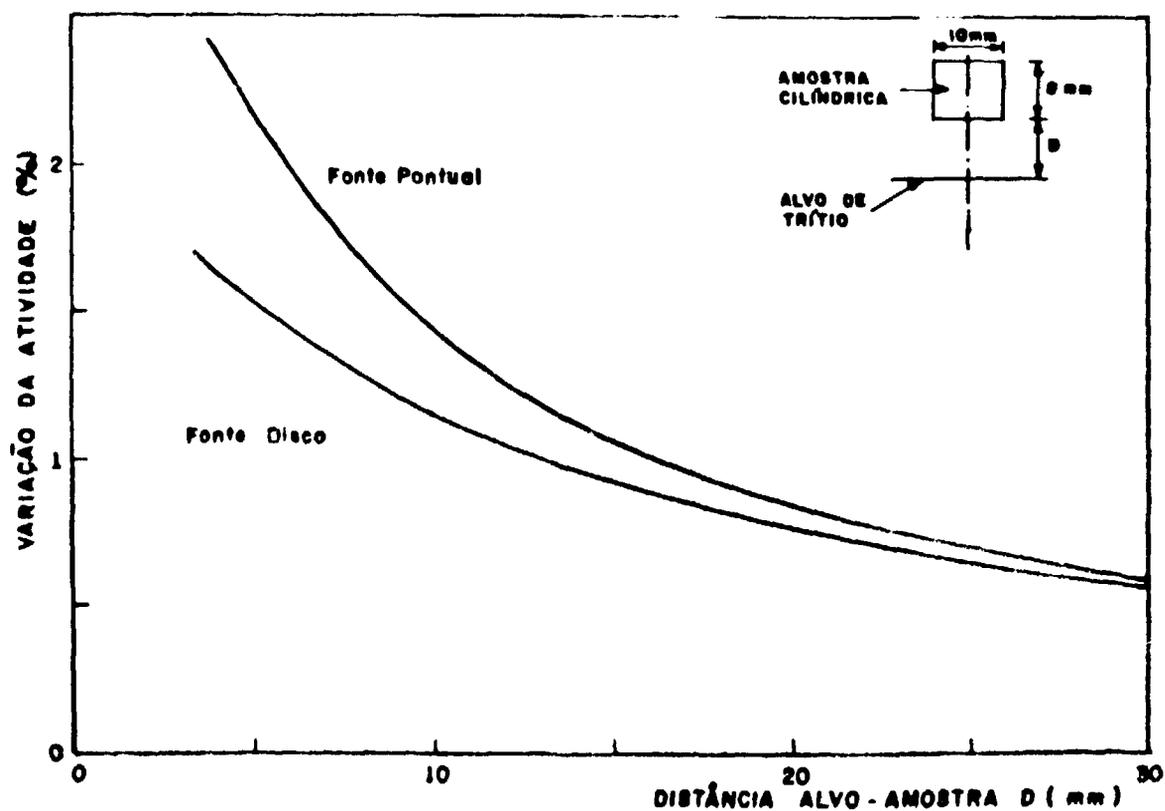


Figura 16 - Variação percentual da atividade da amostra para um deslocamento de 0,1 mm na distância amostra-alvo versus distância amostra-alvo.

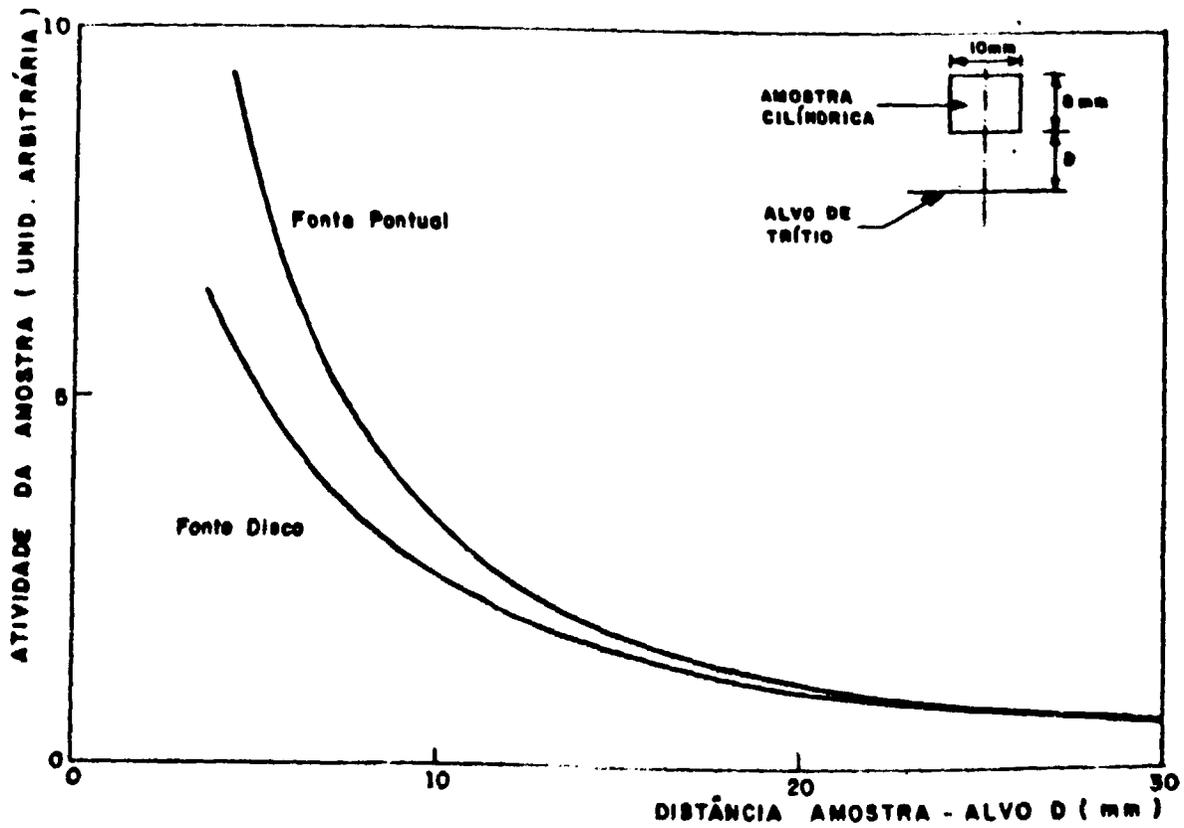


Figura 17 - Variação da atividade da amostra com a distância amostra-alvo

4.3.4 - Erros Associados à Atenuação de Gammas e Nêutrons

Os fatores que consideram a atenuação de gammas e nêutrons na amostra, na Eq. 2.11 são:

- K_{1a} - redução do fluxo de nêutrons na amostra devido a atenuação na própria amostra;
- K_4 - redução do fluxo de nêutrons no monitor devido à atenuação na amostra e no canho.
- K_{3a} - fator de auto-absorção dos gammas na amostra.

O cálculo preciso destes fatores de atenuação é muito complexo. Foram feitos cálculos aproximados, considerando-se atenuação exponencial tanto para os gamas como para os nêutrons, como tem sido frequentemente empregado^(21,44,45).

De modo geral foi usado o fator de atenuação dado por expressão do tipo:

$$e^{-\mu \cdot \rho \cdot d}$$

onde:

μ – coeficiente de atenuação de massa ($\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$) calculado para os nêutrons de 14 MeV usando as secções de choque microscópicas de remoção ("removal"), retiradas do trabalho de Nargolwalla⁽⁴⁴⁾ e para os gamas acima de 6,13 MeV usando as secções de choque microscópicas totais para feixe bem colimado, retiradas do trabalho de Storm⁽⁵⁹⁾;

ρ – densidade da amostra ($\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$);

d – espessura efetiva de atenuação (cm).

Em princípio, as variações nos fatores de atenuação de gamas e nêutrons podem ser causadas por variações na composição, na densidade e nas dimensões das amostras.

Em óxidos de pureza nuclear, a composição pode variar somente com a relação O/U. Embora os fatores de atenuação variem da ordem de 0,2% quando a relação O/U passa de 2,00 para 2,67, as variações cancelam-se de modo que a máxima variação em $K_4/(K_{1a}, K_{3a})$ é de 0,01%. A máxima variação correspondente na relação O/U é 0,0002 unidades de O/U. Nas amostras analisadas a relação O/U variou entre 2,029 e 2,122, não sendo necessário fazer correções para variação dos coeficientes de atenuação de gamas e nêutrons.

Quanto às dimensões e densidade das amostras analisadas, as máximas variações encontradas foram de 2,5%. O erro máximo na relação O/U devido às variações de dimensões e densidade, supondo que as máximas variações entejam dentro de 2,5%, é de 0,003 unidades de O/U.

Para as amostras utilizadas, as variações dos fatores de atenuação de gamas e nêutrons foram muito pequenas e não foram feitas correções. Nos casos onde as variações forem maiores ou uma precisão maior for desejável, podem ser feitas correções pelo método descrito por Nargolwalla^(44,45).

4.4 – Variação do Desvio Padrão com o Número de Ciclos

A Eq. 2.15 (item 2.25) mostra que a relação O/U é função da relação de contagens amostra/monitor. Cada determinação consistiu de 16 ciclos de irradiação e contagem, acumulando-se as contagens da amostra e do monitor. Para n ciclos de irradiação e contagem, podemos escrever:

$$C_a = \sum_{i=1}^n a_i \quad \text{e} \quad C_m = \sum_{i=1}^n m_i$$

onde:

a_i – é o número de contagens da amostra obtido no i -ésimo ciclo;

m_i – é o número de contagens do monitor obtido no i -ésimo ciclo.

a_1, a_2, \dots, a_n são variáveis aleatórias independentes e, se o fluxo de nêutrons for considerado constante nos n ciclos, são identicamente distribuídas, ou seja, têm o mesmo valor médio ($E(a_i)$) e a mesma variância ($V(a_i)$). Temos:

$$E(a_i) = a \quad \text{e} \quad V(a_i) = \sigma_a^2 \quad \text{para qualquer } i.$$

Analogamente para as contagens do monitor, temos:

$$E(m_i) = m \quad \text{e} \quad V(m_i) = \sigma_m^2 \quad \text{para qualquer } i.$$

As variâncias das contagens da amostra e do monitor serão:

$$V(C_a) = \sum_{i=1}^n V(a_i) = n \cdot \sigma_a^2 \quad (4.9)$$

$$V(C_m) = \sum_{i=1}^n V(m_i) = n \cdot \sigma_m^2 \quad (4.10)$$

E os valores esperados de C_a e C_m serão:

$$E(C_a) = \sum_{i=1}^n E(a_i) = n \cdot a \quad (4.11)$$

$$E(C_m) = \sum_{i=1}^n E(m_i) = n \cdot m \quad (4.12)$$

A variância da relação de contagens amostra/monitor pode ser expressa aproximadamente por:

$$\sigma_c^2 = V(C_a/C_m) = \left(\frac{\partial(C_a/C_m)}{\partial C_a} \right)^2 V(C_a) + \left(\frac{\partial(C_a/C_m)}{\partial C_m} \right)^2 V(C_m)$$

As derivadas são calculadas para $C_a = E(C_a)$ e $C_m = E(C_m)$. Resolvendo esta equação e substituindo os valores das Eqs. 4.9, 4.10, 4.11 e 4.12 temos:

$$\sigma_c^2 = \frac{1}{n \cdot m^2} \cdot (\sigma_a^2 + \frac{a^2}{m^2} \cdot \sigma_m^2)$$

Como o desvio padrão é a raiz quadrada da variância, temos:

$$\sigma_c = \frac{1}{\sqrt{n \cdot m}} \sqrt{\sigma_a^2 + \frac{a^2}{m^2} \cdot \sigma_m^2} \quad (4.13)$$

Da Eq. 4.13 pode-se ver que o desvio padrão na relação de contagens amostra/monitor varia com o inverso da raiz quadrada do número de ciclos. O desvio padrão na relação O/U pode ser expresso aproximadamente em relação ao desvio padrão na relação de contagens amostra/monitor como:

$$\sigma_R = \sqrt{\left(\frac{\partial R}{\partial (C_a/C_m)}\right)^2} \cdot \sigma_c$$

O desvio padrão na relação O/U também varia com o inverso da raiz quadrada do número de ciclos de irradiação e contagem.

Na Tabela III são apresentadas as principais fontes de erro aleatório e os respectivos desvios padrões, para 1 e 16 ciclos.

Tabela III

Principais Fontes de Erro na Relação O/U

Fonte de Erro	Desvio Padrão na Relação O/U	
	1 ciclo	16 ciclos
Estatística de contagem	0,22	0,054
Folga da amostra no terminal de irradiação	0,029	0,007
Varição da posição e forma da fonte de nêutrons	0,018	0,004
Folga da amostra no terminal de contagem	0,008	0,002
TOTAL (raiz quadrada da soma dos quadrados)	0,223	0,055

Os erros decorrentes da determinação de massa e das variações dos fatores de atenuação de gamas e nêutrons são erros sistemáticos que não variam com o número de ciclos. Mas o erro máximo decorrente da determinação da massa é de 0,002 unidades de O/U, sendo desprezível diante dos demais. O erro máximo decorrente das variações dos fatores de atenuação de gamas e nêutrons é de 0,003 unidades de O/U e pode ser corrigido, como foi dito no item 4.3.4.

5 -- EXPERIÊNCIAS E RESULTADOS

5.1 - Escolha das Condições de Funcionamento do Monitor de Fluxo

5.1.1 - Alta Tensão da Fotomultiplicadora

Como a fotomultiplicadora do monitor de nêutrons fica sujeita a uma taxa de contagem muito elevada, para se obter uma condição de estabilidade aceitável, foi necessário utilizar uma tensão de alimentação reduzida, de modo que a corrente na fotomultiplicadora seja pequena não provocando variações de ganho sensíveis por desgaste da válvula. Foram levantados espectros de altura de pulso do monitor para várias tensões de alimentação. Compensando a variação de ganho da fotomultiplicadora com o ganho do amplificador, o espectro mantém essencialmente a mesma forma para tensões de alimentação entre 700 V e 1300 V. Para a tensão de 650 V ou inferior o espectro aparece bastante deformado. Foi escolhido o nível de 750 V que é uma tensão reduzida (a tensão máxima recomendada é 1500 V) e mantém uma certa margem de segurança para a região onde o espectro começa a se deformar. O espectro obtido para 750 V é mostrado na Figura 18.

5.1.2 - Escolha do Nível de Discriminação do Monitor

Para escolher o nível de discriminação do sistema de contagem do monitor, foram feitas determinações da curva de decaimento temporal das contagens do monitor, para diversos níveis de discriminação. Para cada nível de discriminação, o monitor foi irradiado durante 15 segundos e após 2 segundos de espera era iniciado o ciclo de contagem da unidade "multi-scaler". As irradiações foram repetidas algumas vezes, acumulando-se as contagens para melhorar a estatística.

A análise das curvas de decaimento foi feita pelo ajuste, pelo método dos mínimos quadrados, de uma exponencial mais uma constante aos pontos experimentais. Isto foi feito com o programa CLEVE, que foi desenvolvido para a análise de curvas de decaimento com pontos experimentais igualmente espaçados. Este programa foi desenvolvido para o computador HP-2116C baseado no programa MQCLE⁽⁴⁸⁾.

Para verificar a interferência de elementos com meias vidas próximas à do ^{16}N , os ajustes foram feitos aos decaimentos completos e também aos canais restantes após serem retirados os canais iniciais correspondentes a uma, duas e três meias vidas do ^{16}N . Na Tabela IV são mostrados os resultados das meias vidas ajustadas e da relação entre as contagens da radiação de fundo e as do ^{16}N nos 30 segundos de contagem. No caso de haver interferência de elementos com meias vidas maiores que a do ^{16}N , a meia vida ajustada aos pontos experimentais tende a crescer quando são retirados os pontos iniciais, como pode ser notado no nível de discriminação de 0,5 V. Interferência de elementos com meias vidas menores que a do ^{16}N fariam com que a meia vida ajustada ao decaimento completo fosse menor que a do ^{16}N , o que não foi notado.

Embora para nível de discriminação igual ou superior à 1 V, as meias vidas ajustadas não apresentem diferença significativa dos valores publicados mais recentemente ($7,14 \pm 0,02 \text{ s}^{(7)}$),

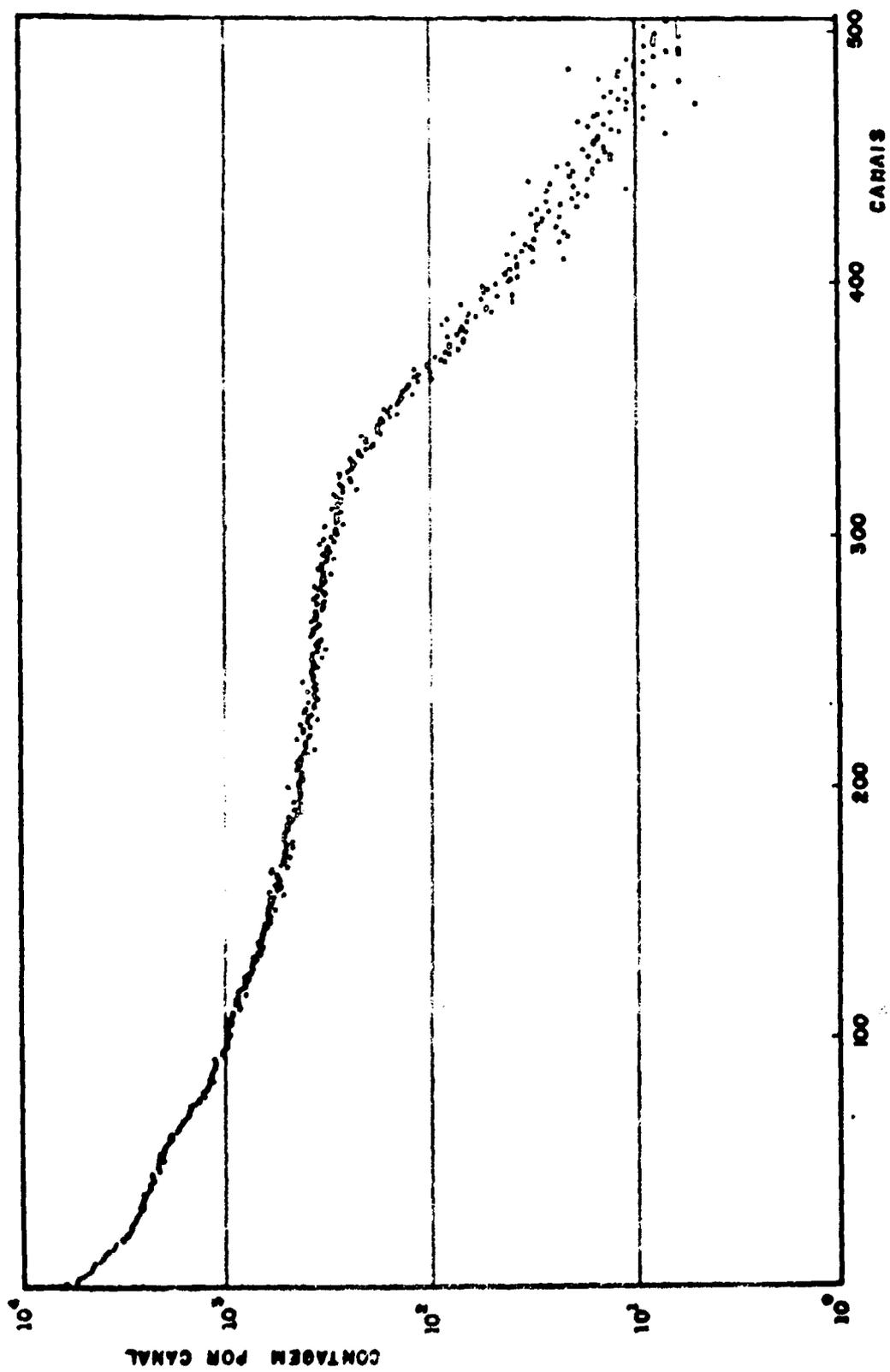


Figura 18 -- Espectro de altura de pulso do monitor

$7,10 \pm 0,03 \text{ s}^{(53)}$, $7,13 \pm 0,04 \text{ s}^{(47)}$ O nível de voltagem escolhido para utilização foi o de 3 V, que corresponde aproximadamente a 4 MeV. Neste nível, a radiação de fundo é somente 0,2% com relação à do ^{16}N nos 30 segundos de contagem. A contagem total neste tempo é da ordem de 20000 por irradiação. Neste nível, a estatística de contagem é boa e não é necessário subtrair a radiação de fundo da contagem total.

Tabela IV

Meias vidas ajustadas à curva de decaimento do monitor

Base (V)	Meia vida ajustada à curva completa (s)	Meias vidas ajustadas aos canais restantes após serem retirados os canais iniciais referentes à:			Radiação de fundo (%)
		1 $T_{1/2}$	2 $T_{1/2}$	3 $T_{1/2}$	
0,50	$7,50 \pm 0,06$	$7,63 \pm 0,10$	$7,94 \pm 0,17$	$8,58 \pm 0,30$	4
0,75	$7,22 \pm 0,05$	$7,25 \pm 0,07$	$7,40 \pm 0,11$	$7,56 \pm 0,18$	2
1,0	$7,04 \pm 0,05$	$7,06 \pm 0,07$	$7,08 \pm 0,11$	$7,14 \pm 0,17$	0,7
1,5	$7,09 \pm 0,04$	$7,06 \pm 0,06$	$7,11 \pm 0,09$	$7,18 \pm 0,13$	0,5
2,0	$7,04 \pm 0,05$	$6,97 \pm 0,06$	$6,96 \pm 0,09$	$7,01 \pm 0,15$	0,5
3,0	$7,07 \pm 0,01$	$7,10 \pm 0,01$	$7,12 \pm 0,02$	$7,10 \pm 0,03$	0,2
4,0	$7,07 \pm 0,01$	$7,09 \pm 0,02$	$7,09 \pm 0,03$	$7,00 \pm 0,05$	0,15

5.2 – Verificação do Monitor

O monitor foi testado inicialmente para verificar a existência de efeitos de tempo morto e de superposição de pulsos. Como estes efeitos aumentam com a taxa de contagem, poderiam ter influência significativa principalmente nos primeiros segundos de contagem, quando a atividade é bem mais elevada. Foi feita uma determinação da curva de decaimento do monitor, com este numa posição bem próxima do alvo, de modo que a atividade após a irradiação foi da ordem de 5 vezes a atividade normal. O ajuste por mínimos quadrados de uma exponencial mais uma constante à curva de decaimento apresentou um valor de 0,8 para a soma dos quadrados dos desvios dividida pelo número de graus de liberdade. O gráfico do logaritmo das contagens versus tempo (Figura 19) não apresentou tendência dos pontos iniciais a se afastarem da reta ajustada. Desde que os efeitos de tempo morto e de superposição de pulsos não foram notados nestas condições, nas condições normais são desprezíveis.

Para estimar o erro do monitor e sua eficiência na normalização do fluxo de nêutrons, foram feitas irradiações de uma amostra cilíndrica de lucite, com 22,1 mm de diâmetro e 9,4 mm de altura, em diferentes níveis de saída de nêutrons. As influências dos erros relacionados com as geometrias de irradiação e contagem foram diminuídas aumentando-se a distância amostra-alvo para 6,0 cm e a distância amostra-detector para 6,15 cm. Para a contagem da amostra foi utilizado um detector NaI (TI) de 3" x 3" acoplado a um analisador monocanal e um contador, armazenando pulsos equivalentes às energias entre 3,6 e 8,0 MeV. Os tempos de irradiação, espera e contagem foram de 15, 2 e 30 segundos. Foram feitos 25 ciclos de irradiação e contagem nas condições de máxima saída de nêutrons, 25 com 80% da saída máxima e 16 com a saída de 50% da máxima. Os resultados estão na Tabela V.

As diferenças encontradas entre as médias das relações de contagens amostra/monitor, nestas três condições de saída de nêutrons, são pequenas comparadas com os desvios padrões das médias. Isto indica que a relação de contagens amostra/monitor está realmente normalizada para as variações de fluxo de nêutrons, mesmo para variações de 50% deste.

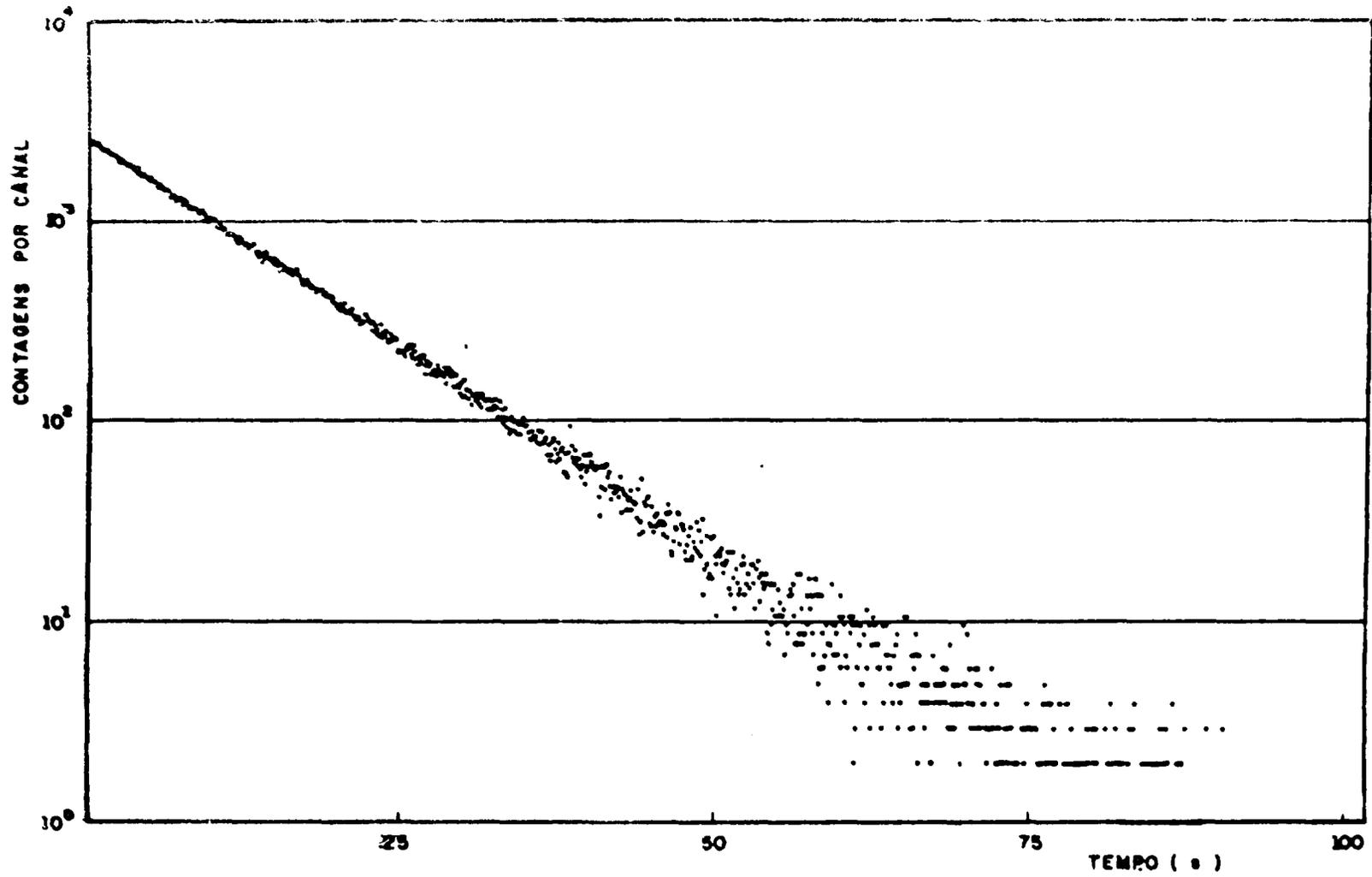


Figura 10 -- Curva de decaimento temporal do monitor após ter sido irradiado num fluxo de nêutrons de 14 MeV 5 vezes maior que o fluxo normalmente utilizado.

Tabela V

Relação de contagens amostra/monitor variando a saída de nêutrons

Saída de nêutrons 100% da normal		Saída de nêutrons 80% da normal		Saída de nêutrons 50% da normal	
contagem da amostra	contagem do monitor	contagem da amostra	contagem do monitor	contagem da amostra	contagem do monitor
1162	6533	902	5287	558	3335
1154	6791	960	5285	616	3341
1176	6681	942	5403	585	3364
1229	6974	884	5288	556	3349
1241	6965	951	5521	566	3369
1182	7004	972	5601	607	3323
1236	6896	983	5519	605	3424
1192	6717	932	5411	640	3569
1142	6546	952	5570	657	3708
1193	6897	996	5696	625	3617
1155	6745	1026	5713	623	3563
1135	6818	822	4738	602	3549
1170	6722	909	5473	667	3592
1215	6760	989	5580	635	3657
1216	6712	982	5690	623	3759
1192	6836	948	5701	618	3723
1157	6619	891	5638		
1181	6669	1012	5571		
1183	6560	1004	5712		
1097	6564	956	5544		
1149	6837	933	5558		
1183	6763	983	5567		
1187	6919	939	5678		
1164	6598	961	5448		
1216	6756	972	5528		
média da relação de contagens amostra/monitor 0,1747 ± 0,0008		média da relação de contagens amostra/monitor 0,1726 ± 0,0011		média da relação de contagens amostra/monitor 0,1740 ± 0,0017	

O desvio padrão calculado com as 66 determinações foi de 0,0054, enquanto que o desvio esperado, supondo existirem somente erros associados à estatística de contagem, foi de 0,0062. Como o desvio esperado foi maior que o encontrado, não podemos estimar o erro do monitor, mas concluímos que é muito menor do que o associado à estatística de contagem.

5.3 – Variação da Atividade da Amostra com a Distância Amostra-Alvo

A curva da Figura 17, que fornece a variação da atividade da amostra em função da distância amostra-alvo, foi calculada considerando que a emissão de nêutrons é isotrópica e que o fluxo de nêutrons, para fonte pontual, varia com o inverso do quadrado da distância. A partir dessa curva, foi estimado o erro na determinação relacionado com a incerteza do posicionamento da amostra no terminal de irradiação.

Foram feitas irradiações de uma amostra cilíndrica de lucite, com 10 mm de diâmetro e 8 mm de altura, dentro de coelho de polietileno. As irradiações foram feitas em duas distâncias amostra-alvo, para comparar a variação da relação amostra/monitor com o valor calculado pela curva da Figura 17.

Utilizando um detetor NaI(Tl) de 3" x 3", para a contagem da amostra, acoplado a um sistema de contagens armazenando pulsos equivalentes às energias entre 4,6 e 8,0 MeV, foram feitas 9 determinações para a distância amostra-alvo de 5,5 mm e 9 para a distância de 5,2 mm. Os resultados estão na tabela VI.

Tabela VI

Relação de contagens amostra/monitor variando a distância entre o alvo e a amostra

Distância amostra-alvo 5,5 mm		Distância amostra-alvo 5,2 mm	
contagem da amostra	contagem do monitor	contagem da amostra	contagem do monitor
4869	6802	5541	7291
5276	7306	5374	7079
5242	7123	5633	7203
5467	7517	5297	7288
5593	7447	5631	7202
5119	7119	5509	7274
5198	7028	5488	7052
5539	7524	5560	7284
5372	7503	5159	7097
média da relação de contagens amostra/monitor 0,729 ± 0,004		média da relação de contagens amostra/monitor 0,760 ± 0,007	

A média das relações de contagens amostra/monitor obtida da experiência variou de 4,1% enquanto que pela curva Figura 17 esta variação deveria ser de 4,4%. A pequena diferença encontrada, entre o valor calculado e o obtido, está dentro dos erros da experiência.

5.4 – Influência da Focalização do Feixe de Déuterons

No tubo, por onde passa o feixe de déuterons antes de atingir o alvo, há dois anéis com aproximadamente 1" de diâmetro interno. O primeiro anel (foco 1) fica perto da saída do tanque do acelerador e o segundo anel (foco 2) fica mais perto do alvo. Estes anéis são isolados eletricamente do tubo do acelerador e ligados à terra através de microamperímetros que ficam no painel de controle.

As correntes produzidas pelos tons que atingem estes anéis indicam o grau de focalização do feixe.

Pequenas variações da posição onde o feixe atinge o alvo podem levar a erros consideráveis, caso a fonte seja pontual, como pode ser visto na Figura 15. Além disto, o erro devido a incerteza no posicionamento da amostra no terminal de irradiação é maior para fonte pontual do que para fonte em forma de disco. Nesta experiência foram feitas irradiações em diferentes condições de focalização para verificar a influência desta, na relação de contagem.

Foi utilizado um detetor NaI(Tl) de 3" x 3" com sistema de contagem armazenando pulsos equivalentes às energias entre 4,6 e 8,0 MeV. A amostra cilíndrica de lucite, com 10 mm de diâmetro e 8 mm de altura, ficava na irradiação a uma distância de 5,2 mm do alvo. Os tempos de irradiação, espera e contagem foram de 15, 2 e 30 segundos respectivamente. Foram feitas três séries de 25 irradiações cada uma, correspondente às três condições de focalização. Os resultados estão na Tabela VII.

A variação da relação de contagem amostra/monitor entre a condição de foco mínima e a de máxima utilizada foi de 23,9%. Pela curva da Figura 17 a variação entre fonte pontual e em forma de disco, para a distância de 5,2 mm, é de 36,6%. As causas prováveis desta diferença são o feixe que não é pontual, mesmo nas condições de corrente de foco mínima, e não deve estar perfeitamente centrado no alvo.

Comparando os desvios padrões relativos obtidos nas três condições, vê-se que, embora o uso do feixe bem localizado aumente a atividade da amostra, provoca um maior desvio padrão relativo na relação de contagens amostra/monitor. Nas experiências, procurou-se manter as correntes de foco na condição 1, o que além de causar um menor desvio padrão, permite uma utilização mais uniforme do alvo.

5.5 – Escolha da Espessura do Absorvedor entre a Amostra e o Detetor

O pré-amplificador do detetor Ge(Li), usado nas medidas de amostras de óxido de urânio, tem uma limitação na taxa de contagem de 45.000 MeV/s. Em irradiações de 15 s, este limite é bastante ultrapassado. Observando os pulsos de saída do pré-amplificador com um osciloscópio, nota-se os pulsos referentes à chegada da amostra em frente ao detetor e logo em seguida os pulsos desaparecem por causa da saturação do pré-amplificador. Após um período de aproximadamente 25 s, quando a atividade da amostra já decaiu bastante, os pulsos começam a aparecer, inicialmente de forma descontínua, ou seja, intercalados com curtos períodos de saturação e logo após tornam-se normais.

Obtuiu-se por usar um absorvedor entre a amostra e o detetor para eliminar a saturação do pré-amplificador durante o intervalo de contagem, porque, em consequência das características da

Tabela VII

Relação de contagens amostra/monitor variando a condição de focalização do feixe de deutérons

1ª condição $F_1 = 0,9\mu A$ $F_2 = 19\mu A$		2ª condição $F_1 = 1\mu A$ $F_2 = 10\mu A$		3ª condição $F_1 = 0,8\mu A$ $F_2 = 0\mu A$	
contagem da amostra	contagem do monitor	contagem da amostra	contagem do monitor	contagem da amostra	contagem do monitor
6922	9296	8876	10415	10331	10119
7185	9336	8739	10026	10462	10447
7117	9228	8587	10238	10865	10807
6950	9179	8752	10458	10538	10216
6984	9067	9144	10332	10569	10685
7220	9355	8644	10416	10532	10570
7194	9432	8993	10339	10593	10352
7023	9100	8850	10173	10012	10355
7252	9345	8820	10171	10334	10621
7121	9371	8539	9773	10518	10557
6972	8934	9076	10654	10393	10419
7036	9218	8345	9972	10702	10275
7526	9257	8715	10268	10718	10533
6947	9015	8623	10435	10705	10591
7142	9315	8943	10691	10593	10538
6976	9151	8698	10209	10239	10537
7274	9243	8991	10369	10597	10318
7038	9246	8641	9855	10787	10459
7181	9117	8916	10592	9986	10228
7068	9418	8784	10214	10661	10482
7172	9319	8357	10018	10597	10141
6944	8867	8804	10021	10869	10039
7076	9199	8893	10331	10666	10801
6929	9398	8806	10776	10638	10356
6949	9467	9132	10315	10260	10624
média da relação de contagens amostra/monitor 0,7677		média da relação de contagens amostra/monitor 0,8548		média da relação de contagens amostra/monitor 1,0084	
desvio padrão $1,858 \times 10^{-2}$		desvio padrão $1,946 \times 10^{-2}$		desvio padrão $2,786 \times 10^{-2}$	
des. pad. % 2,18		des. pad. % 2,28		des. pad. % 2,76	

absorção da radiação gama nos materiais, existe uma seleção, ou seja, uma maior absorção da radiação de baixa energia do que da radiação gama de 6,13 MeV do ^{16}N . Outros métodos, tais como, diminuir o fluxo durante a irradiação ou aumentar a distância entre a amostra e o detector reduzem na mesma proporção as radiações gama de todas as energias.

Foram feitas experiências irradiando-se uma amostra de UO_2 para vários tempos de espera (tempo entre o fim da irradiação e o início da contagem), colocando-se entre a amostra e o detector um absorvedor de espessura suficiente para eliminar a saturação do pré-amplificador durante o intervalo de contagem. Utilizou-se absorvedor de chumbo por ser um material facilmente disponível e de alta densidade, o que permite a utilização de uma espessura relativamente pequena. Estas experiências indicaram que o tempo de espera que fornecia maior número de contagens nos picos do ^{16}N foi de 2 s. A espessura de chumbo, suficiente para eliminar a saturação do pré-amplificador no intervalo de contagem, foi de 19,5 mm. Esta espessura de chumbo foi usada nas demais experiências.

5.6 -- Reprodutibilidade do Sistema

Com o objetivo de estimar o erro do sistema, foram feitos 40 ciclos de irradiação e contagem com uma amostra cilíndrica de lucite de 22,1 mm de diâmetro e 9,4 mm de altura. Na medida da radiação gama do ^{16}N da amostra, foi usado o detector Ge(Li) acoplado a um sistema de contagem armazenando pulsos equivalentes às energias entre 2,5 e 8 MeV. Os tempos de irradiação, espera e contagem foram os mesmos usados nas medidas de amostras de UO_2 ou seja, 15, 2 e 30 s respectivamente. Os resultados estão na Tabela VIII.

O desvio padrão observado nas relações de contagem amostra/monitor foi de $5,13 \times 10^{-3}$ enquanto que o desvio padrão esperado considerando somente os erros associados à estatística de contagem, calculado pela Eq. 4.5 (item 4.2.3), foi de $3,66 \times 10^{-3}$. O erro do sistema calculado pela expressão:

$$\sigma_s = \sqrt{\sigma_{\text{obs}}^2 - \sigma_{\text{est}}^2}$$

foi de $3,6 \times 10^{-3}$ que corresponde a 1,46%.

Nas medidas de amostras de óxido de urânio foram acumulados 16 ciclos de irradiação e contagem para cada determinação, devendo o erro do sistema nestas condições, ficar reduzido a um quarto deste valor, ou seja, 0,365%.

5.7 -- Medidas em UO_2

Foram utilizadas amostras cilíndricas de UO_2 com 10 mm de diâmetro e 8 mm de altura. Estas amostras foram produzidas por compactação de UO_2 em pó, atingindo uma densidade de aproximadamente 5 g.cm^{-3} . Foram usados pós de origens diferentes de modo a obter-se uma variação relativamente grande na relação O/U.

As amostras foram pesadas duas vezes para se ter certeza que não houve perda de massa durante as transferências pneumáticas entre os terminais de irradiação e contagem. Na primeira determinação, feita antes da irradiação da amostra, pesou-se o coelho e, após colocar a amostra no coelho, fez-se nova pesagem do conjunto, obtendo-se a massa da amostra por subtração das duas pesagens. Na segunda

Tabela VIII

Reprodutibilidade do Sistema

Contagem da amostra	Contagem do monitor	Contagem da amostra	Contagem do monitor
5143	20201	5708	23713
4964	19819	5722	23458
4989	20015	5788	23605
5062	19955	5663	24008
4969	19927	5643	24023
5010	20209	5961	23570
5182	21282	5837	23542
5575	22487	5634	23003
5153	21548	5723	23621
6072	24435	5884	23699
5769	23679	6025	23326
6049	24476	5917	23601
5836	24211	5819	23499
5878	24071	5901	23690
5855	23932	5927	23473
5672	23665	5764	23362
5660	23613	5737	23370
5950	23756	6779	23418
5874	23935	5678	23578
5872	24339	5812	23239
- média da relação de contagens amostra/monitor		- 0,2462	
- desvio padrão		- $3,66 \times 10^{-3}$	
- desvio obtido		- $5,13 \times 10^{-3}$	

A determinação feita após a irradiação da amostra, pesou-se inicialmente o conjunto coelho e amostra, e depois o coelho sozinho. Os resultados das determinações estão na Tabela IX. As diferenças de massa encontradas entre as duas determinações são pequenas e o valor considerado foi a média das duas determinações.

Tabela IX

Massa das amostras de UO_2

amostra nº	Antes de irradiar			Depois de irradiar			Média da massa da amostra (g)
	massa do coelho (g)	massa do coelho + amostra (g)	massa da amostra (g)	massa do coelho + amostra (g)	massa do coelho (g)	massa da amostra (g)	
1	7,630929	10,903145	3,272216	10,903772	7,631208	3,272564	3,272390
2	7,629794	10,920913	3,291119	10,919461	7,628145	3,291316	3,291217
3	7,629375	10,878541	3,249166	10,875668	7,627033	3,248635	3,248900
4	7,629907	10,841242	3,211335	10,841814	7,630565	3,211249	3,211292
5	7,627375	10,912606	3,285231	10,913994	7,628291	3,285703	3,285467
6	7,626590	10,894374	3,267784	10,894379	7,626823	3,267556	3,267670

A aparelhagem eletrônica usada nas medidas foi descrita no Capítulo 3 e o diagrama do bloco do sistema está na Figura 14. A espessura do absorvedor usado foi de 19,5 mm e os tempos de irradiação, contagem e espera foram respectivamente de 15, 2 e 30 s. O intervalo de contagem foi dividido em quatro sub-intervalos sendo os três primeiros de 5 segundos e o último de 15 segundos. No final dos 16 ciclos de irradiação e contagem correspondentes a uma medida, o valor das contagens do monitor foi anotado e os espectros obtidos foram retirados em fita perfurada. Estas fitas foram posteriormente analisadas e o número de contagens do ^{16}N na amostra foi calculado como sendo a soma das áreas dos três picos principais dos espectros (6,128, 5,617 e 5,106 MeV) correspondentes aos quatro sub-intervalos de contagem. Na Figura 20 são mostrados os espectros obtidos nas irradiações de uma amostra.

O cálculo da área dos picos foi feito ajustando-se uma gaussiana mais uma reta aos pontos experimentais de cada pico. Para isto foi usado o programa AREAN-16, desenvolvido em linguagem BASIC para o computador HP-2116C (Ver Apêndice).

O coelho utilizado nas irradiações das amostras foi fabricado com alumínio de maíxo teor de oxigênio com as dimensões mostradas na Figura 6. Foram feitas irradiações do coelho sem amostras, nas mesmas condições utilizadas para as amostras de UO_2 , para verificar a contribuição do coelho e da radiação de fundo nos picos do ^{16}N dos espectros. Constatou-se que esta contribuição é muito pequena, correspondendo aproximadamente a 2,5 contagens nos picos do ^{16}N , enquanto que irradiações de amostras de UO_2 fornecem da ordem de 1800 contagens, nas mesmas condições.

Uma verificação periódica do equipamento foi feita, irradiando-se uma amostra cilíndrica de lucite com 22,1 mm de diâmetro e 9,4 mm de altura. A relação de contagens amostra/monitor, para esta amostra, deve manter-se constante durante o período das medidas e qualquer defeito no sistema que acarrete modificação da constante de calibração, K (Equação 2.11), pode ser rapidamente detetada. Estas irradiações foram feitas em 10 séries consecutivas de irradiação e contagem, e o desvio padrão obtido, também fornece informações do funcionamento do equipamento.

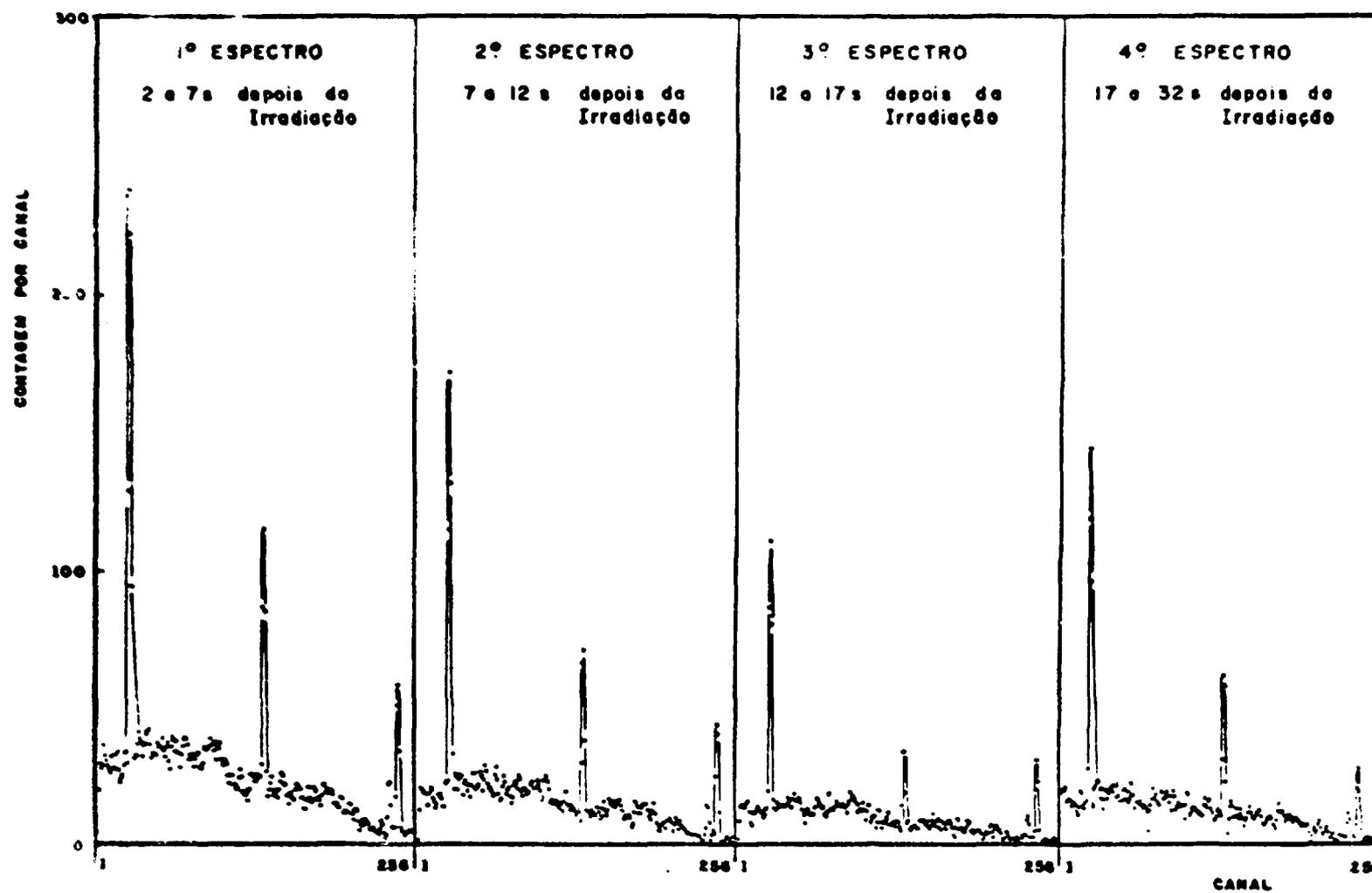


Figura 20 — Quatro espectros do ^{16}N correspondentes aos quatro sub-intervalos de contagem, obtidos na primeira medida da amostra 2.

Depois das irradiações da amostra 1, tivemos problemas com o monitor, tendo sido necessário trocar a válvula fotomultiplicadora e o pré-amplificador o que provocou uma mudança na constante de calibração. Na Tabela X, as duas primeiras séries de irradiações da amostra de lucite foram feitas antes da modificação do monitor. Para corrigir a mudança da constante de calibração, as contagens do monitor, para a primeira amostra, foram multiplicadas pelo fator $F = \bar{C}_1/\bar{C}_2 = 0,83552$, onde \bar{C}_1 é a média das relações de contagens amostra/monitor para a amostra de lucite antes da modificação do monitor, e \bar{C}_2 é a média depois da modificação.

Foram feitas 24 séries de 16 ciclos de irradiação e contagem, de 6 amostras diferentes de UO_2 . As contagens das amostras foram normalizadas para a mesma massa, multiplicando seu valor para $3,272/m$, onde $3,272\text{ g}$ é a massa da amostra 1 e m é a massa em gramas da amostra cujas contagens estão sendo normalizadas. A Tabela XI mostra os resultados destas irradiações onde os desvios padrões esperados foram calculados pela expressão 4.5 (item 4.2.3).

Tabela X

Irradiações de amostras de lucite para a verificação da estabilidade do sistema

	Relação de contagens amostra monitor (^o)	Desvio padrão da média ($\times 10^{-3}$)	
antes da modificação do monitor	0,12779 0,12694	0,495 0,428	média das relações de contagem amostra/monitor $C_1 = 0,12735$
depois da modificação do monitor	0,15283 0,15143 0,15470 0,15094 0,15323 0,15101	1,26 1,10 1,38 1,34 1,32 1,08	média das relações de contagem amostra/monitor $C_2 = 0,15242$

(^o) Média de 10 medidas.

A média dos desvios padrões percentuais esperados nas relações de contagens, supondo existirem somente os erros associados à estatística de contagens, foi de 2,4%, enquanto que a média dos desvios padrões observados foi de 2,5%. Isto indica que, nas condições utilizadas, a precisão do método é limitada principalmente pelos erros associados à estatística de contagens. O desvio padrão na relação de contagens amostra/monitor se propaga, acarretando um desvio padrão na relação O/U de 2,8%.

Para verificar a utilidade da divisão do intervalo de contagem em sub-intervalos, os quatro espectros obtidos em cada medida foram agrupados, somando-se canal a canal, e analisados da mesma maneira que anteriormente. Os resultados obtidos estão na Tabela XII. A média dos desvios padrões das relações de contagens neste caso foi de 3,34%, o que é significativamente maior que a média dos desvios obtidos analisando-se os espectros separados.

Tabela XI

Irradiação de Amostras de UO_2

Amostra nº	contagem da amostra	contagem da amostra normalizada para a massa	contagem do monitor	relação de contagens amostra ----- monitor $\times 10^{-3}$	desvio padrão espe- rado $\times 10^{-4}$	média da relação de contagens $\times 10^{-3}$	desvio padrão obtido $\times 10^{-4}$
1	2020,4	2020,4	289319	6,9833	1,542	6,8387	1,125 (1,65%)
	2030,5	2030,5	296280	6,8533	1,524		
	1870,6	1870,6	278643	6,7132	1,571		
	1456,0	1456,0	213956	6,8051	1,793		
2	2233,1	2220,2	325707	6,8166	1,437	6,7304	1,696 (2,52%)
	2042,5	2030,7	306186	6,6323	1,483		
	1806,0	1795,6	263839	6,8056	1,597		
	1726,6	1716,6	263763	6,5082	1,598		
	1752,0	1741,9	252843	6,8892	1,631		
3	1901,1	1914,6	277035	6,9109	1,618	7,1587	1,917 (2,68%)
	1769,9	1782,4	250899	7,1042	1,700		
	1738,0	1750,3	239838	7,2979	1,739		
	1604,8	1616,2	220733	7,3218	1,813		
4	1472,8	1500,8	220665	6,8012	1,805	7,0138	1,660 (2,37%)
	1739,9	1772,9	247602	7,1605	1,704		
	1775,7	1809,4	253789	7,1297	1,683		
	1681,7	1712,6	246072	6,9640	1,709		
5	1817,0	1809,8	257047	7,0408	1,639	6,8917	1,936 (2,81%)
	1707,2	1700,4	240281	7,0769	1,695		
	1631,4	1624,9	241876	6,7181	1,690		
	1593,6	1587,3	235817	6,7310	1,711		
6	1701,6	1703,7	230811	7,3813	1,768	7,1441	2,128 (2,98%)
	1577,1	1579,0	226522	6,9708	1,783		
	1546,8	1548,7	218735	7,0800	1,814		

Tabela XII

Irradiação de amostras de UO_2 analisando-se os espectros agrupados

Amostra nº	Contagem da amostra	Contagem do monitor	Relação de contagens amostra —— monitor ($\times 10^{-3}$)	Média da relação de contagens ($\times 10^{-3}$)	Desvio padrão obtido ($\times 10^{-4}$)
1	1994,9	289319	6,943	6,673	2,31 (3,46%)
	1970,5	296280	6,651		
	1778,2	278643	6,382		
	1436,9	213956	6,716		
2	2209,3	325707	6,783	6,700	1,06 (1,59%)
	2031,8	306186	6,636		
	1795,0	263839	6,803		
	1727,4	263763	6,549		
	1700,9	252843	6,727		
3	1870,2	277035	6,751	6,876	3,21 (4,66%)
	1625,6	250899	6,479		
	1710,0	239838	7,130		
	1576,5	220733	7,142		
4	1446,0	220665	6,553	6,744	1,41 (2,09%)
	1694,9	247602	6,845		
	1739,9	253789	6,856		
	1654,4	246072	6,723		
5	1811,7	257047	7,048	6,832	3,52 (5,16%)
	1725,5	240281	7,181		
	1619,7	241876	6,896		
	1509,5	235817	6,401		
6	1687,8	230811	7,312	7,041	2,53 (3,59%)
	1643,0	226522	6,812		
	1530,9	218735	6,999		

Após as irradiações, foi feita a análise da relação O/U das amostras, por método químico, na Coordenadoria de Engenharia Química do IEA. O método utilizado para a análise está descrito na Publicação IEA nº 276⁽¹⁵⁾. Os resultados desta análise estão na tabela XIII.

Tabela XIII
Relação O/U das Amostras

Amostra nº	Relação O/U M. Químico	Relação O/U por este método.	Média da relação O/U	Desvio Padrão
1	2,033	Padrão	Padrão	Padrão
2	2,031	2,023 1,961 2,020 1,920 2,048	1,994	0,053
3	2,113	2,055 2,121 2,187 2,195	2,140	0,065
4	2,098	2,018 2,140 2,130 2,073	2,090	0,056
5	2,029	2,099 2,112 2,990 2,995	2,049	0,065
6	2,112	Padrão	Padrão	Padrão

As amostras 1 e 6 foram escolhidas aleatoriamente para amostras padrões. A equação de calibração do sistema (Eq. 2.15) foi ajustada pelo método dos mínimos quadrados, às médias das relações de contagens amostra/monitor, destas duas amostras, tomando o valor da relação O/U medido pelo método químico, como valor correto. O valor obtido deste ajuste para a constante de calibração K foi de $57,46 \text{ g}^{-1}$. Com este valor as relações O/U das amostras restantes foram calculadas pela Eq. 2.15. Os resultados, juntamente com as médias e os desvios padrões para cada amostra aparecem na Tabela XIII.

A equação de calibração do sistema (Eq. 2.15) foi também ajustada, pelo método dos mínimos quadrados, às médias das relações de contagens amostra/monitor das 6 amostras de UO_2 . O valor da constante de calibração obtido deste ajuste foi $57,56 \pm 0,23 \text{ g}^{-1}$ e a soma dos quadrados dos desvios dividida pelo número de graus de liberdade foi de 0,7, o que indica que o ajuste foi bom, ou seja, que os pontos experimentais seguem a equação de calibração. A curva de calibração do sistema aparece na Figura 21.

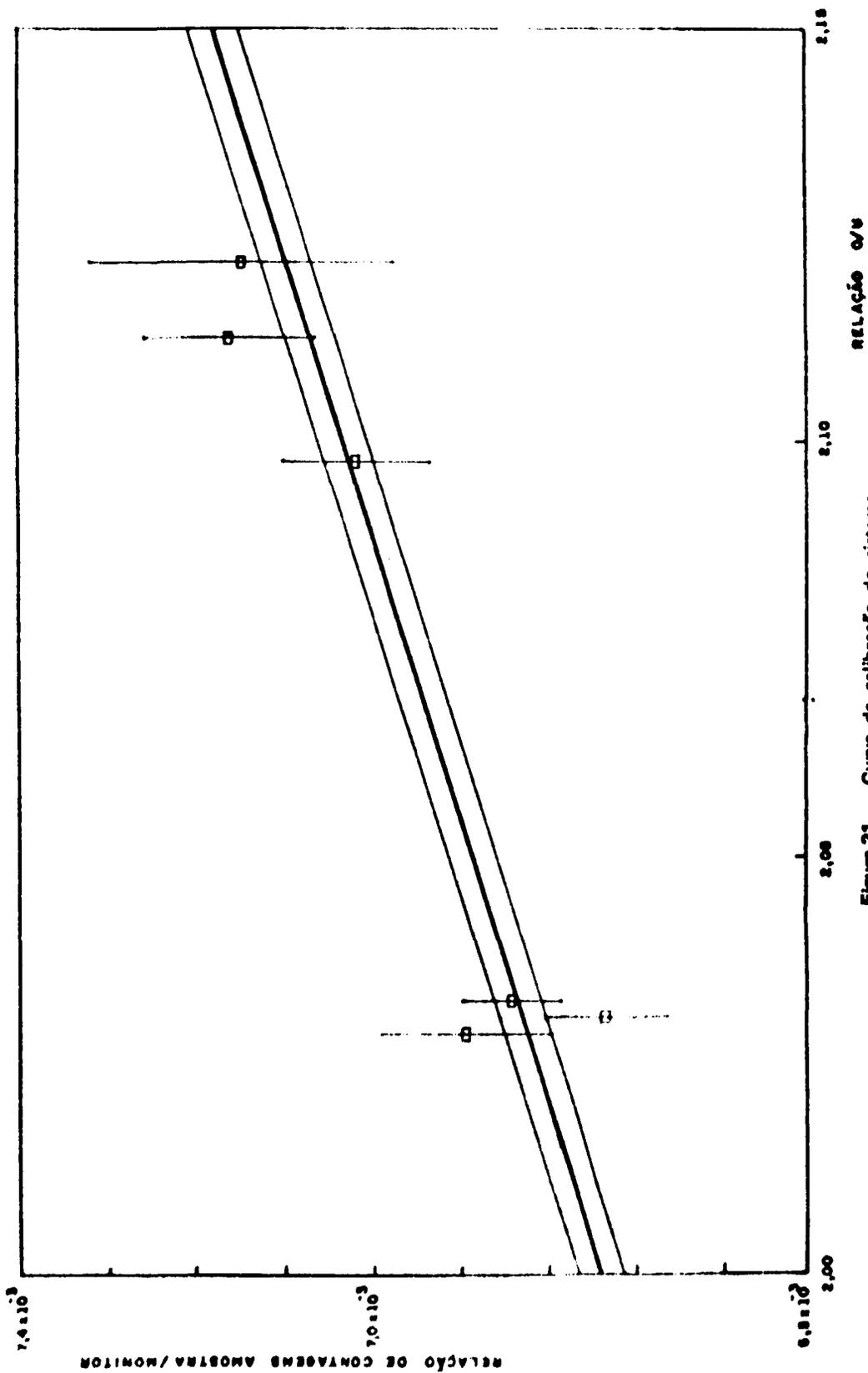


Figura 21 - Curvas de calibração do sistema

6 – CONCLUSÕES E SUGESTÕES

O método apresentado, para a determinação da relação O/U em óxidos de urânio, tem a vantagem de ser rápido e não destrutivo. Nas condições utilizadas, de 16 ciclos por determinação, o tempo total de irradiação e contagem foi de 13,4 min.

O desvio padrão, nestas condições, foi de 2,8% ou 0,056 unidades de O/U. Esta precisão é suficiente para a determinação da relação O/U em pós na fase de pré-sinterização, mas é insuficiente para o controle de pastilhas sinterizadas a serem usadas em reatores de potência. A baixa precisão foi causada principalmente pela estatística de contagem, cujo desvio padrão esperado na relação O/U foi de 2,7%.

Diversas modificações podem ser feitas no sistema de modo a melhorar a precisão. As principais modificações são:

- a) Aumento da intensidade da fonte de nêutrons: A máxima saída de nêutrons do acelerador PN 400 é 10^{10} n.s⁻¹, contudo, geradores de nêutrons de 14 MeV com saída de 5×10^{12} n.s⁻¹ são encontrados comercialmente⁽²⁶⁾;
- b) Aumento da eficiência de contagem. Existem atualmente detectores Ge(Li) com eficiência de 18%, para a energia de 1,33 MeV do ⁶⁰Co, em relação à eficiência do NaI(Tl) de 3" x 3", ou sistemas que utilizam dois detectores com eficiência total de 36%. O aumento da eficiência para a energia de 6,13 MeV do ¹⁶N é relativamente maior. O detector utilizado tem uma eficiência de 5,2% em relação à do NaI(Tl) de 3" x 3" para a energia de 1,33 MeV;
- c) Aumento da capacidade de contagem do pré-amplificador: O pré-amplificador utilizado, ORTEC modelo 120-2b, tem uma máxima capacidade de contagem de 45.000 MeV.s⁻¹, que pode ser melhorada de um fator 5 com apenas um pequeno aumento no nível de ruído pela troca da resistência de realimentação. O aumento do nível de ruído acarreta uma piora na resolução, que não é muito importante para o nosso caso, já que no espectro de altura de pulso das amostras de UO₂ irradiadas (Figura 20), não aparecem picos próximos aos do ¹⁶N. Deste modo, provavelmente, é possível um aumento na capacidade de contagem de um fator 10. Outra alternativa é utilizar um pré-amplificador que não tenha limitações para a taxa de contagem, como o modelo 120-3b da ORTEC;
- d) Modificações do absorvedor: A utilização de um absorvedor, entre a amostra e o detector, com densidade mais alta como o tungstênio ($19,3 \text{ g.cm}^{-3}$), pode melhorar a atenuação relativa dos raios gama de baixa energia em relação aos do ¹⁶N;
- e) Aumento da massa das amostras: As amostras utilizadas pesaram aproximadamente 3 gramas, enquanto as pastilhas sinterizadas usadas em reatores de potência pesam aproximadamente 8 gramas;
- f) Aumento do número de ciclos de irradiação e contagem: O desvio padrão varia aproximadamente com o inverso da raiz quadrada do número de ciclos de irradiação e contagem (Ver item 4.4). Sem nenhuma outra modificação, uma precisão de 1% poderá ser obtida utilizando-se 125 ciclos por determinação, o que demoraria 1 hora e 45 minutos. Mas, para diminuir o desvio padrão para 0,5% seriam necessárias 7 horas, o que é um tempo excessivamente grande.
- g) Utilização de método para corrigir as perdas de contagem: Com as modificações sugeridas a taxa de contagem fica muito aumentada tornando mais importantes as perdas de contagem por tempo morto e superposição de pulsos. O método do pulsador proposto por Strauss⁽⁶⁰⁾ e Anders⁽³⁾ tem sido bastante utilizado para a correção de perdas de

contagem por superposição de pulsos, variações da linha de base e tempo morto. Bolotin⁽⁹⁾ e Gorner^(2,3) aplicaram este método em experiências com taxa de contagem variável. Bolotin⁽⁹⁾ obteve uma precisão na correção das perdas de contagem de 0,2% incluindo-se a estatística de contagem em situação onde a perda de contagem no pico era de 80%;

- h) Modificação do terminal de irradiação: A utilização de um terminal de irradiação onde a amostra e o padrão ficam girando durante a irradiação, praticamente elimina os erros provenientes das variações na geometria de irradiação^(33,42). A determinação das contagens da amostra e do padrão pode ser feita sucessivamente, com o mesmo sistema de contagem, ou simultaneamente, com dois sistemas de contagem. Mott⁽⁴²⁾ obteve com um terminal deste tipo um desvio padrão de 0,3%, exatamente igual ao esperado considerando-se somente a estatística de contagem, para um único ciclo de irradiação e contagem. No nosso sistema, o erro resultante da incerteza do posicionamento da amostra, durante a irradiação, foi responsável por um desvio padrão de 1,3% nas contagens da amostra, para um ciclo de irradiação e contagem, ou 0,32% para os 16 ciclos.

As modificações sugeridas aumentarão significativamente a precisão do sistema. Por considerações de taxa de contagem é esperado que um desvio padrão da ordem de 0,004 unidades de O/U seja obtido para um tempo de irradiação e contagem de 1 hora, que corresponde a 72 ciclos. Esta precisão é suficiente para a utilização em operações de controle de pastilhas sinterizadas para reatores de potência. Se uma precisão maior for necessária, pode-se aumentar o número de ciclos de irradiação e contagem.

Embora neste trabalho tenham sido usadas somente amostras de dióxido de urânio natural hiperestequiométrico, este método pode ser usado para a determinação da relação O/M em óxidos de urânio enriquecido, tório, plutônio ou óxidos mistos destes elementos. Como as secções de choque de fissão para nêutrons de 14 MeV do ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th e ^{239}Pu são respectivamente 2,0, 1,2, 0,4 e 2,75 barns⁽⁵⁸⁾, considerando-se as atividades dos produtos de fissão, pode-se esperar condições mais favoráveis no caso dos óxidos de tório e menos favoráveis nos demais casos.

APÊNDICE

PROGRAMA PARA CÁLCULO DAS ÁREAS DOS PICOS

A parte do espectro de altura de pulso da amostra, correspondente às energias entre 4,9 e 6,3 MeV, é armazenada no analisador multicanal numa área de 256 canais. Nesta faixa de energia ficam situados quatro picos do espectro do ^{16}N , que correspondem às energias de 6,128 MeV, 5,617 MeV (1º escape do 6,128), 5,106 MeV (2º escape do 6,128) e 6,095 MeV (2º escape do 7,117). Os três primeiros picos aparecem muito bem isolados no espectro, permitindo a utilização do computador 2116 C da Hewlett Packard para o cálculo de suas áreas. Os espectros são obtidos do multicanal, em fita perfurada em codificação BCD.

Foi desenvolvido um programa em linguagem BASIC para o cálculo das áreas dos picos do espectro. Este programa divide-se em 5 partes: leitura do espectro, localização dos picos, cálculo dos valores iniciais dos parâmetros, ajuste por mínimos quadrados e cálculo da área dos picos.

Na primeira parte do programa, o espectro em fita perfurada é lido utilizando-se a subrotina RPT, que foi desenvolvida em linguagem Assembler, especialmente para leitura de fitas perfuradas BCD

do multicanal TMC CN 1024. Embora o espectro tenha 256 canais, os seus dados são de 255, devido à limitação da linguagem BASIC, que não permite utilizar índice superior a 255 em variáveis indexadas.

Na segunda parte do programa, os picos do espectro são localizados através da derivada do espectro alisado ("Smoothed"). O alisamento tem como finalidade diminuir as flutuações estatísticas das contagens do espectro, e é conseguido pelo ajuste de um polinômio do segundo grau a cada cinco canais consecutivos do espectro. O valor alisado para o canal central (de cada cinco canais) é o valor obtido pelo polinômio ajustado.

Depois de localizado, o pico passa por um teste de significância, que elimina os picos aparentes dados pela flutuação estatística das contagens. A análise do espectro continua até que sejam localizados todos os picos.

Na terceira parte é feito o cálculo dos valores iniciais dos parâmetros a serem ajustados na parte seguinte. O valor inicial dos parâmetros tem grande influência no tempo de convergência e até na convergência, ou não, do ajuste, de modo que o cálculo deve ser cuidadoso.

Na quarta parte do programa, é feito um ajuste pelo método dos mínimos quadrados de uma gaussiana mais uma reta aos canais próximos ao pico. Esta parte do programa foi feita com base no programa GENFIT desenvolvido pelo Dr. Shlomo Shalev.

A função usada para o ajuste foi:

$$Z = P(1) \cdot \exp\left(-\frac{(X(I) - P(2))^2}{2 \cdot P(3)^2}\right) + P(4) + P(5) \cdot (X(I) - P(2))$$

O primeiro termo da função é uma gaussiana com altura P(1), centro P(2) e largura à meia-altura $2,35 \cdot P(3)$. Os outros termos correspondem a uma reta com parte constante igual a P(4) e inclinação igual a P(5).

A convergência, normalmente, é rápida, demorando cerca de 4 minutos por pico analisado. Em alguns casos, o programa divergia, tendendo para um valor muito alto de P(1) e um valor próximo de zero para P(3). Este problema foi contornado, colocando-se uma limitação no parâmetro P(3). Quando o valor deste parâmetro cai abaixo de um certo limite convenientemente escolhido, este parâmetro é deixado constante e igual ao valor limite.

A qualidade do ajuste pode ser verificada pelos erros nos parâmetros ajustados e pelo valor da soma dos quadrados dos desvios, dividida pelo número de graus de liberdade, que são impressos no final do ajuste.

Na última parte do programa o valor da área do pico é calculado com os valores dos parâmetros da gaussiana. O valor da área obtida é impresso juntamente com os valores reais e ajustados das contagens.

Após esta parte o programa retorna à quarta parte até todos os picos serem analisados.

Para uma utilização frequente do programa, é interessante transformá-lo para linguagem FORTRAN, o que reduz consideravelmente o tempo de computação. Em outros programas, onde a conversão de linguagem foi feita, o tempo de computação ficou reduzido para menos de um décimo do tempo original.

Segue uma listagem do programa AREAN-16.

LISTAGEM DO PROGRAMA AREAN-16
 PROGRAMA AREAN-16

```

1 DIM M(255)
2 REM ***** PARTE I * LEITURA DO SPECTRO *****
3 LET K1=1
4 LET L=K2+255
5 LET K3=0
6 FOR I=1 TO 255
7 CALL (1,A)
8 LET S(I)=A
9 NEXT I
10 LET T1=7
11 PRINT
12 PRINT
13 PRINT
14 PRINT
15 REM ***** PARTE II * LOCALIZACAO DOS PICOS *****
16 LET J=1
17 LET K=-1
18 LET I=K2
19 LET D2=2*S(I)+S(I-1)-S(I-2)-2*S(I-4)
20 IF K<0 THEN 23
21 IF K=0 THEN 34
22 IF K>0 THEN 60
23 LET K=0
24 LET D1=D2
25 LET I=I-1
26 IF I-6<0 THEN 122
27 IF I-6=0 THEN 29
28 IF I-6>0 THEN 19
29 IF K3 <= 0 THEN 24
30 GOTO 84
34 IF K3 <= 0 THEN 50
36 IF D2 <= 0 THEN 46
38 IF D2-M2 <= 0 THEN 24
40 LET M2=D2
42 LET J2=I-2
44 GOTO 24
46 LET K3=0
48 GOTO 84
50 IF D2-D1 <= 0 THEN 24
52 LET M1=D1
54 LET J1=I-1
56 LET K=1
58 GOTO 24
60 IF D2 >= 0 THEN 70
62 IF D2-M1 >= 0 THEN 24
64 LET M1=D2
66 LET J1=I-2
68 GOTO 24
70 IF D2-D1 >= 0 THEN 24
72 LET M1=D1

```

```

74 LET T=0
76 LET T=T+1
78 LET T=T*W
80 GOTO 24
82 REM ***** ENTRADA DOS PICOS *****
84 IF (J1)+(J2)>N THEN 90
86 LET T=0
88 GOTO 22
90 LET T1=(M2-M1)/(10*(S(J1)+S(J2)))*.5
92 IF T-T1 >= 0 THEN 96
94 GOTO 23
96 LET J3=(J1+J2)/2
98 LET J4=INT(J3)
100 LET Z(J)=J3
102 LET W(J)=J1-J2-2
104 LET Q(J)=S(J4-2)+S(J4-1)+S(J4)+S(J4+1)+S(J4+2)
106 LET B=S(J4-7)+S(J4-6)+S(J4-5)+S(J4-4)+S(J4-3)
108 LET B=B+S(J4+3)+S(J4+4)+S(J4+5)+S(J4+6)+S(J4+7)
110 LET Q(J)=Q(J)-B/2
112 REM ***** SAIDA DOS PICOS *****
114 PRINT J;"CANAL"Z(J);"LARGURA="W(J)"AREA="Q(J)
118 LET J=J+1
120 GOTO 23
122 REM
125 REM
150 LET J8=J-1
152 FOR J9=1 TO J8
154 PRINT
156 PRINT "PICO CANAL"Z(J9)
158 PRINT
160 LET E2=1
162 LET E9=0
164 LET N=
166 FOR I=1 TO 9
168 LET X(I)=1
170 LET Q(I)=0
172 LET Y(I)=S(INT(Z(J9))-5+I)
174 IF Y(I)=0 THEN 180
176 LET R(I)=Y(I)
178 GOTO 152
180 LET R(I)=1
182 NEXT I
186 LET K=5
188 REM ***** PARTE 3 - CALC. DOS PARAM. INICIAIS *****
189 LET B4=INT(Z(J9))
190 LET B3=Z(J9)
191 LET B6=S(B4-7)+S(B4-6)+S(B4-5)+S(B4-4)+S(B4-3)
192 LET B7=S(B4+3)+S(B4+4)+S(B4+5)+S(B4+6)+S(B4+7)
193 LET P(4)=(B7+B6)/10
194 LET P(5)=(B7-B6)/50
197 LET P(3)=.67
198 IF B4-B3=0 THEN 201
199 LET P(2)=5.5+(-S(B4)/(S(B4)+S(B4+1))+S(B4+1)/(S(B4)+S(B4+1)))*.6
200 GOTO 202
201 LET P(2)=5+.8*(-S(B4-1)/S(B4)+S(B4+1)/S(B4))
202 LET P(1)=(S(B4)-P(4))/EXP(-(5-P(2))^2/(2*P(3)+8))

```

```

211 PRINT "P1="P(1)"P2="P(2)"P3="P(3)"P4="P(4)
212 PRINT "P1="P(1)
213 PRINT "P2="P(2)
214 PRINT "P3="P(3)
215 PRINT "P4="P(4)
216 LET P(1)=P(1)
217 LET P(2)=P(2)
218 LET P(3)=P(3)
219 LET P(4)=P(4)
220 PRINT "P4 = PARAMETROS"
221 PRINT
222 PRINT "P1="P(1)"P2="P(2)"P3="P(3)"P4="P(4)
223 PRINT
224 REM ***** PARTE A * AJUSTE POR MIN. QUADRADOS *****
225 LET E=1
226 LET E2=0
227 REM LINHA 227 NAO PREPARA O N. DE ITERACOES B2=1 PRINTAR LINHA 228
228 LET B2=1
229 MAT A=ZEREM(K)
230 MAT V=ZEREM(K)
231 MAT C=ZEREM(K)
232 MAT M=ZEREM(K)
233 LET S2=0
234 GOSUB 1000
235 REM SUB 1000 PREPARA AS MAT. M , V
236 MAT C=INV(M)
237 MAT A=C+V
238 LET E2=E2+1
239 REM
240 IF E2>2 THEN 415
241 PRINT
242 REM
243 LET E=0
244 LET S1=S2/(N-K)
245 FOR J=1 TO K
246 IF J=3 AND K=5 THEN 423
247 GOTO 425
248 IF P(J)-A(J)>.5 THEN 425
249 GOTO 210
250 LET B=P(J)-A(J)
251 IF P(J)=0 THEN 437
252 LET D=A(J)*100/P(J)
253 LET D=ABS(D)
254 IF D<5.00000E-03 THEN 439
255 GOTO 438
256 LET D=100
257 LET E=1
258 LET S3=SQR(S1+C(J,J))
259 IF E9=0 AND B2=0 THEN 455
260 IF J=1 THEN 450
261 PRINT
262 PRINT J/B+"-S3
263 LET P(J)=B
264 NEXT J
265 IF E=0 THEN 500
266 REM LINHA 462 DA O N. MAX. DE ITERACOES PERMITIDO
267 IF E2 >= 15 THEN 500
268 REM RE-ITERATE
269 GOTO 280
270 REM
271 IF E9>0 THEN 500

```

```

506 LET B5=0
507 GOTO 509
508 REM ***** PARTE 5 * CALC. DAS AREAS DOS PICOS *****
509 PRINT
510 PRINT
511 PRINT
512 PRINT #2: "ITERACOES"
513 PRINT
514 IF K=4 THEN 519
515 LET B5=B5+.52
516 LET B5=0
517 FOR J=1 TO 7
518 LET B5=B5+P[1]*EXP(-(J-P[2])2/(2*P[3]+2))
519 LET C5=C5+P[4]+P[5]*(J-P[2])
520 NEXT J
521 PRINT
522 PRINT "    *** AREA = "B5
523 PRINT
524 PRINT "    *** AREA BASE="05
525 PRINT
526 PRINT
527 PRINT
528 PRINT
529 PRINT
530 PRINT
531 REM PARA PRINTAR OS Y-CALCULADOS REMOVA A LINHA 532
532 GOTO 540
533 PRINT " Y          Y-CAL          Y - Y-CAL"
534 PRINT
535 FOR I=1 TO N
536 PRINT Y(I), F(I), Y(I)-F(I)
537 NEXT I
538 PRINT
539 PRINT "SQD= "S2
540 PRINT "SQD/GL="S1
541 PRINT
542 NEXT J9
543 PRINT ""
544 GOTO 3
999 REM ** SUBROTINA PARA O AJUSTE **
1000 FOR I=1 TO N
1001 LET F(I)=T(I)=0
1002 LET Z=0
1003 IF K=4 THEN 1400
1004 GOTO 1500
1005 LET O=F(I)-Y(I)
1006 LET L1=Z*Z*Q(I)
1007 LET L2=R(I)
1008 LET V=1/(L1+L2)
1009 FOR J=1 TO K
1010 FOR L=1 TO K
1011 LET M(J,L)=M(J,L)+V*Q(J)*Q(L)
1012 LET T(I)=T(I)+Q(J)*Q(L)*C(J,L)
1013 NEXT L
1014 LET V(J)=V(J)+V*O*Q(J)
1015 NEXT J
1016 LET S2=S2+O*O*V
1017 NEXT I
1018 RETURN
1400 LET B6=X(I)-P[2]
1401 LET H9=EXP(-B6*B6/.541)

```

```
1420 IF H9>1.00000E-12 THEN 1430
1425 LET H9=1.00000E-12
1430 LET F(1)=P(1)*H9+P(3)+P(4)*B8
1440 LET G(1)=H9
1450 LET G(2)=P(1)*H9*B8/.27-P(4)
1460 LET G(3)=1
1470 LET G(4)=B8
1480 LET Z=-P(1)*H9*B8/.27+P(4)
1490 GOTO 1020
1500 LET B8=X(1)-P(2)
1520 LET H9=EXP(-B8*B8/(2*P(3)*P(3)))
1521 IF H9>1.00000E-12 THEN 1530
1522 LET H9=1.00000E-12
1530 LET F(1)=P(1)*H9+P(4)+P(5)*B8
1540 LET G(1)=H9
1550 LET G(2)=P(1)*H9*B8/(P(3)*P(3))-P(5)
1560 LET G(3)=P(1)*H9*B8*B8/P(3)+3
1570 LET G(4)=1
1575 LET G(5)=B8
1580 LET Z=-P(1)*H9*B8/(P(3)*P(3))+P(5)
1600 GOTO 1020
3000 END
```

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. ADAMSON, M. G. & AITKEN, E. A. Pu, U redistribution in (U,Pu)O₂ fuels by temperature gradients. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Vienna. *Behavior and chemical state of irradiated ceramic fuels: proceedings ...*, 1972. Vienna, 1974. 0.225-35.
2. ALBURGER, D. E. & ENGELBERTINE, G. A. P. Half-lives of Be¹¹, C¹³, N¹⁶, O¹⁹ and Al²⁸. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 2:1594-6, 1970.
3. ANDERS, O. U. Experiences with the Ge(Li) detector for high resolution gamma ray spectrometry and practical approach to the pulse pileup problem. *Nucl. Instrum. Meth.*, Amsterdam, 68:205-8, 1969.
4. _____ & BRIDEN, D. W. A rapid, nondestructive method of precision oxygen analysis by neutron activation. *Analyt. Chem.*, Easton, Pa., 36:287-92, 1964.
5. BARING, N. E. & JONSSON, G. Controlled-potential coulometric determination of the oxygen-metal ratio in mixed uranium-plutonium oxides. *Analytica chim. Acta*, Amsterdam, 50:229-36, 1969.
6. BATES, J. L. *Melting points of hypostoichiometric uranium dioxide*. Richland, Wash., Pacific Northwest Lab., June 1966. (BNWL-224).
7. BIENLEIN, J. K. & KALSH, E. The half-life of N¹⁶. *Nucl. Phys.*, Amsterdam, 50:202-8, 1964.
8. BLACHOT, J. & TOURREIL, R. table of gamma rays from fission products. *J. Radioanal. Chem.*, Lausanne, 11:351-435, 1972.
9. BOLOTIN, H. H. et alii. Simple technique for precise determinations of counting losses in nuclear pulse processing systems. *Nucl. Instrum. Meth.*, Amsterdam, 83:1-12, 1970.
10. BURD, R. M. & GOWARD, G. W. *The polarographic determination of hexavalent uranium oxides: the determination of oxygen uranium ratios*. Pittsburgh, Pa., Bettis Plant, Apr. 1959. (WAPD-205).
11. CHRISTENSEN, J. A. *Stoichiometry effects in oxide nuclear fuels. 1. Power rating required for melting and oxygen redistribution center UO_{2+x} fuels*. Richland, Wash., Pacific Northwest Lab., Dec. 1967. (BNWL-536).
12. DRUMMOND, J. L. & SINCLAIR, V. M. Some aspects of the measurement of the oxygen-to-metal ratio in solid solutions of uranium and plutonium dioxides. In: OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY, Oak Ridge. *Analytical chemistry in nuclear reactor technology, sixth conference, Gatlinburg Tennessee, October 9-11, 1962*. Oak Ridge, 1963. (TID-7655). p.217-39.
13. ENGELSMAN, J. J. et alii. Volumetric determination of the U/O ratio in uranium oxides. *Talanta*, London, 15:171-6, 1968.
14. ERDTMANN, G. & SOYKA, W. *Die γ -Linien der Radionuklide, Bd.1: Einführung und Erläuterungen-Tabelle I - Radionuklide geordnet nach Ordnungs- und Massenzahl*. Jülich, Kernforschungsanlage, Sep. 1973. (JUL-1003-AC, v.1).

15. FEDERGRUN, L. & ABRÃO, A. *Determinação volumétrica da relação O/U em pastilhas de óxidos cerâmicos UO_{2+x} e $UO_{2+x}ThO_2$* . São Paulo, Instituto de Energia Atômica, out. 1972. (IEA-276).
16. FERRO, C. et alii. *Nondestructive method for the determination of the ratio O/U in sintered pellets*. Los Alamos, N. Mex., Los Alamos Scientific Lab., Feb. 1970. (LA-4160-TR).
17. FORLANO, R. J. et alii. *Elasticity and anelasticity of uranium oxides at room temperature*. Argonne, Ill., Argonne National Lab., Dec. 1965. (ANL-7101).
18. FRANÇA, JR., J. M. *Unidade piloto de tetrafluoreto de urânio de "leito móvel" em operação no IEA*. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, jan. 1975. (IEA-381).
19. FRIEDLANGER, G. et alii. *Nuclear and radiochemistry*. 2.ed. New York, Wiley, 1964.
20. GIBBY, R. L. *The effect of oxygen stoichiometry of the thermal diffusivity and conductivity of $U_{0,75}Pu_{0,25}O_{2-x}$* . Richland, Wash., Battelle Memorial Institute, Pacific Northwest Lab., Jan. 1969. (BNWL-927).
21. GIJBELS, et alii. An oxygen standard for the determination of oxygen in steel by 14 MeV neutron activation analysis. *Analytica chim. Acta*, Amsterdam, 43:183-98, 1968.
22. GILMORE, J. T. & HULL, D. E. Neutron flux monitoring for activation analysis of oxygen. *Analyt. Chem.*, Easton, Pa., 35:1623-5, 1963.
23. GORNER, W. An adaptation of the pulser method for the determination of losses in counting short-lived nuclides. *Nucl. Instrum. Meth.*, Amsterdam, 120:363-4, 1974.
24. HOEKSTRA, H. R. & KATZ, J. J. Direct determination of oxygen in less familiar metal oxides. *Analyt. Chem.*, Easton, Pa., 25:1608-12, 1953.
25. HOFMANN, P. & GOTZMANN, O. Chemical interactions of fission with stainless steel cladding. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna. *Behavior and chemical state of irradiated ceramic fuels: proceedings . . .*, 1972. Vienna, 1974. p.237-54.
26. HOLLAND, L. & HAWKESWORTH, M. R. Low voltage particle accelerators for neutron generation. *Non-destruct. test.*, Evanston, 4:330-7, Oct. 1971.
27. HOSTE, J. et alii. *The determination of oxygen in metals by 14 MeV neutron activation analysis*. Brussels, European Atomic Energy Community, 1967. (EUR-3585e).
28. IGATA, N. & DOMOTO, K. Fracture stress and elastic modulus of uranium dioxide including excess oxygen. *J. nucl. Mater.*, Amsterdam, 45:317-22, 1972/73.
29. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna. *Handbook on nuclear activation cross-sections*. Vienna, 1974. (Technical reports series, 156).
30. JONES, I. G. *The determination of oxygen-metal ratios in uranium-plutonium dioxides*. Harwell, Atomic Energy Research Establishment, July 1973. (AERE R-6962).

31. KELLER, D. J. *Progress on development of fuels and technology for advanced reactors during January through March 1971: quarterly report*. Columbus, Ohio, Battelle Memorial Institute, Apr. 1971. (BMI-1905)
32. KUBOTA, H. Determination of the stoichiometry of uranium dioxide: polarographic determination of uranium(VI) in uranium dioxide. *Analyt. Chem.*, Easton, Pa., 32:610-2, 1960.
33. LUNDGREN, F. A. & NARGOLWALLA, S. S. Use of dual sample-biaxial rotating assembly with a pneumatic tube transfer system for high precision 14-MeV activation analysis. *Analyt. Chem.*, Easton, Pa., 40:672-7, 1968.
34. LYON, W. L. & BAILY, W. E. The melting point of plutonia-urania mixed oxide fuels. *Trans. Am. nucl. Soc.*, Hinsdale, Ill., 8:376, 1965.
35. MacDOUGALL, C. S. et alii. Determination of oxygen in refractory oxides. *Analyt. Chem.*, Easton, Pa., 41:372-4, 1969.
36. MacEWAN, J. R. & STOUTE, R. L. Effect of irradiation on the thermal conductivity of UO_{2-x} , UO_2 and UO_{2+x} at 60°C. *J. nucl. Mater.*, Amsterdam, 21:70-6, 1967.
37. McNEILLY, C. E. & CHIKALLA, T. D. Determination of oxygen/metal ratios for uranium, plutonium, and (U,Pu) mixed oxides. *J. nucl. Mater.*, Amsterdam, 39:77-83, 1971.
38. MARCHANDISE, H. *Conductibilité thermique des bioxyde d'uranium: essai de synthèse* Bruxelles, Commission des Communautés Europeennes, sep. 1970. (EUR-4568 f).
39. MARKEN, T. L. et alii. *The determination of oxygen/metal ratios for uranium, plutonium and (U,Pu) oxides*. Harwell, Atomic Energy Research Establishment, Apr. 1964. (AERE-R-4608).
40. MARKING, T. L. & BONES, R. J. *The determination of some thermodynamic properties of uranium oxides*. Harwell, Atomic Energy Research Establishment, Nov. 1962. (AERE-R-4178).
41. MAURICE, M. J. & BUIJS, K. *Some considerations of the gravimetric determination of the oxygen to metal ratio in plutonium oxides and mixed uranium-plutonium oxides*. Luxembourg, European Atomic Energy Community, Sep. 1969. (EUR-4296 e).
42. MOTT, W. E. & ORANGE, J. M. Precision activation analysis with 14-Million electron volt neutrons. *Analyt. Chem.*, Easton, Pa., 37:1338-42, 1965.
43. MOUCHNINO, M. Migration des produits de fission radioactifs dans des combustibles U, Pu)O₂. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna. *Behaviour and chemical state of irradiated ceramic fuels: proceedings . . .*, 1972. Vienna, 1974. p.179-89.
44. NARGOLWALLA, S. S. et alii. Photon self-absorption corrections for the minimization of systematic errors in 14 MeV neutron activation analysis. *Analytica chim. Acta*, Amsterdam, 49:425-36, 1970.
45. _____ et alii. A technique for the evaluation of systematic errors in the activation analysis for oxygen with 14-MeV neutrons. *Analyt. Chem.*, Easton, Pa., 40:666-71, 1968.
46. NISHIOKA, I. *Impedimentos na caracterização de óxidos de U, Pu para sinterização*. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, jan. 1972. (IEA-259).

47. O'BOYLE, D. R. & MEYER, R. O. Redistribution of uranium and plutonium in mixed-oxide fuels during irradiation. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna. *Behavior and chemical state of irradiated ceramic fuels: proceedings...*, 1972. Vienna, 1974. p.41-66.
48. PAIANO, M. C. & COHENCA, J. M. *Mínimos quadrados para combinação linear de exponenciais*. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, nov. 1965 (IEA-106).
49. POWER reactors'76: technical data. *Nucl. Engrg int.*, London, 21(244), suppl.:42-67, 1976.
50. RIBAS, A. G. S. & ABRÃO, A. *Preparação de UO₂ apropriado para obtenção de UF₄*. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, nov. 1973. (IEA-318).
51. ROBERTSON, J. A. L. *Irradiation effects in nuclear fuels*. New York, Gordon and Breach, 1969.
52. SCOTT, R. et alii. The plastic deformation of uranium oxides above 800°C. *J. nucl. Mater.*, Amsterdam, 1:39-48, 1950.
53. SCOTT, S. A. & NOETA, A. A new determination of the ¹⁶N half-life. *Nucl. Phys.*, Amsterdam, 77:641-9, 1966.
54. SELTZER, M. S. et alii. The difference of a stoichiometry on compression creep of polycrystalline UO_{2+x}. *J. nucl. Mater.*, Amsterdam, 44:331-6, 1972.
55. SHAEFER, E. A. & HIBBITS, J. O. Determination of oxygen-to-uranium ratios in hypo- and hyperstoichiometric uranium dioxide and tungsten-uranium dioxide. *Analyt. Chem.*, Easton, Pa., 41:254-9, 1969.
56. SHALGOSKY, H. I. et alii. *The precise determination of O/U ratios uranium oxide by comparative polarography*. Harwell, Atomic Energy Research Establishment, June 1964. (AERE-R-4270).
57. SHIBA, K. Fission iodine and xenon release from the UO₂-U₃O₈ system with emphasis on radiation damage. *J. nucl. Mater.*, Amsterdam, 57:271-9, 1975.
58. STEHN, J. R. et alii. *Neutron cross section*. 2.ed. Brookhaven, Brookhaven National Lab., May 1964. (BNL-325, Suppl. 2). v.I, Z=1-20; v.IIc, Z=61 to 87.
59. STROM, E. & HARVEY, I. *Photon cross sections from 0.001 to 100 MeV for elements 1 through 100*. Los Alamos, N. Mex., Los Alamos Scientific Lab., Nov. 1967. (LA-3753).
60. STRAUSS, M. G. et alii. Ultra stable reference pulses for high resolution spectrometers. *IEEE Trans. nucl. Sci.*, Los Angeles, NS-15(3):518-30, 1968.
61. STROMATT, R. W. & CONNALLY, R. E. Determination of the stoichiometry of uranium dioxide by controlled potential coulometry. *Analyt. Chem.*, Easton, Pa., 33:345-8, 1961.
62. TOLK, A. & LINGERAK, W. A. Determination of the oxygen-to-uranium ratio in hyperstoichiometric uranium dioxide. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna. *Analytical chemistry of nuclear fuels: proceedings of a pannel...* Vienna, 1972. p.51-8.
63. _____ et alii. Determination of the oxygen-to-uranium ratio in hypostoichiometric uranium dioxide. *Analytica chim. Acta*, Amsterdam, 49:437-42, 1970.

64. VEAL, D. J. & COOK, C. F. A rapid method for direct determination of elemental oxygen by activation with fast neutrons. *Analyt. Chem.*, Easton, Pa., 34:178-84, 1962.
65. WILLIAMS, J. et alii. Sintering of uranium oxides of composition UO_2 or U_3O_8 in various atmospheres. *J. nucl. Mater.*, Amsterdam, 1:28-38, 1959.
66. ZITTEL, H. E. & DUNLAP, L. B. Controlled-potential coulometric titration of uranium(IV) and uranium(VI) in sodium tripolyphosphate medium. *Analyt. Chem.*, Easton, Pa., 35:125-8, 1963.

