



AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE
DE SÃO PAULO

**MEDIDA DE SECÇÕES DE CHOQUE PARA REAÇÕES DE
CAPTURA DE NÊUTRONS NO ^{57}Co , ^{137}Cs E ^{241}Am
CONSIDERANDO A FORMAÇÃO DE ESTADOS ISOMÉRICOS**

NORA LÍA MAIDANA

Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área de
Tecnologia Nuclear - Aplicações.

Orientador:
Dr. Mauro da Silva Dias

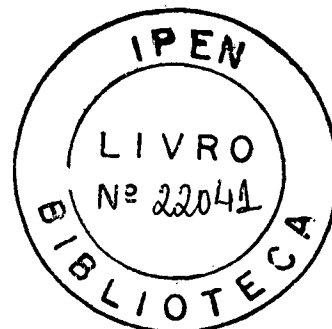
**São Paulo
2000**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

**AUTARQUIA ASSOCIADA À
UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO**

**MEDIDA DE SECÇÕES DE CHOQUE PARA REAÇÕES DE
CAPTURA DE NÊUTRONS NO ^{57}Co , ^{137}Cs E ^{241}Am
CONSIDERANDO A FORMAÇÃO DE ESTADOS ISOMÉRICOS**

NORA LÍA MAIDANA



**Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área de
Tecnologia Nuclear-Aplicações.**

**Orientador:
Dr. Mauro da Silva Dias**

**São Paulo
2000**

Aos meus filhos

Julían e Níria

e

Aos meus Pais

Agradecimentos:

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

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

à Dra. Linda Caldas, Diretora da Diretoria de Segurança Nuclear pela oportunidade oferecida para realizar este trabalho;

à colega Eliane Pocobi, pela amizade, preparação das amostras, confecção de fontes e ajuda ao longo deste trabalho;

à Sra. Filomena De Fina Beraldo pela colaboração dispensada neste trabalho;

ao Sr. Sabino e demais pessoas do IEO pela confecção de arranjos e suportes, assim como aos vidreiros do IPEN, pela selagem das amostras;

ao pessoal de operação do Reator IEA-R1m, pela colaboração nas irradiações;

ao pessoal de Proteção Radiológica, do Reator IEA-R1m pela colaboração nas irradiações;

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

ao Dr. Vito R. Vanin pelas sugestões no tratamento de dados;

aos colegas do NM e NP que de alguma forma colaboraram na realização deste trabalho;

aos colegas e amigos Maria Victória Manso Guevara, Oscar Edgar Rodriguez Hoyos e Fermin Garcia Velasco pelas sugestões nos cálculos teóricos;

aos meus pais, pelo amor e estímulo incondicionais;

à minha tia Celina, pelo carinho e apoio;

aos amigos Prof. Dr. José de Alvarenga e Laise de Alvarenga, pelo apoio moral e espiritual e pela profunda amizade;

à Sra. Olga Moretti Faro e a Gladis Basaldúa, pela amizade, carinho e ajuda oferecidos nestes quatro anos;

às colegas Cláudia e Kátia, pela compreensão e apoio;

ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, na pessoa do Superintendente Dr. Claudio Rodrigues, pela possibilidade oferecida de realização deste trabalho;

à Coordenadoria de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior, por conceder a bolsa de estudo;

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

NEUTRON CAPTURE CROSS SECTION MEASUREMENT FOR ^{57}Co , ^{137}Cs AND ^{241}Am CONSIDERING THE ISOMER STATES FORMATION

Nora Lía Maidana

ABSTRACT

The $^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{138}\text{Cs}$ thermal neutron reaction cross section, and the $^{57}\text{Co}(n,\gamma)^{58}\text{Co}$ and $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242g}\text{Am}$ thermal neutron reaction cross section and Resonance Integral have been experimentally measured. The irradiations were performed in the 2 MW IPEN/CNEN IEA-R1m pool-type research reactor at a pneumatic tube position and closed to the reactor core. Wires of Au-Al (0,1 % of gold) and Co-Al (0,475 % of cobalt) were used to monitor the thermal and epithermal neutron fluxes. The epithermal neutron spectrum shape parameter (α) relative to the idealistic shape have been determined experimentally. The determination of sample activities was performed in different detector systems, according to the samples characteristics: High Purity semiconductor detector HPGe (20 %) and $4\pi(\text{PC})\beta\text{-}\gamma$ coincidence system consisting of a proportional counter, coupled to a pair of 3"x3" NaI(Tl) crystals. A theoretical calculation had been performed in order to determine the influence of the isomeric state in the activation of the reaction products. The contribution of the ^{241}Am resonances near the cadmium cut off energy has been estimated theoretically by the Monte Carlo method. All the uncertainties involved were treated rigorously, by means of covariance analysis. The results were compared with those reported by other authors.

MEDIDA DE SECÇÕES DE CHOQUE PARA REAÇÕES DE CAPTURA DE NÊUTRONS NO ^{57}Co , ^{137}Cs E ^{241}Am CONSIDERANDO A FORMAÇÃO DE ESTADOS ISOMÉRICOS

Nora Lía Maidana

RESUMO

A secção de choque térmica para a reação $^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{138}\text{Cs}$ e as secções de choque térmicas e Integrais de Ressonância para as reações $^{57}\text{Co}(n,\gamma)^{58}\text{Co}$ e $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242g}\text{Am}$, foram determinadas experimentalmente. Os materiais foram irradiados na Estação de Irradiação 3 e no núcleo do reator de pesquisas IEA-R1m do IPEN/CNEN-SP, operando a 2 MW de potência. A densidade de fluxo foi monitorada com fios de liga Au-Al (0,1 % de Au) e Co-Al (0,475 % de Co). O parâmetro de afastamento (α) do fluxo epitérmico com relação ao comportamento ideal foi determinado experimentalmente. A medida das atividades das amostras foi realizada, dependendo das características dos radionuclídeos envolvidos, nos seguintes sistemas: detector semiconductor tipo HPGe (20 %) e sistema de coincidências $4\pi(\text{PC})\beta\text{-}\gamma$ constituído por um detector proporcional, acoplado a dois cristais NaI(Tl) com 3"x3". Foi realizado um cálculo teórico para determinar a influência dos estados isoméricos nas atividades dos produtos das reações. A influência das ressonâncias próximas à energia de cádmio foi avaliada pelo método de Monte Carlo para o ^{241}Am . Foi efetuado um tratamento completo de todas as incertezas envolvidas nos dados experimentais, por meio da análise de covariâncias. Os resultados obtidos foram comparados com os de outros autores.

SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO	1
1.1 Considerações gerais	1
1.2 Objetivo do trabalho	4
2. FUNDAMENTOS TEÓRICOS	7
2.1 Espectro e fluência de nêutrons	7
2.2 Interação dos nêutrons com a matéria	14
2.2.1 Fórmula de Breit-Wigner	17
2.2.2 Formação de isômeros	19
2.2.2.1 Introdução	19
2.2.2.2 Aplicação aos casos de interesse	21
2.3 Secção de choque	26
2.3.1 Secção de choque para a reação de captura (n,γ)	32
2.3.2 Secção de choque térmica	33
2.3.3 Integral de ressonância	34
2.4 Determinação do fluxo	37
2.4.1 Determinação da fração de nêutrons epitérmicos no fluxo térmico, (r)	38
2.4.2 Cálculo da densidade de fluxo convencional ϕ_0	41
2.4.3 Expressões envolvidas na determinação do fluxo epitérmico	44
2.5. Formalismo de ativação	46
3. PARTE EXPERIMENTAL	49
3.1 Preparação dos alvos para a medida de secções de choque	49
3.1.1 Alvo de ^{57}Co	49
3.1.2 Alvo de ^{137}Cs	50
3.1.3 Alvo de ^{241}Am	51
3.1.4 Monitores de fluxo de nêutrons	52
3.1.5 Limpeza, acondicionamento e determinação da massa das	

amostras e monitores	53
3.2 Irradiação dos alvos	55
3.2.1 Irradiação do ^{57}Co	58
3.2.2 Irradiação do ^{137}Cs	58
3.2.3 Irradiação do ^{241}Am	59
3.3 Preparação das amostras a serem medidas	59
3.4 Medida das amostras	62
3.4.1 Descrição do espectrômetro de HPGe	62
3.4.1.1 Metodologia utilizada para a determinação de atividades com o detector HPGe	66
3.4.2 Descrição do sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$	69
3.4.3 Medida do ^{57}Co e ^{58}Co	73
3.4.4. Medida do ^{137}Cs e ^{138}Cs	76
3.4.5 Medida do ^{241}Am e ^{242}Am	78
3.4.6 Medida dos monitores de fluxo	82
4. ANÁLISE E TRATAMENTO DE DADOS	84
4.1 Cálculo da atividade das amostras irradiadas	84
4.2 Determinação do fluxo	92
4.3 Determinação das secções de choque	97
4.3.1 Determinação da secção de choque térmica	97
4.3.2 Determinação da Integral de Ressonância	99
4.3.3 Reação $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242g}\text{Am}$	100
4.4 Determinação da meia-vida do ^{242}Am	105
4.5 Análise de incertezas	106
4.5.1 Incertezas nas eficiências de detecção	106
4.5.2 Incertezas nas atividades das amostras	108
4.5.3 Incertezas nas secções de choque	108
5. APRESENTAÇÃO E COMPARAÇÃO DE RESULTADOS	110

5.1	Secções de choque térmica e Integral de Ressonância da reação	
	$^{57}\text{Co}(n,\gamma)^{58}\text{Co}$	110
5.2	Secções de choque da reação	114
	$^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{138}\text{Cs}$	
5.3	Secções de choque térmica e Integral de Ressonância da reação	
	$^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242g}\text{Am}$	117
5.4	Meia-vida do	122
	^{242g}Am	
6.	CONCLUSÕES E RECOMENDAÇÕES	124
APÊNDICE A	FORMALISMO DE WESTCOTT	126
APÊNDICE B	FATOR DE CORREÇÃO PARA O CÁLCULO DO FLUXO DEVIDO À PERTURBAÇÃO PELA PRESENÇA DA FOLHA	135
	B.1 Coeficiente de autoblindagem G para nêutrons térmicos	137
	B.2 Coeficiente de depressão do fluxo H	138
	B.3 Coeficiente de autoabsorção G para nêutrons epitérmicos	138
APÊNDICE C	METODOLOGIA DE MEDIDA POR COINCIDÊNCIAS $4\pi\beta\gamma$	140
APÊNDICE D	METODOLOGIA E TRATAMENTO DE VARIÁVEIS UTILIZADAS PARA O CÁLCULO DA EFICIÊNCIA DE DETECÇÃO OU ATIVIDADE DAS AMOSTRAS	147
	D.1 Área sob o pico de absorção total	147
	D.2 Correções aplicadas nos cálculos da atividade	148
	D.2.1 Decaimento	149
	D.2.2 Fator geométrico	151
	D.2.3 Tempo morto	152
APÊNDICE E	CÁLCULO DAS SECÇÕES DE CHOQUE DIFERENCIAIS DO ^{113}Cd E DO ^{241}Am	153
APÊNDICE F	CÁLCULO DE TRANSMISSÃO DE NÊUTRONS NO CÁDMIO POR MONTECARLO	157
	Tabela de símbolos	166
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	171

1. INTRODUÇÃO

1.1 *Considerações gerais*

Desde a descoberta do nêutron, em 1932, tem havido um grande esforço, tanto sob o ponto de vista teórico como experimental, com o objetivo de determinar-se a secção de choque para as reações nucleares induzidas por nêutrons, para um grande número de materiais e uma faixa extensa de energias de nêutrons^[1-5]. Neste período, diversas técnicas experimentais e métodos teóricos foram desenvolvidos com a finalidade de melhorar cada vez mais a qualidade dos resultados obtidos. Ultimamente, tem sido aplicadas metodologias rigorosas de tratamento de dados, incluindo análise de covariâncias, tornando os resultados mais confiáveis e exatos^[6-10]. Apesar deste esforço, os resultados obtidos em vários casos ainda são inexatos ou discrepantes^[2,10-14].

A grande maioria das secções de choque induzidas por nêutrons obtidas experimentalmente referem-se a núcleos estáveis. As medidas para núcleos radioativos são escassas e, em vários casos, discrepantes. O conhecimento mais exato da secção de choque induzida em núcleos radioativos tem-se tornado importante nos últimos anos, principalmente na pesquisa e desenvolvimento de métodos de transmutação nucleares^[15,18]. Por esta razão, uma ênfase maior tem sido dada ao caso das reações de captura radioativa (n,γ), induzidas por nêutrons térmicos.

Nestas reações, em diversos casos, são produzidos estados isoméricos, com probabilidades de formação que podem ser determinadas teórica^[18,19] ou experimentalmente^[20-23]. Isto permite estabelecer um grau de informação quantitativa ou semiquantitativa da dependência da densidade de níveis para o spin ou spins do estado inicial do núcleo composto formado na captura térmica ou ressonante de nêutrons^[18]. Estes cálculos teóricos são baseados nas propriedades dos núcleos e, em geral, há consistência entre os dados obtidos

tanto teórica como experimentalmente para uma grande quantidade núcleos. Entretanto, há casos onde há discrepâncias que precisam ser resolvidas.

O processo de captura radioativa de nêutrons é de grande importância pelos aspectos associados ao projeto de reatores nucleares e ao ciclo de combustível, assim como àqueles referentes à pesquisa das estruturas internas dos núcleos.

Em um reator nuclear, em razão da alta densidade de nêutrons, são produzidos novos elementos como consequência da captura sucessiva de nêutrons nos elementos combustíveis e materiais estruturais. Desta maneira, uma quantidade relativamente grande de isótopos de Amerício e Cúrio, entre outros, são formados especialmente em altas taxas de queima do combustível e devem ser consideradas nos cálculos de reatividade. A presença destes novos isótopos ocasiona dificuldades no descarregamento e manuseio dos combustíveis irradiados, assim como durante o reprocessamento e gerenciamento dos resíduos. Estes problemas surgem principalmente em razão das altas doses provocadas pela radiação alfa e nêutrons emitidos nos processos de fissão espontânea, assim como em reações (α, n). Para estimativas quantitativas desses efeitos, devem ser efetuados cálculos de ativação para determinar a quantidade de nuclídeos transurânicos produzidos no reator. A exatidão desses cálculos depende da qualidade dos valores de secção de choque introduzidos como dados de entrada.

Uma reação importante, relacionada a esses processos é a reação de captura de nêutrons no ^{241}Am que popula dois estados, o isômero $^{242\text{m}}\text{Am}$ e o estado fundamental, $^{242\text{g}}\text{Am}$. Este último decai em 82,7 % dos casos para ^{242}Cm , principal nuclídeo responsável pela dose produzida por nêutrons nos elementos combustíveis, após o descarregamento e durante o transporte. O ^{238}Pu é o produto de decaimento do ^{242}Cm , razão pela qual é importante estabelecer sua taxa de produção no reator^[23].

Alguns métodos de transmutação nuclear dos produtos de fissão no combustível nuclear, dependem de uma fonte intensa de nêutrons. Possíveis fontes de nêutrons são:

- a) reatores térmicos de fissão;
- b) aceleradores de partículas;
- c) reatores a fusão.

Os primeiros obrigatoriamente produzem novos resíduos, ao mesmo tempo que os alvos radioativos são eliminados.

Até o presente momento, os aceleradores de partículas possuem a desvantagem de serem grandes consumidores de energia, quando efetuada uma análise de custo benefício.

Os últimos, embora não estejam ainda totalmente desenvolvidos, aparentam ser a melhor solução. Entretanto, para todos os casos é necessário um conhecimento adequado de algumas secções de choque que ainda apresentam discrepâncias acentuadas, como é o caso da reação de captura para nêutrons térmicos da reação $^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{138}\text{Cs}$ ^[24-26].

Na literatura^[27] é apresentado um método para minimizar a influência de reações indesejáveis na produção do ^{58}Co . Até o presente não foram encontrados dados referentes às secções de choque de captura do ^{57}Co , uma das impurezas detectadas. Torna-se importante determinar esta secção de choque, com o objetivo de avaliar a magnitude da produção de ^{58}Co induzida por nêutrons no ^{57}Co .

Há diversos métodos que estudam a captura radioativa tais como: transmissão de nêutrons, técnicas de tempo-de-vôo, câmaras de fissão, método de ativação, entre outros. Nestes métodos de medida é importante incluir os efeitos das correlações entre os erros, com o objetivo de alcançar limites de confiança mais realistas. A correlação entre os erros também é importante

quando são feitas avaliações considerando dados experimentais de diversos autores^[14,28].

Em diversos casos, a determinação da secção de choque induzida em núcleos radioativos torna-se especialmente complexa, em razão da instabilidade do núcleo-alvo e da pequena concentração dos radionuclídeos de interesse na amostra. Além disso, a presença de radionuclídeos interferentes pode também dificultar a identificação do radionuclídeo em estudo.

1.2 Objetivo do trabalho

O objetivo deste trabalho é determinar experimentalmente as secções de choque induzidas por nêutrons para alguns núcleos radioativos de interesse em tecnologia nuclear.

A relevância do tema justifica-se pela necessidade de novos dados em face à escassez de resultados divulgados na literatura e da discordância de resultados como no caso das reações abaixo:

- 1) reação no $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242g}\text{Am}$ a qual, segundo HARBOUR^[23] a secção de choque para nêutrons térmicos (σ_0) é 748 ± 20 b, e segundo KALEBIN^[29], $\sigma_0 = 624\pm 20$ b, além disso a Integral de Ressonância, I, segundo SHINOHARA^[30] é de 1664 ± 146 b, e segundo HARBOUR^[23] 1440 ± 117 b;
- 2) reação de captura radioativa (n,γ) no ^{137}Cs a qual, segundo HARADA et al.^[26] a secção de choque efetiva para nêutrons térmicos (σ_{ef}) é $0,250\pm 0,013$ b e segundo STUPEGIA^[25], $\sigma_{\text{ef}} = 0,110\pm 0,033$ b;
- 3) reação de captura radioativa (n,γ) para nêutrons térmicos e epitérmicos no ^{57}Co , para o qual até o momento não há dados apresentados na literatura.

Estes três radionuclídeos possuem a particularidade de formar estados isoméricos por captura de nêutrons térmicos, os quais dependendo de sua

probabilidade de formação e de sua meia-vida interferem na determinação da secção de choque.

A principal contribuição deste trabalho está associada ao desenvolvimento de uma metodologia experimental e teórica para obtenção do valor de secção de choque das reações estudadas. No desenvolvimento desta metodologia foi incluído um estudo cuidadoso de todas as correções envolvidas na obtenção dos dados experimentais, o que levou a necessidade de elaborar cálculos teóricos utilizando secções de choque diferenciais e aplicando o método de Monte-Carlo.

Outros aspectos importantes do trabalho estão associados à medida de atividade dos radionuclídeos envolvidos, com a utilização de detectores proporcionais de geometria 4π , cintiladores inorgânicos ou semicondutores, onde a presença de radionuclídeos interferentes pode tornar o método particularmente dificultoso.

Por último, em razão da variação temporal da potência do reator e das características das funções de excitação dos radionuclídeos envolvidos no experimento, foi necessário o conhecimento do valor da densidade de fluxo com boa exatidão, o que levou a um tratamento de dados mais rigoroso e a implementação de diversas correções.

As amostras foram irradiadas na Estação de Irradiação 3 e próximo ao núcleo do reator IEA-R1m do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN/CNEN-SP. Este é um reator de pesquisa de 5 MW de potência, operando a 2 MW.

As atividades das amostras irradiadas foram determinadas nas instalações do Laboratório de Metrologia Nuclear, LMN, do Departamento de Metrologia das Radiações, IPEN-CNEN/SP.

O capítulo 2 apresenta uma revisão geral dos fundamentos teóricos utilizados no desenvolvimento deste trabalho.

A metodologia experimental está apresentada no capítulo 3.

O capítulo 4 é destinado ao tratamento dos dados.

O capítulo 5 apresenta a análise dos resultados obtidos.

As conclusões e as recomendações para futuros trabalhos são apresentados no capítulo 6.

2. FUNDAMENTOS TEÓRICOS

2.1 Espectro e fluência de nêutrons

Os feixes de nêutrons podem abranger um intervalo amplo de energia, desde frações de eV até dezenas de MeV. É conveniente classificar os nêutrons em categorias, de acordo com a energia cinética dos mesmos. Deve-se ressaltar que esta classificação é arbitrária, e nos limites de cada uma delas há uma superposição de categorias adjacentes de acordo com este formalismo. Pode-se classificar os nêutrons em:

- *nêutrons lentos*, com energias inferiores a 1 keV. Esta categoria de nêutrons inclui os nêutrons *térmicos*, caracterizados pelo equilíbrio energético dos nêutrons com os átomos do meio material. A distribuição de energia dos nêutrons térmicos, freqüentemente, pode ser aproximada por uma distribuição de Maxwell, no intervalo de 0 a 1 eV;
- *nêutrons epitérmicos*, com energias entre 0,5 eV e 2×10^6 eV, cujas colisões elásticas com os átomos do moderador possibilitam o processo de moderação; suas energias excedem as permitidas pela distribuição de Maxwell para a temperatura do moderador;
- *nêutrons rápidos*, com energias entre 500 keV e 20 MeV, são aqueles emergentes de reações nucleares;

- *nêutrons ultra-rápidos*, com energias superiores à 20 MeV, não são encontrados em reatores nucleares, uma vez que só podem ser obtidos por meio de reações nucleares utilizando aceleradores de partículas.

Os nêutrons possuem uma meia-vida de ~12 min, razão pela qual não são facilmente encontrados na natureza. Entretanto podem ser obtidos em reações nucleares utilizando:

- a) fontes radioativas;
- b) aceleradores de partícula e
- c) reatores nucleares.

Fontes de nêutrons que utilizam radioisótopos são:

- *fissão espontânea*; a maioria dos elementos transurânicos possuem uma probabilidade de decaimento por fissão espontânea significativa. O ^{252}Cf é o elemento mais comumente utilizado, em razão do alto fator de multiplicação: 3,757 nêutrons/fissão^[31] e por causa da distribuição em energia destes nêutrons, figura 2.1.a, é comparável ao da fissão do ^{235}U . O espectro de nêutrons do ^{252}Cf apresenta um máximo entre 0,5 e 1 MeV^[32], se estende até ~10 MeV, com uma energia média de 2,14 MeV^[31];
- *reações (α, n)*, utilizando como emissores de partículas alfa ^{239}Pu , ^{210}Po , ^{238}Pu ou ^{241}Am , entre outros. A máxima produção de nêutrons é obtida quando o alvo escolhido é Be^[32]. A taxa de nêutrons emitidos depende das propriedades físicas e químicas da mistura dos elementos, em razão da atenuação das partículas alfa no meio. A distribuição em energia dos nêutrons destas fontes se estende até ~10 MeV e apresenta vários picos e vales, como pode ser observado na figura 2.1.b;
- *reações (γ, n)*, chamadas fontes de fotonêutrons. Alguns emissores gama utilizados neste tipo de fontes são ^{226}Ra , ^{124}Sb , ^{72}Ga , entre outros. A fonte deste tipo mais comumente utilizada é a de ^{124}Sb -Be. Ela produz nêutrons que

são quase monoenergéticos, com energias de aproximadamente 23 keV^[32], cujo espectro em energias pode ser observado na figura 2.1.c.

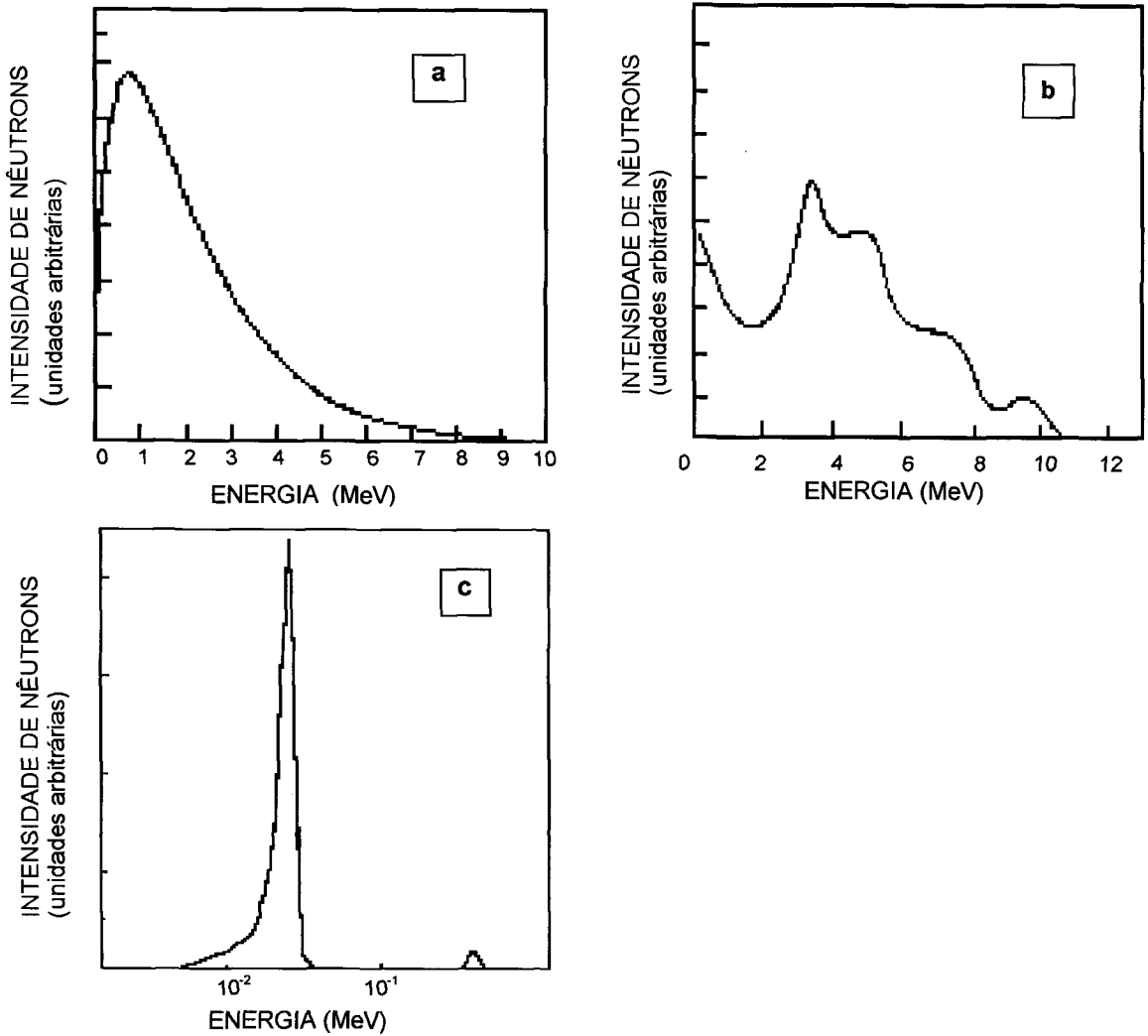


Figura 2.1: a) Espectro de nêutrons da fissão espontânea do ^{252}Cf ^[31]; b) Espectro de nêutrons de uma fonte de Am-Be^[31]; c) Espectro de nêutrons de uma fonte de $^{124}\text{Sb-Be}$ ^[33].

Os aceleradores de partículas foram desenvolvidos para fornecer aos projéteis energias de até vários GeV. Assim, são possíveis reações geradoras de

nêutrons do tipo (p,n) , (d,n) , (γ,n) , etc. Dentre os vários tipos de aceleradores de partículas, destacam-se:

- Van de Graaff;
- linear;
- ciclotron etc.

O princípio de funcionamento de um reator nuclear baseia-se na fissão de determinados elementos pesados, denominados materiais fissionáveis. Estes materiais produzem em média 2 ou 3 nêutrons por cada reação do tipo (n,f) . Tais nêutrons, por sua vez produzem novas fissões, possibilitando assim uma reação em cadeia, que convenientemente controlada, permite a operação do reator.

As irradiações com nêutrons em um reator são realizadas por meio de dispositivos de irradiação, no interior do núcleo ou em sua vizinhança. Esses dispositivos podem ser de acesso vertical ou horizontal (canais de irradiação). Outra forma de irradiação em reatores é realizada por meio de tubos pneumáticos, nos quais o envio e retirada das amostras é realizada mediante a pressão por gás ou ar comprimido, ou por sistemas de vácuo.

De acordo com a energia dos nêutrons utilizados no processo da fissão do combustível, os reatores nucleares podem ser classificados em *térmicos* ou *rápidos* indicando a energia dos nêutrons utilizados nos processos de fissão, relacionada ao material combustível utilizado. Conforme a sua utilização, os reatores térmicos ou rápidos podem ser sub-classificados em:

- a) Reatores de potência, destinados à produção de energia;
- b) Reatores de pesquisa, utilizados para experimentos em física, química e engenharia nuclear, assim como na produção de radioisótopos;
- c) Reatores de teste de materiais, nos quais são estudados diversos materiais utilizados na construção de reatores;
- d) Reatores de ensino, utilizados com propósitos pedagógicos;

- e) Reatores experimentais, dedicados à experimentação e comprovação de novos tipos de reatores, e
- f) Reatores regeneradores, destinados à produção de materiais fissionáveis, por meio de reações (n,γ).

O espectro de nêutrons em um reator térmico depende da distância aos elementos combustíveis, do tipo de moderador empregado e de outros constituintes do núcleo, que consistem em absorvedores ou refletores de nêutrons.

Na figura 2.2 pode-se observar um esquema do espectro em energia dos nêutrons para um reator térmico, representado pela variação da taxa de fluência (nêutrons/cm².s.eV) em função da energia do nêutron.

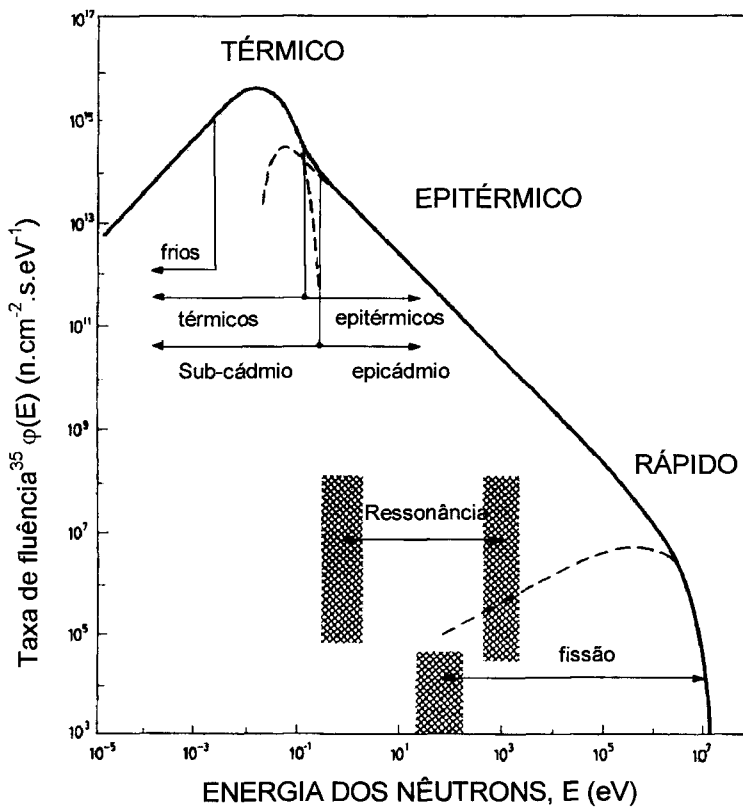


Figura 2.2: Espectro da taxa de fluência dos nêutrons em um reator térmico^[34].

De uma maneira geral, a distribuição de energia dos nêutrons não moderados produzidos no processo da fissão, também chamada espectro de fissão, está compreendida no intervalo de alguns eV até aproximadamente 10 MeV, com o pico em torno de 2 MeV.

Várias representações semi-empíricas do *espectro de fissão* são citadas na literatura^[36,37] das quais, a mais comumente usada é aquela de Watt, na qual a taxa de fluência de nêutrons $\phi(E)$ * é dada pela expressão:

$$\phi(E) = 0,484 e^{-E} \sinh \sqrt{2E} \quad (2.1)$$

onde: E = energia do nêutron em MeV.

No caso dos nêutrons moderados o equilíbrio térmico é encontrado em situações onde o meio material não é absorvedor de nêutrons e em pontos distantes das fontes de nêutrons. Em tais casos, o espectro de nêutrons térmicos é o mesmo que aquele dos átomos do meio moderador, ou seja, é representado por uma função Maxwelliana com a temperatura T do meio. Na maioria dos casos, o meio que contém os nêutrons é também absorvedor e o equilíbrio energético não é alcançado na totalidade.

Nos casos em que a taxa de reações de absorção no meio é pequena comparada com a taxa de reações de espalhamento, costuma-se aproximar o *espectro térmico* de nêutrons por uma Maxwelliana com temperatura $T_n > T$ ^[36-38].

Desta maneira:

$$\phi(E) = \frac{E}{(kT)^2} e^{\left(\frac{E}{kT}\right)} \quad (2.2)$$

* Por simplicidade, a expressão correta "taxa de fluência de nêutrons"^[35] será substituída por "fluxo" ao longo do texto.

Por último, a forma geral da distribuição de energia dos nêutrons epitérmicos em função da energia, também chamado *espectro epitérmico*, é representada pela seguinte equação:

$$\phi(E) dE = \theta \frac{dE}{E} \quad (2.3)$$

onde: ϕ = densidade de fluxo epitérmico por unidade de letargia, com a letargia u definida pela relação $u = \ln(E_0/E)$, $E_0 = 2 \times 10^6$ eV e $E = 0,55$ eV^[34] e θ é uma constante.

As aproximações com as quais pode-se deduzir que os nêutrons epitérmicos tem uma distribuição da forma $1/E$ são as seguintes^[34]:

- a) o meio de moderação dos nêutrons rápidos é homogêneo e infinito;
- b) as fontes de nêutrons rápidos estão homoganeamente distribuídas no espaço;
- c) o poder de moderação não depende da energia;
- d) não existe absorção durante o processo de moderação;
- e) os átomos do moderador são partículas livres que possuem a mesma massa do nêutron.

Obviamente essas condições não são atingidas na prática e portanto é conveniente introduzir uma representação que resulta em uma melhor aproximação para o espectro de nêutrons epitérmicos representada pela seguinte equação^[34,39]:

$$\phi(E) dE = \theta \frac{dE}{E^{1+\alpha}} \quad (2.4)$$

O parâmetro α caracteriza a inclinação na distribuição de nêutrons nessa região de energias e depende da posição no reator.

No presente trabalho este parâmetro foi determinado experimentalmente (vide item 4.2).

2.2 Interação de nêutrons com a matéria

Os nêutrons são partículas desprovidas de carga e portanto não podem interagir por meio da força coulombiana, a qual é dominante nos mecanismos de perda de energia dos elétrons e de outras partículas carregadas. Sua interação se dá por meio de reações nucleares.

A probabilidade para uma dada reação é função da energia do nêutron e das características do núcleo alvo. Desta forma, torna-se conveniente classificar os núcleos em:

- *leves*, com número de massa, $A < 25$;
- *intermediários*, com $25 < A < 80$; e
- *pesados*, com $A > 80$.

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

No caso de *interações diretas*, o processo ocorre sem a formação de um estado intermediário. A reação mais importante deste tipo é o espalhamento elástico direto ou espalhamento potencial, (n,n) .

Quando o nêutron une-se ao núcleo alvo formando um *núcleo composto*, a energia de excitação deste núcleo é igual à soma da energia cinética e à de ligação do nêutron. Este processo pode ser separado em duas etapas:

1. formação do núcleo composto;
2. separação do núcleo composto nos produtos da reação.

Há vários modos de decaimento, chamados canais de saída, para este tipo de reação:

- a) espalhamento elástico composto, algumas vezes denominado espalhamento ressonante (n,n) ;
- b) espalhamento inelástico composto, (n,n') ;
- c) captura radioativa, (n,γ) ;
- d) emissão de partículas carregadas ou de mais de um nêutron, (n,α) , (n,p) , (n,np) , $(n,2n)$, etc;
- e) fissão, (n,f) .

A energia de excitação (≈ 6 MeV) do núcleo composto não aparece como um contínuo, em outras palavras, o núcleo composto não pode existir com qualquer energia arbitrária, apenas com estados ou níveis de energia definidos. Por esta razão, a probabilidade de formação do núcleo composto depende da energia do nêutron incidente de modo a formar o núcleo composto em um desses estados de energia.

Cada nível de energia é caracterizado por determinados parâmetros, tais como:

- energia de excitação acima do nível fundamental, E_0 ;
- spin;
- paridade, e
- larguras parciais de decaimento, Γ_x .

A energia introduzida pela partícula incidente é distribuída entre todos os componentes do núcleo composto até que um ou mais dos seus constituintes adquirem energia suficiente para escapar dele.

Quando o nível de energia do núcleo composto é insuficiente para ejetar uma partícula, este nível ou estado é denominado *nível ligado*. O excesso de energia de

um nível ligado é dissipado pela emissão de um fóton. Por outro lado, os níveis do núcleo composto com energias de excitação suficiente para permitir a emissão de uma partícula, são chamados *níveis não-ligados*.

O estado de um núcleo composto possui uma *vida média* finita. O núcleo composto existe enquanto a energia de excitação adquirida é distribuída entre os seus componentes até a desexcitação, que acontece com a emissão de uma partícula ou um fóton. O princípio de incerteza de Heisenberg, que é baseado na natureza quântica da matéria, introduz o conceito da incerteza ΔE na energia E de um determinado nível, dado por^[40]:

$$\Delta E = \frac{\hbar}{\Delta t}$$

onde: Δt = vida média do estado, usualmente denominado τ ,

\hbar = constante de Planck/ 2π ,

ΔE = largura do nível, normalmente representado por Γ .

Desta maneira^[41]:

$$\Gamma = \frac{\hbar}{\tau}$$

Há uma probabilidade de desintegração para cada canal de saída denominado largura parcial, Γ_x . A largura total, Γ , que fornece a probabilidade total de desintegração, é a soma das larguras individuais dos canais de saída:

$$\Gamma = \Gamma_\gamma + \Gamma_\alpha + \Gamma_n + \dots$$

A probabilidade de ocorrência do processo (n,x) é: $\sigma_{nx} = \sigma_c (\Gamma_x/\Gamma)$, onde σ_c representa a probabilidade de formação do núcleo composto e (Γ_x/Γ) representa a probabilidade de decaimento para o canal de saída x .

Em geral, todos os núcleos leves possuem estados excitados largamente espaçados e é por esta razão que suas secções de choque apresentam ressonâncias simples e isoladas, para nêutrons com altas energias. Os núcleos intermediários, apresentam ressonâncias separadas num intervalo de energias para nêutron da ordem de keV. Por último, as ressonâncias dos núcleos pesados ocorrem para energias de nêutron baixas, da ordem de eV, e a separação das ressonâncias é uma função da diferença entre os níveis de excitação do núcleo.

2.2.1 Formula de Breit-Wigner

A fórmula de Breit-Wigner^[36,41,42], fornece uma boa descrição do comportamento da secção de choque em função da energia de excitação, para reações de espalhamento e de captura, nas imediações de uma ressonância simples e isolada.

Uma vez formado, o núcleo composto pode decair através de um dos canais de saída permitidos, Γ_i . Assim, a fração das transições que acompanham qualquer canal ou alternativa é simplesmente Γ_i/Γ . Desta maneira a secção de choque para uma reação (a,b), considerando uma ressonância simples pode ser escrita da forma^[43]:

$$\begin{aligned}\sigma(a,b) &= \left(\sigma_{\text{com}}^{\ell}\right) \left(\frac{\Gamma_b}{\Gamma}\right) \\ &= \pi (2\ell + 1) \lambda^2 \frac{\Gamma_a \Gamma_b}{(E - E_R)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}\end{aligned}$$

onde: ℓ = número quântico do movimento angular orbital;

E = energia do nêutron incidente;

E_R = energia da ressonância;

λ = comprimento de onda de Broglie, associada à velocidade do nêutron.

Esta expressão pode ser aplicada a todas as secções de choque ressonantes com exceção da re-emissão da partícula incidente, isto é, do espalhamento ressonante.

No caso da captura ressonante de nêutrons térmicos com $\ell = 0$, seguida da desintegração radioativa do núcleo composto, a secção de choque, considerando uma ressonância simples e isolada, obedece à forma^[36,43]:

$$\sigma(E) = \pi \lambda^2 g \frac{\Gamma_n \Gamma_\gamma}{(E - E_R)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} \quad (2.5)$$

onde: $g = \frac{2J+1}{2(2I+1)}$, com I , spin do núcleo alvo e J , spin do núcleo composto;

Γ_n , Γ_γ , Γ = largura dos níveis, denominados também parâmetros de ressonância para os canais de saída de nêutrons, gama e total, respectivamente.

A fórmula 2.5 é denominada fórmula de Breit-Wigner^[36,41-43] para um único nível. Ela pode ser utilizada para calcular a probabilidade de ocorrência de outros tipos de reações, bastando para isso substituir o parâmetro de ressonância Γ_γ pelo correspondente à reação em estudo. Porém, esta fórmula não é muito precisa para alguns tipos de reações^[43] e torna-se necessário levar em conta a influência mútua das outras ressonâncias.

O cálculo da probabilidade para uma dada reação que considera a contribuição de todas as ressonâncias para nêutrons com um determinado valor de energia E , é realizado através de uma expressão conhecida como fórmula de Breit-Wigner de multiníveis. Neste caso, a probabilidade de ocorrência de uma determinada reação é calculada como uma soma das probabilidades parciais correspondentes a cada ressonância, para o valor de energia considerado:

$$\sigma(E) = \pi \lambda^2 g \sum_{i=1}^n \frac{\Gamma_n \Gamma_{\gamma i}}{(E - E_{Ri})^2 + \left(\frac{\Gamma_i}{2}\right)^2} \quad (2.6)$$

2.2.2 Formação de isômeros

2.2.2.1 Introdução

A energia de excitação de um núcleo composto formado pela captura de um nêutron térmico é igual à energia de ligação do último nêutron. O núcleo assim excitado decai para o nível fundamental após um certo tempo ($\sim 10^{-13}$ s), normalmente pela emissão de raios gama, quando outros canais de saída não estão habilitados. O espectro desses raios gama é bastante complexo.

No caso de elementos que possuem dois níveis de excitação (o fundamental e o metaestável) com diferentes valores de spin, cada um deles tem uma certa probabilidade de ser populado por meio da cascata de raios gama de desexcitação do núcleo composto precursor. Define-se o parâmetro denominado *secção de choque relativa de formação do isômero* como o quociente entre a probabilidade de formação do nível fundamental e a do isômero para um determinado radionuclídeo.

Em 1960, Huizenga e Vandenbosch^[18] interpretaram a probabilidade de formação de um estado e seu isômero como sendo governado em princípio pela diferença de spins entre os diferentes níveis finais e o do núcleo composto formado pela reação nuclear. Este estudo considerou a dependência da densidade de níveis do núcleo, a multiplicidade e características de multipolo da cascata de raios gama de decaimento.

Segundo estes autores, os fatores que determinam a taxa de produção do isômero são, em princípio:

- 1) o spin do núcleo composto. Para nêutrons com energia térmica ou ressonante, o valor de $\ell = 0$, portanto o spin do núcleo composto é dado por $J = (I \pm 1/2)$ onde I é o spin do núcleo alvo;
- 2) o número e tipo de degraus na desexcitação do núcleo composto (multiplicidade de raios gama);
- 3) a mudança do momento angular após a desexcitação. Esta foi considerada em geral como radiação de dipolo elétrico (E_1 , cujo $\ell = 1$ e produz mudança na paridade do núcleo)^[43,44];
- 4) a probabilidade de formação de estados com diferentes spins, como consequência de cada degrau na cascata, considera-se como dependente do modelo utilizado;
- 5) os spins dos estados isoméricos.

Desta maneira, a distribuição de spin é calculada teoricamente de acordo com a expressão:

$$\rho(J) \propto \rho(0)(2J+1)e^{-\left[\frac{(J+1/2)^2}{2\sigma^2}\right]} \quad (2.7)$$

onde: $\rho(J)$ = densidade dos níveis com spin J ;

$\rho(0)$ = densidade dos níveis com spin 0;

σ = parâmetro que caracteriza a distribuição de spin^[45]:

$$\sigma^2 = 0,0888 (aU)^{0,5} A^{1/3},$$

onde:

A = número de nucleons;

U = energia de ligação efetiva, que considera os efeitos de emparelhamento dos respectivos nucleons.

$U = E - P(N) - P(Z)$, com $E = -B_n$, energia de ligação do último nêutron,

$P(N)$ = energia de emparelhamento^[45] dos nêutrons;

$P(Z)$ = energia de emparelhamento^[45] dos prótons;

a = parâmetro de densidade de níveis que considera as correções de camadas de nêutrons e prótons, $S = S(N) + S(Z)$, respectivamente.

$a = A (0,00917 S + 0,142)$ ou

$a = A (0,00917 S + 0,120)$, de acordo às condições sugeridas na literatura^[45].

Considerando a multipolaridade $\ell = 1$, a multiplicidade gama, N_γ , é determinada pela expressão^[43]:

$$N_\gamma = \frac{\sqrt{aU}}{2} \quad (2.8)$$

Os cálculos efetuados para determinar a taxa de produção do isômero consideram que a probabilidade que o núcleo composto com spin J decaia a estados com spin (J + 1), J e (J - 1) são determinados pela expressão 2.7 , para um spin particular.

Existe na literatura uma ampla variedade de artigos que tratam do aspecto da formação do isômero^[21-23].

2.2.2.2 Aplicação aos casos de interesse

Todos os nuclídeos estudados no presente trabalho possuem a característica de formar estados isoméricos. A seguir é apresentado o esquema de ativação e decaimento dos mesmos.

a) **Reação $^{57}\text{Co}(n,\gamma)^{58}\text{Co}$** . A formação do isômero, assim como os respectivos esquemas de decaimentos são apresentados na figura 2.3.

O ^{57}Co , cuja meia vida é de 271,79(9) d decai por captura eletrônica, e emissão de raios gama. As principais transições são de 122,0614(3) keV e 136,4743(5) keV, com probabilidades de emissão gama por decaimento, $I_\gamma = 85,60(17) \%$ e $10,68(8) \%$, respectivamente.

Após a captura de um nêutron, o nuclídeo pode assumir dois estados: o isomérico $^{58\text{m}}\text{Co}$ e o fundamental $^{58\text{g}}\text{Co}$. O primeiro deles, com 9,15(10) h de meia-vida, decai para o nível fundamental por conversão interna com intensidade de 100 %, emitindo um raio X de 24,889(21) keV. O segundo decai por captura eletrônica e β^+ com uma meia-vida de 70,82(3) d, emitindo raios gama de 810,775(9) keV, com probabilidades de emissão gama por decaimento, $I_\gamma = 99,448(8) \%$.

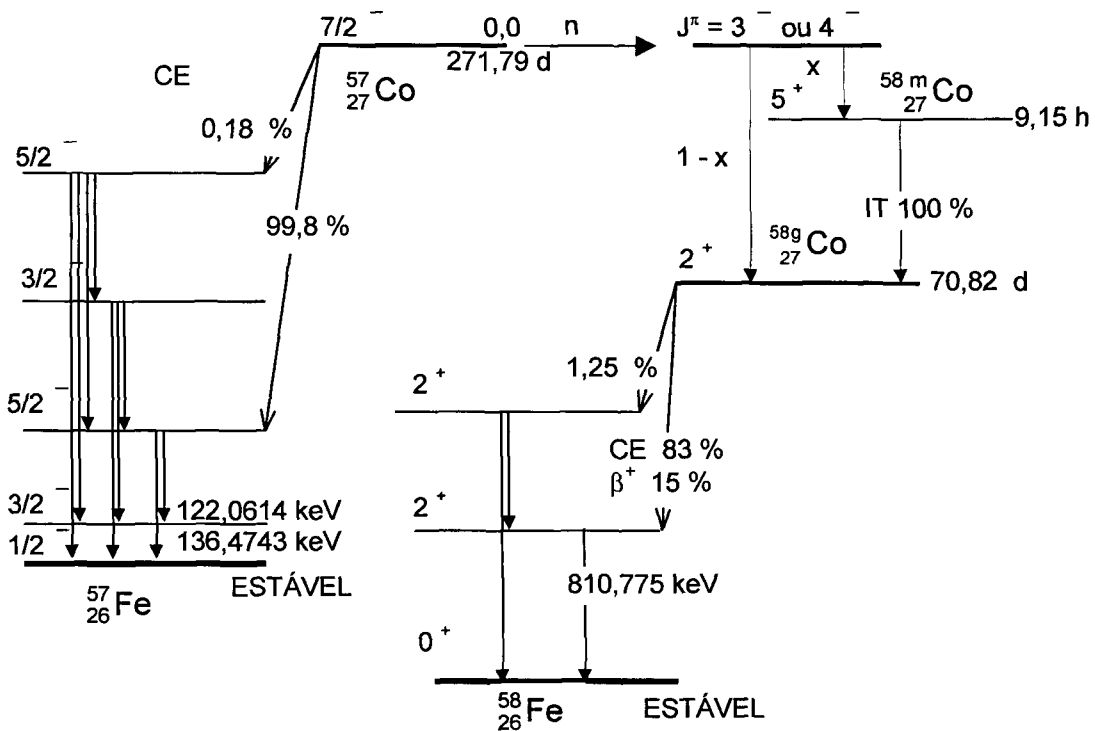


Figura 2.3 : Esquemas de decaimento^[46] simplificados dos radionuclídeos envolvidos na reação $^{57}\text{Co}(n,\gamma)^{58}\text{Co}$.

a) **Reação** $^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{137}\text{Cs}$. Os esquemas de decaimento dos núclídeos envolvidos são apresentados na figura 2.4.

O ^{137}Cs decai para o ^{137}Ba por emissão β^- , acompanhada pela emissão de um raio gama de 661,660(3) keV, cuja probabilidade de emissão por decaimento é de 85,1(2) %.

Como consequência da absorção de um nêutron por parte do ^{137}Cs , podem ser formados dois estados: o isomérico ($^{138\text{m}}\text{Cs}$) e o fundamental (^{138}Cs).

O $^{138\text{m}}\text{Cs}$, possui uma meia-vida de 2,91(18) min, decaindo para ^{138}Ba por emissão β^- com 19 % de probabilidade acompanhada de um raio gama de desexcitação de 1435,86(9) keV, cuja probabilidade de emissão gama é 100 % e por transição interna, para $^{138\text{g}}\text{Cs}$ com uma probabilidade de 81(3) % para.

O $^{138\text{g}}\text{Cs}$ possui uma meia-vida de 33,41(18) min, decaindo para ^{138}Ba também por emissão β^- acompanhada de um raio gama de desexcitação de 1435,86(9) keV, com probabilidade de emissão por decaimento de 76,3(1,6) %.

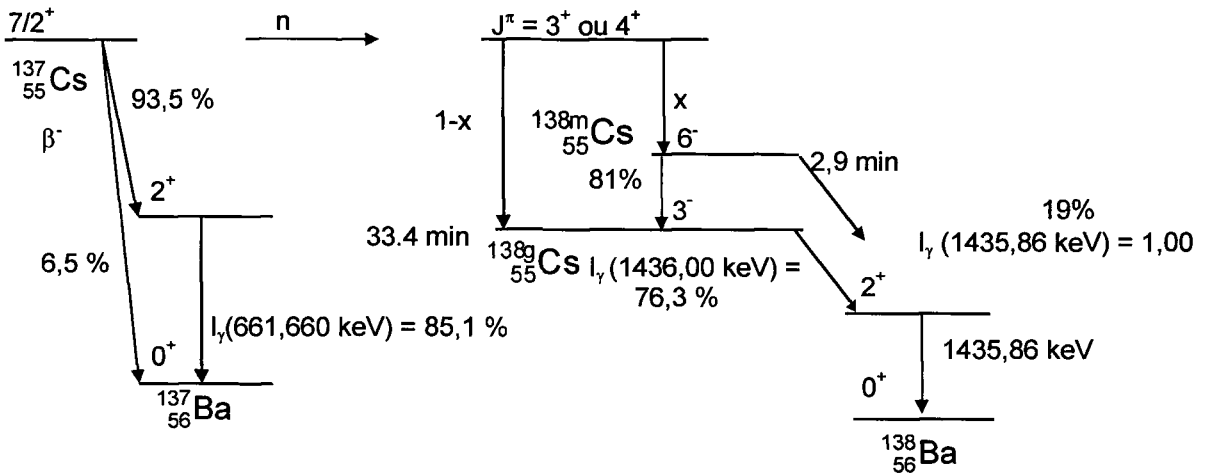


Figura 2.4: Esquemas de decaimento^[46] simplificados dos radionuclídeos envolvidos na reação $^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{138}\text{Cs}$.

b) **Reação** $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242}\text{Am}$. A figura 2.5 apresenta os radionuclídeos participantes na reação e seus respectivos esquemas de decaimento.

O ^{241}Am decai pela emissão de uma partícula alfa, acompanhada da emissão de raios gama característicos de 26,345(1) keV e 59,537(1) keV cujas probabilidades de emissão por decaimento são: $I_\gamma = 2,4(1) \%$ e $36,0(4) \%$, respectivamente.

Como consequência da absorção de nêutrons por parte do ^{241}Am , podem ser formados dois estados: o isomérico ^{242m}Am e o fundamental ^{242g}Am .

O ^{242m}Am decai pela emissão de uma partícula alfa para ^{238}Np com uma probabilidade de 0,459(12) % e com 99,541(12) %, por conversão interna para ^{242g}Am , emitindo um raio gama de 48,63(5) keV.

O ^{242g}Am cuja meia-vida é de 141 a decai com 17,3 % de probabilidade por captura eletrônica e 82,7 % por β^- . As transições de 44,52(2) keV e 42,13(1) keV

possuem elevados coeficientes de conversão interna^[47]. Por esta razão, a probabilidade de emissão gama por decaimento é praticamente desprezível para os dois modos de desintegração do ^{242g}Am.

Estas características de decaimento levaram à necessidade de se utilizar um detector do tipo 4πβ-γ para a determinação da atividade deste radionuclídeo, por meio do Método do Traçador^[48-50].

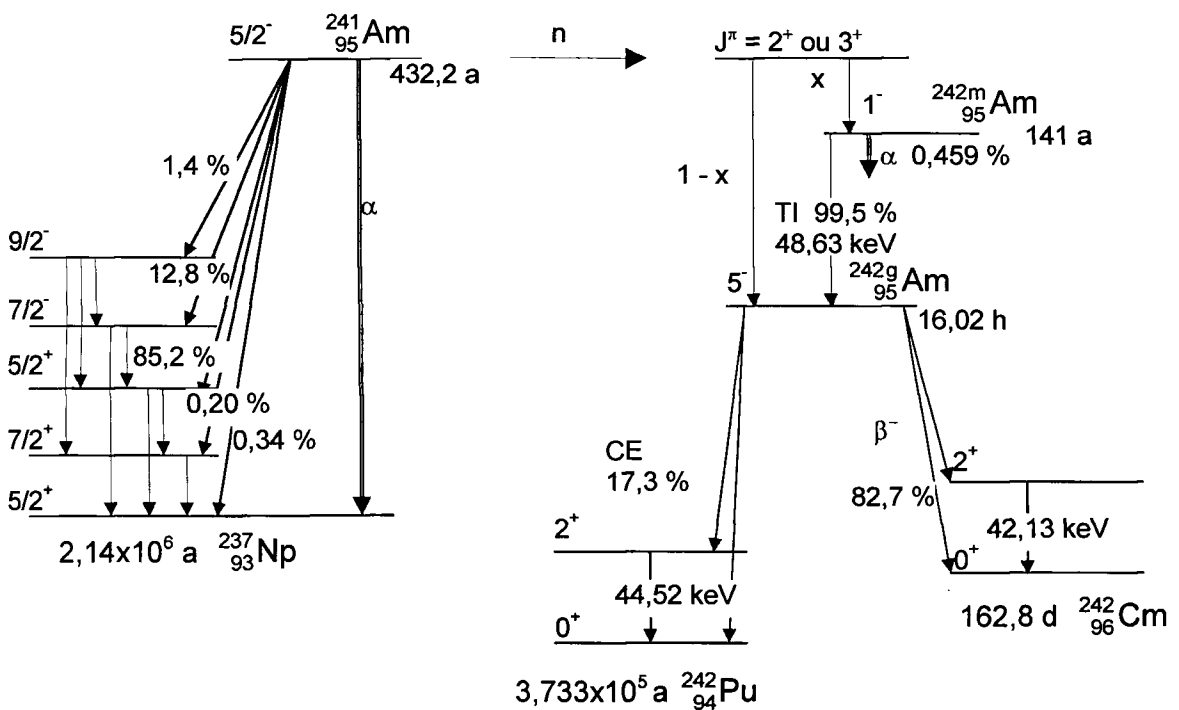


Figura 2.5: Esquemas de decaimento^[46,47,51] dos radionuclídeos envolvidos na reação ²⁴¹Am(n,γ)²⁴²Am.

2.3 Secção de choque

A probabilidade de ocorrência de reação entre um nêutron e um núcleo é expressa por meio do conceito de *secção de choque*. Consideremos uma grande quantidade de nêutrons de uma determinada energia, em cuja trajetória é posicionado um material de espessura t . Alguns nêutrons atravessarão o material sem interagir, outros interagirão com os átomos do material podendo mudar a direção e energia, enquanto que outros não emergirão da amostra.

A taxa de reações produzidas por um feixe colimado de nêutrons, sobre um material é dada por:

$$R = N_0 \phi \sigma \quad (2.9)$$

Onde: ϕ = número de nêutrons que atravessa perpendicularmente à direção do feixe, por cm^2 e por unidade de tempo;
 N_0 = número de átomos alvo, por unidade de volume, e
 σ = constante de proporcionalidade denominada *secção de choque*.

A secção de choque possui dimensões de área e representa a probabilidade de interação do nêutron com um núcleo. Também é conhecida como secção de choque microscópica.

Em função de cada tipo de reação, as secções de choque de espalhamento e absorção são distinguidas pelos símbolos σ_s e σ_a , respectivamente. Cada uma delas é composta por secções de choque parciais como espalhamento elástico e inelástico, no primeiro caso e captura radioativa, fissão etc., no segundo. A soma de todas as secções de choque parciais é denominada secção de choque total:

$$\sigma_t = \sigma_s + \sigma_a$$

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

- a) *transmissão de nêutrons*, aplicável à medida da secção de choque total de uma substância;
- b) *técnica de tempo-de-vôo*, aplicável a feixes pulsantes de nêutrons, com a qual é possível determinar-se a secção de choque diferencial em energia;
- c) *detectores de traços*, aplicável quando a reação induzida por nêutrons produz partículas carregadas pesadas (alfa, p, fragmentos de fissão, etc.) com energia suficiente para produzir um dano no detector, o qual dá origem a um traço;
- d) *câmaras de fissão*, que utilizam a energia cinética dos produtos da fissão para ionizar o gás (normalmente argônio), obtendo um pulso elétrico proporcional à quantidade de eventos;
- e) *método de ativação*, aplicável aos casos em que o núcleo residual é radioativo e é possível determinar sua atividade. Uma extensão deste método pode também ser aplicada para os casos onde o núcleo-alvo é radioativo, porém o núcleo residual é estável, medindo-se a diferença entre as atividades do nuclídeo alvo antes e após a irradiação.

Este último foi o método utilizado no presente trabalho.

Em geral, a secção de choque possui um comportamento próximo a $1/v$. Este fato pode ser analisado de forma intuitiva, associando a probabilidade de captura do nêutron com o tempo no qual este se encontra nas imediações do núcleo, que é uma função inversa da velocidade.

Geralmente, o valor da secção de choque decresce com o aumento da energia e aumenta com o número de massa^[36]. Porém, há nuclídeos que apresentam picos característicos de ressonância em determinadas energias, os quais podem estar isolados ou muito próximos.

O caso particular das secções de choque de interesse neste trabalho, pode ser observado nas figuras 2.6, 2.7 e 2.8.

Na literatura não foram encontrados dados experimentais da secção de choque para a reacção $^{57}\text{Co}(n,\gamma)^{58}\text{Co}$, porém existe um cálculo teórico^[14] que é apresentado na Figura 2.6. Nesta figura, pode ser observado que a secção de choque de captura apresenta um comportamento da forma $1/v$ na região de nêutrons térmicos com um degrau ascendente em torno de 100 eV. A curva não apresenta ressonâncias.

Na figura 2.7^[52] pode-se observar que a secção de choque para a reacção $^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{138}\text{Cs}$, apresenta um comportamento próximo à lei $1/v$ na região de nêutrons térmicos, com uma ressonância na região de energia de $\sim 10^3$ eV.

Por último, na figura 2.8^[4] pode-se observar que a secção de choque de captura do ^{241}Am apresenta um comportamento $1/v$ na região térmica, afastando-se desse comportamento na região de energia próxima ao corte de cádmio, devido à influência de duas ressonâncias, cujas energias se localizam em 0,308 e 0,573 eV, respectivamente. Em energias mais altas pode ser observada a região de ressonâncias não resolvidas, que é uma característica das secções de choque para os núcleos pesados.

CO-57 : (N,G)

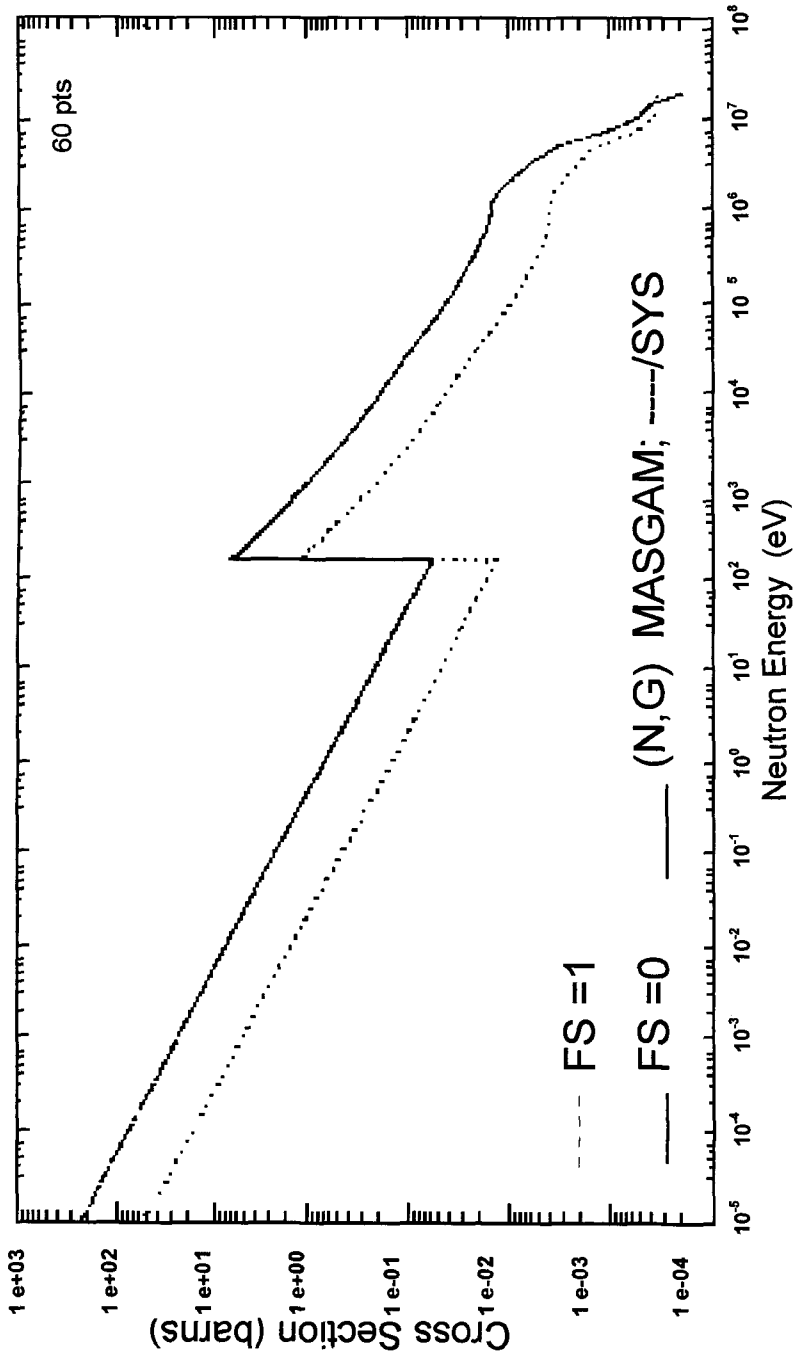


Figura 2.6^[14]: Secção de choque do ^{57}Co .

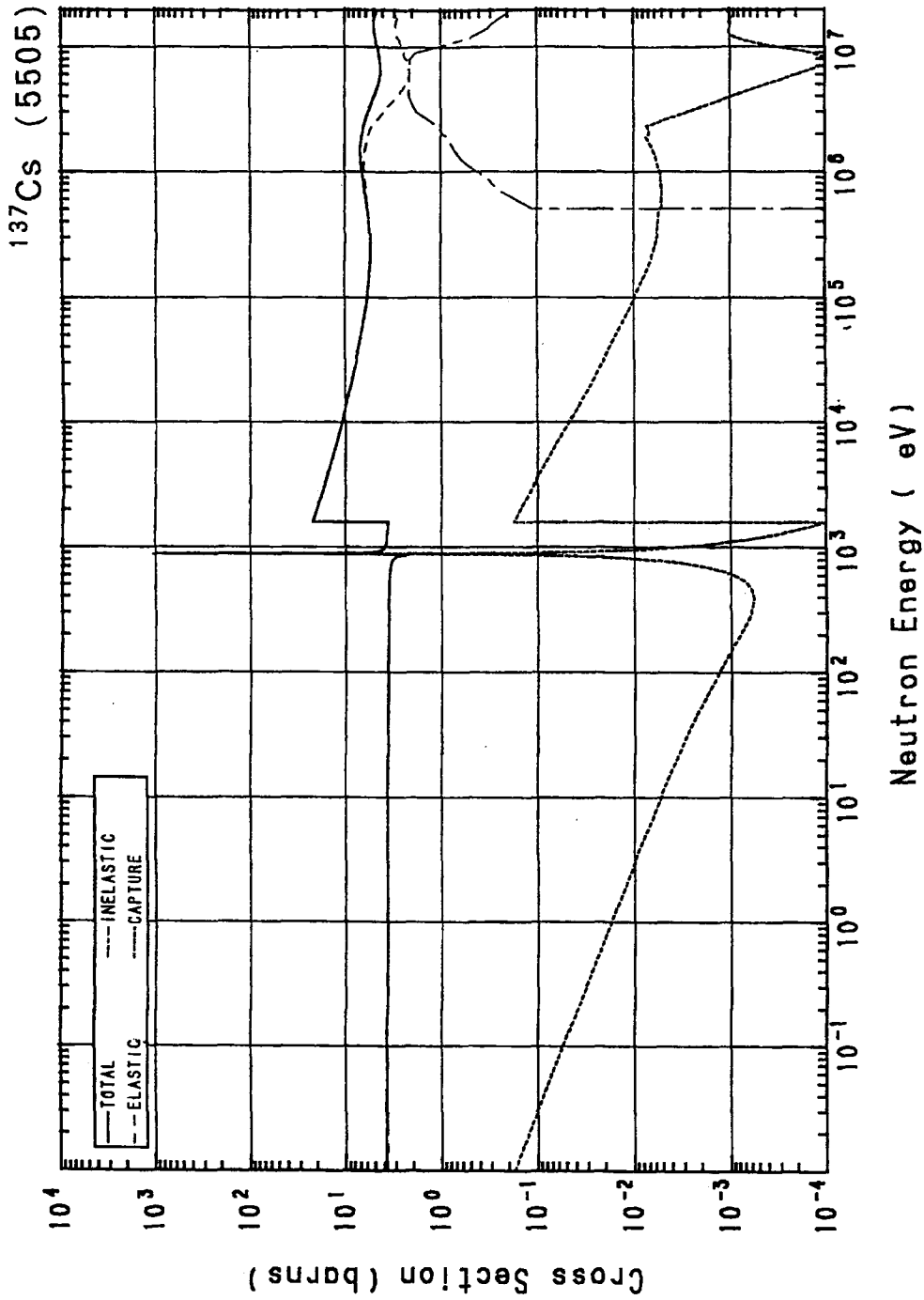


Figura 2.7^[52]. Secções de choque do ^{137}Cs .

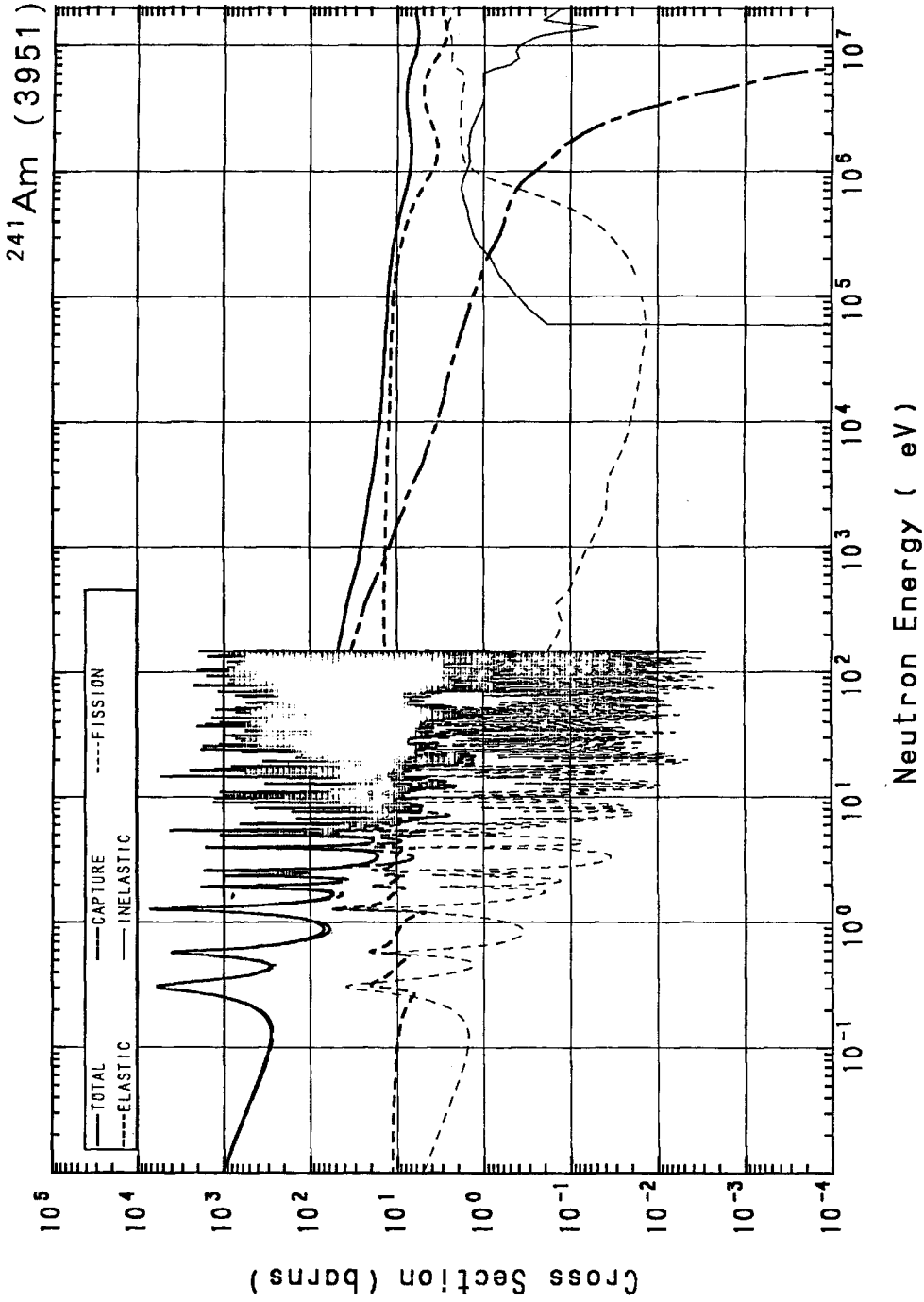


Figura 2.8^[4]: Secções de choque do ^{241}Am .

2.3.1 Secção de choque para a reacção de captura (n,γ)

A secção de choque de captura (n,γ) possui, para uma grande quantidade de núclídeos uma dependência de acordo com a lei 1/v, e portanto, é conveniente padronizá-la com referência a uma velocidade particular. É devido a isto que nas tabelas correspondentes, as secções de choque são referidas à velocidade dos nêutrons de 2200 m/s, que correspondem à temperatura absoluta T = 293 Kelvins.

A expressão 2.9 pode ser substituída por:

$$R = N_0 \int_{E_1}^{E_2} \sigma(E) \phi(E) dE \quad (2.10)$$

Esta integral normalmente é substituída pela soma de duas integrais independentes, que obedecem a ativação correspondente à região de nêutrons térmicos e epitérmicos, respectivamente.

Levando em consideração as secções de choque médias em cada região, a expressão 2.10, se torna^[34-38]:

$$R = R_{th} + R_{epi} = (\phi_{th} \sigma_{th} + \phi_{epi} I_0) N_0 \quad (2.11)$$

onde: ϕ_{th} = fluxo térmico médio;

σ_{th} = secção de choque térmica;

ϕ_{epi} = fluxo epitérmico por unidade de letargia, isto é fluxo epitérmico/ln E.

I_0 = Integral de Ressonância.

O limite inferior da integral da componente epitérmica está associada às características do reator e é obtido como uma função de μkT (onde $\mu \approx 5$ para reatores moderados a água e $\mu \approx 3$ para aqueles cujo moderador é grafite). Este limite inferior é função também da energia de corte do filtro utilizado para absorver os nêutrons térmicos.

2.3.2 Secção de choque térmica

Para um feixe de nêutrons térmicos o espectro de energias segue a distribuição de Maxwell. Neste caso, a taxa de reação pode ser escrita como o produto de fluxo total de nêutrons ϕ pela secção de choque média $\bar{\sigma}$. Este último termo é obtido como uma média da distribuição de energia dos nêutrons, isto é^[53]:

$$R = \bar{\sigma} \phi \quad \text{e} \quad \bar{\sigma} = N_0 \int_0^{\infty} \sigma(E) \left(\frac{E}{E_T} \right) e^{-\frac{E}{E_T}} \frac{dE}{E_T} \quad (2.12)$$

No caso especial de um absorvedor $1/v$, $\sigma_a(E) = \sigma_a(E_T) \sqrt{\frac{E_T}{E}}$, portanto:

$$\bar{\sigma}_a = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \sigma_a(E_T) \quad (2.13)$$

onde: $\bar{\sigma}_a$ = secção de choque média de ativação;

$\sigma_a(E_T)$ = secção de choque média de ativação para a energia térmica E_T .

A secção de choque média de ativação é igual à secção de choque à velocidade média de nêutrons $\bar{v} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} v_T$, então:

$$R = \bar{\sigma}_a \phi = \sigma_a(\bar{v}) n \bar{v} \quad (2.14)$$

Na convenção de Westcott, a taxa de reação para um absorvedor $1/v$ é $n v_0 \sigma_a(v_0)$, portanto^[54]:

$$\bar{\sigma}_a = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \sqrt{\frac{T_0}{T}} \sigma_a(v_0) \quad (2.15)$$

onde: T_0 é a temperatura absoluta, também denominada temperatura de referência, e T é a temperatura do nêutron.

Quando a secção de choque não obedece à lei $1/v$ utiliza-se um fator $g(T)$ (apêndice A, expressão A.20), de modo que a expressão 2.15 resulta,

$$\bar{\sigma}_a = g(T) \frac{\sqrt{\pi}}{2} \sqrt{\frac{T_0}{T}} \sigma_a(v_0) \quad (2.16)$$

Assim, a secção de choque pode ser obtida através da seguinte expressão:

$$\sigma_a(v_0) = \frac{R}{n v_0 g(T)} \quad (2.17)$$

Para núcleos que não seguem a lei $1/v$, o fator $g(T)$ pode ser obtido em função da temperatura. No presente trabalho este fator foi calculado para ser aplicado nas correções efetuadas na determinação da secção de choque térmica do ²⁴¹Am pela seguinte expressão^[54]:

$$g = 1,01247 + \frac{0,11573}{1000} T + \frac{0,65544}{(1000)^2} T^2 + \dots + \frac{1,66108}{(1000)^5} T^5 - \frac{0,39024}{(1000)^6} T^6 \quad (2.18)$$

2.3.3 Integral de Ressonância

A secção de choque microscópica média sobre um fluxo puro $1/E$ é denominada *Integral de Ressonância*:

$$I = \int_{E_1}^{E_2} \sigma(E) dE \quad (2.19)$$

onde E_1 e E_2 são os limites inferior e superior respectivamente.

A convenção normalmente utilizada é que o limite inferior dessa integral seja a energia de corte para um filtro de cádmio de 1 mm de espessura, o que corresponde a 0,55 eV^[34]. Considerando que no reator existe um fator de moderação contínuo e que as perdas de nêutrons por absorção são desprezíveis, o espectro de

nêutrons obedece a forma dE/E , isto é $[\phi(E) = \theta dE/E]$. A ativação devida aos nêutrons epitérmicos é dada pela expressão^[36]:

$$R_{\text{epi}} = N_0 \theta \int_{E_{\text{cd}}}^{1\text{MeV}} \frac{\sigma(E)}{E} dE \quad (2.20)$$

Para alguns casos, deve-se considerar que $\phi(E)$ não é o fluxo epitérmico ideal e é dado por^[55]:

$$\phi(E) = \theta \int_{E_{\text{cd}}}^{1\text{MeV}} \frac{dE}{E} = \theta \ln \frac{1 \times 10^6}{0,5} = 14,5 \phi_{\text{epi}} \quad (2.21)$$

nesses casos, deve ser feita a correção correspondente.

A Integral de Ressonância para um certo nuclídeo é determinada experimentalmente pela irradiação do material no espectro de um reator. Este espectro pode ser composto pela soma das duas componentes: a distribuição Maxwelliana para uma temperatura T e a distribuição epitérmica $1/E$, com o limite inferior μkT , onde k é a constante de Boltzmann e μ varia de acordo ao tipo de reator. Estes dois espectros são contínuos e superpõem-se em aproximadamente 0,5 eV. Quando uma amostra é irradiada num espectro deste tipo, a ativação correspondente à Integral de Ressonância deve ser separada daquela relacionada com a componente Maxwelliana. Desse modo, a expressão 2.19 resulta:

$$I' = \int_{E_1}^{E_2} \left[\sigma(E) - g(T) \sigma_0 \sqrt{\frac{T_0}{T}} \right] \frac{dE}{E} \quad (2.22)$$

onde: $g(T)$ é um parâmetro que depende da temperatura do nêutron,

Na integral, $\sigma(E)$ é considerada como a secção de choque total de ativação, a qual inclui a contribuição $1/v$. No caso de considerar-se a Integral de Ressonância

sem esta contribuição, denominada Integral de Ressonância reduzida, I' , a taxa de ativação é dada por:

$$R = \phi_{th} \sigma_{th} + \phi_{epi} (I' + C \sigma_0) \quad (2.23)$$

onde a constante C é função do limite inferior de integração escolhido, variando de 0,43 a 0,90, conforme o caso^[34].

A metodologia experimental utilizada para separar a secção de choque correspondente ao espectro de Maxwell e a devida à componente $1/E$ consiste na irradiação do material em estudo com e sem um filtro de cádmio. Este filtro absorverá os nêutrons com energias até a energia efetiva do corte de cádmio, E_{Cd} . O espectro abaixo desta energia de corte pode ser calculado, e a atividade da amostra nessas condições de irradiação pode ser dividida em duas partes: uma entre μkT e E_{Cd} e a outra entre E_{Cd} e ∞ . Assim, a expressão 2.19 torna-se:

$$\begin{aligned} I &= \int_{\mu kT}^{E_{Cd}} \left[\sigma(E) - g(T) \sigma_0 \sqrt{T_0/T} \right] dE + \int_{E_{Cd}}^{\infty} \left[\sigma(E) - g(T) \sigma_0 \sqrt{T_0/T} \right] dE \\ &= [\Delta I - \Delta I(1/v)] + [I - I(1/v)] = \Delta I' + I' \end{aligned} \quad (2.24)$$

onde: I' = Integral de Ressonância reduzida;

$\Delta I'$ = fração filtrada pelo cádmio, dependente da temperatura do nêutron. É considerada desprezível para nuclídeos que obedecem a lei $1/v$ na região de nêutrons térmicos. Entretanto, para nuclídeos cujos picos de ressonância aparecem próximos à energia de corte de cádmio, este valor não pode ser ignorado.

2.4 Determinação do fluxo

O fluxo de nêutrons em cada região do espectro é determinado pela ativação de materiais que apresentam uma secção de choque cujo comportamento favorece a ativação, pelos nêutrons da região de interesse. Em qualquer caso, relacionam-se materiais cujas secções de choque sejam conhecidas com grande exatidão. A determinação do fluxo térmico torna-se bastante simplificada, quando são utilizados materiais cuja secção de choque possui um comportamento $1/v$.

Na região de nêutrons intermediários, em geral, predomina a reação de captura radioativa (n,γ) , porém o comportamento das secções de choque é caracterizado por picos de ressonância. Para determinar o fluxo nesta região, são escolhidos materiais que tenham um pico de ressonância predominante.

Na região de nêutrons rápidos predominam as reações do tipo (n,p) , (n,α) etc., muitas delas do tipo reações de limiar pois só ocorrem com nêutrons acima de uma energia mínima. Para a determinação do fluxo rápido são escolhidos materiais que apresentam reações de limiar de ativação nessa região de energias.

Na prática, os materiais não apresentam secções de choque com comportamento $1/v$ e nessas condições a expressão 2.23 não corresponde a uma aproximação do caso real, tornando-se necessária a aplicação de correções para o desvio de $1/v$.

Essas correções são obtidas de uma maneira adequada pela utilização do formalismo de Westcott apresentado no Apêndice A.

Quando a secção de choque efetiva $\hat{\sigma} = \sigma_0 (g + rs)^{[38,56-57]}$ para os nêutrons no ponto de irradiação é interpretada pela convenção de Westcott (sendo r a fração de nêutrons epitérmicos e s o afastamento da secção de choque à lei $1/v$ na região

epitérmica, este parâmetro depende da temperatura), o fluxo de nêutrons é obtido através da expressão:

$$\phi = \frac{A}{N_0 \hat{\sigma} f_i f_e} \quad (2.25)$$

onde: A = atividade do elemento ativado durante a irradiação;

N_0 = número de átomos alvo;

$\hat{\sigma}$ = secção de choque efetiva, detalhada no apêndice A;

f_i e f_e , fatores de correção que levam em consideração o tempo de irradiação e o de espera.

2.4.1 Determinação da fração de nêutrons epitérmicos no fluxo térmico (r)

O corte efetivo de cádmio é a energia E_{Cd} associada ao conceito de um filtro perfeito (absorção infinita abaixo da energia de corte e zero absorção acima dessa energia) sob o qual um material deveria ter a mesma taxa de reação que sob a cobertura de cádmio.

O cádmio natural é composto por uma série de isótopos, dos quais o ^{113}Cd é o principal contribuinte na absorção de nêutrons já que apresenta uma secção de choque de absorção de aproximadamente 2500 b na energia térmica, com uma ressonância próxima em 0,178 eV. Acima dessa energia a secção de choque é bastante baixa, caindo para 70 b^[58]. Deste modo o cádmio atua como um filtro de nêutrons, absorvendo os nêutrons abaixo de uma certa energia de corte E_{Cd} e deixando passar nêutrons acima dessa energia. A energia E_{Cd} se localiza próxima à energia do pico da ressonância e varia ligeiramente com a espessura de cádmio a ser utilizada.

Por cálculos teóricos pode-se determinar uma energia de corte efetiva que está em torno de 0,5 eV, para uma espessura de cádmio de 0,5 mm. Quando o cádmio possui pouca espessura, a transmissão dos nêutrons térmicos é significativa.

Na literatura^[34] é apresentada uma tabela dos valores típicos da energia efetiva do corte de cádmio para varias geometrias.

Para a determinação da fração de nêutrons com energia intermediária r utiliza-se o Método da Diferença de Cádmio^[36]. O método consiste em irradiar dois detectores idênticos, um envolvido em cádmio e outro sem cádmio. A razão entre a atividade da folha sem e a atividade da folha com o cádmio dará a razão de cádmio definida por:

$$R_{Cd} = \frac{A_s}{A_{Cd}} \quad (2.26)$$

onde: A_s = atividade da folha sem cádmio ;
 A_{Cd} = atividade da folha com cádmio.

Considerando o caso mais simples em que um detector obedece a lei $1/v$, supondo-se que o cádmio seja um filtro perfeito, e que a energia de corte do cádmio seja maior que a energia de corte da função de junção $E_c = \mu kT$, de modo que a função de junção Δ seja igual a 1, sobre o intervalo de integração, tem-se:

$$R_{Cd} = \left[f v_T \mu^{1/2} \int_{E_{Cd}}^{\infty} \frac{\Delta}{v^2} dv \right]^{-1} = \frac{1}{4r} \left[\frac{\pi E_{Cd}}{kT} \right]^{1/2} \quad (2.27)$$

onde: f é a fração de nêutrons epitérmicos na densidade total n.

Nos cálculos que avaliam a resposta dos detectores, diferentes condições devem ser consideradas^[34]:

- a) Para um filtro perfeito de cádmio, com uma energia de corte E_{Cd} e um detector $1/v$,

$$r \sqrt{\frac{T}{T_0}} = \frac{1}{4 E_{Cd}} \sqrt{\frac{\pi T_0}{E_{Cd}}} \quad (2.28)$$

b) Para o caso de um filtro perfeito de cádmio e um detector com resposta $1/v$ até a energia de corte de E_{Cd} , mas com estrutura de ressonância acima de desta energia,

$$r \sqrt{\frac{T}{T_0}} = \frac{g}{R_{Cd} \left[s_0 - 4 \sqrt{\frac{k T_0}{\pi E_{Cd}}} \right] - s_0} \quad (2.29)$$

onde s_0 é relacionada com s pela expressão^[38]: $s_0 = s \left(\frac{T_0}{T} \right)^{1/2}$ e

s = fator de Westcott integrado apenas entre μkT e E_{Cd} , que dá a correção para a densidade de fluxo epitérmica neste intervalo;

$$s = \sqrt{\frac{4T}{\pi T_0} \frac{I'}{\sigma_0}};$$

c) Para o caso do corte do cádmio real onde sua resposta é calculada através da verdadeira secção de choque, obtém-se uma expressão similar à anterior,

substituindo $4 \sqrt{\frac{k T_0}{\pi E_{Cd}}}$ pelo coeficiente k_δ ^[57].

No caso real a energia de corte de cádmio E_{Cd} deve ser calculada levando-se em conta a espessura do cádmio, a dependência da secção de choque do cádmio com a energia e o ângulo de incidência dos nêutrons (normal ou isotrópico).

Westcott^[57] calculou teoricamente os valores dessas energias e tabelou um coeficiente k_δ que relaciona a razão de cádmio R_{Cd} com a fração de nêutrons intermediários r por meio da relação:

$$r \sqrt{\frac{T}{T_0}} = \frac{k_{\delta}}{R_{Cd}} \quad (\text{para um absorvedor } 1/v) \quad (2.30)$$

No caso em que um material se afasta ligeiramente do comportamento $1/v$ essa expressão é modificada pela introdução dos fatores de correção, de modo que a relação é dada por^[34,57]:

$$R_{Cd} = (g + r s) \left[r s + \frac{r}{k_{\delta}} \left(\frac{T}{T_0} \right)^{1/2} \right]^{-1} \quad (2.31)$$

2.4.2 Calculo da densidade de fluxo convencional ϕ_0

O formalismo de Westcott descrito no apêndice A se aplica às folhas de ativação de espessura infinitésima. Neste caso o fluxo é calculado pela expressão 2.25.

Na prática, as folhas possuem espessura finita e isso introduz pequenas perturbações que devem ser consideradas por meio de fatores de correção apropriados. Essas perturbações são geralmente mais acentuadas na região térmica, tornando-se necessária a separação da atividade induzida na folha em duas componentes: a térmica e a intermediária. Essa separação é feita pelo Método da Diferença de Cádmiio.

A componente térmica é corrigida para efeito de perturbação de fluxo e o fluxo total é então obtido por meio do conhecimento da razão de cádmio (definida na expressão 2.26)

Segundo BOTHE^[59], a expressão para o cálculo do fluxo convencional ϕ_0 , considerando-se todos os fatores de correção, é dada por:

$$\phi_0 = n v_0 = \frac{(A_s - F_{Cd} A_{Cd}) R'}{F N_0 \sigma_0 (g + r s') (R' - 1)} \quad (2.32)$$

onde:

A_s = atividade saturada da folha irradiada sem a cobertura de cádmio;

A_{Cd} = atividade saturada da folha irradiada com a cobertura de cádmio;

F = fator de correção para perturbação da densidade de fluxo térmico causada pela presença da folha (Apêndice B);

$\frac{R'}{R' - 1}$ = razão da densidade de nêutrons total e a de subcádmio (densidade de nêutrons compreendida até o corte em E_{Cd} , onde R' é a razão de cádmio para um absorvedor ideal, determinado a partir do valor de r , que por sua vez é obtido da razão de cádmio medida experimentalmente);

s' = fator de Westcott integrado apenas entre μkT e E_{Cd} , que dá a correção para a densidade de fluxo epitérmica neste intervalo;

r = fração de nêutrons epitérmicos;

g = corrige a secção de choque efetiva Maxwelliana para a influência da temperatura;

N_0 = número total de átomos da amostra;

σ_0 = secção de choque térmica;

F_{Cd} = fator de correção para a razão de cádmio, dado por^[60]:

$$F_{Cd} = \frac{G_T \frac{s_0}{g} + \frac{1}{k_\delta}}{f(\delta) G_T \left(\frac{s_0}{g} - W \right) + \frac{1}{k_\delta}} \quad (2.33)$$

onde:

G_T = fator de correção para perturbação de fluxo em uma folha de espessura t devido aos nêutrons ressonantes. Este valor é obtido de curvas teóricas^[61-63];

k_δ = coeficiente obtido dos cálculos de Westcott^[57];

$f(\delta)$ = fator que considera a transmissão através do cádmio dos nêutrons ressonantes^[60],

W = é função da integral de ressonância abaixo da energia de corte do cádmio,
 $W = 0,025^{[56]}$.

A partir do fluxo convencional - expressão 2.32- com as considerações do formalismo de Westcott, é possível obter o fluxo térmico, aplicando a correção da temperatura fornecida pela expressão A.8, apêndice A.

Na maioria das aplicações práticas é suficiente considerar que o espectro de nêutrons térmicos é o espectro de um gás de nêutrons em equilíbrio térmico com o meio moderador. Supõe-se que essas partículas respeitam a função distribuição do tipo Maxwell-Boltzmann, cuja energia mais provável (ou temperatura) é a do moderador. Na realidade, a presença de absorvedores perturba a distribuição teórica, e o conceito da temperatura do nêutron não é estritamente aplicável. Esta circunstância não impede de continuar associando ao espectro uma distribuição Maxwelliana, e permite determinar a temperatura do nêutron, que difere da temperatura do moderador.

Soluções teóricas baseadas no método de Monte Carlo e com o auxílio da Equação de Transporte associam a temperatura do nêutron à do meio moderador através da seguinte expressão^[36]:

$$T = T_m \left(1 + 1,46 \frac{\Sigma_a (k T_m)}{\xi \Sigma_s} \right) \quad (2.34)$$

onde: $\xi = \frac{2}{A + \frac{2}{3}}$, sendo A, a massa molecular da H₂O, e

$\frac{\Sigma_a}{\xi \Sigma_s} = 0,014$, levando em consideração as secções de choque macroscópicas do

moderador (H₂O).

T = temperatura do nêutron;

T_m = temperatura do moderador.

No presente trabalho foi calculada a temperatura do nêutron através da expressão 2.34.

2.4.3 Expressões envolvidas na determinação do fluxo epitérmico

A maioria dos materiais que apresentam uma secção de choque com comportamento $1/v$ na região térmica e que são utilizados para a determinação do fluxo térmico, apresentam na região epitérmica uma secção de choque caracterizada por ressonâncias. Nessas condições, a taxa de reação na região epitérmica pode ser bastante alta para alguns desses materiais, os quais podem, portanto, ser utilizados para a determinação do fluxo epitérmico.

As reações mais freqüentes que ocorrem na região epitérmica são também do tipo de captura radioativa (n,γ) , da mesma forma que no caso dos nêutrons térmicos.

Quando o material utilizado para determinar o fluxo é o ouro, não há necessidade de se preocupar com a atividade induzida na folha por nêutrons rápidos, uma vez que as secções de choque são extremamente baixas em altas energias.

Da expressão 2.20 obtém-se o valor da constante θ por meio da relação:

$$\theta = \frac{R}{N_0 I} \quad (2.35)$$

O fluxo epitérmico integrado é dado pela expressão:

$$\phi_{\text{epi}} = \theta \ln \frac{E_2}{E_1} \quad (2.36)$$

Com E_1 e E_2 limites de integração do fluxo epitérmico.

Substituindo a expressão 2.35 em 2.36 temos que o fluxo epitérmico é dado por:

$$\phi_{\text{epi}} = \frac{R}{N_0 I} \ln \frac{E_2}{E_1} \quad (2.37)$$

Na determinação da densidade de fluxo devemos considerar o fator de correção para perturbação da densidade de fluxo causado pela espessura finita das folhas.

Assim, a densidade de fluxo epitérmico é calculada pela expressão:

$$\phi_{\text{epi}} = \frac{R}{N_0 G_{\text{epi}} I} \ln \frac{E_2}{E_1} \quad (2.38)$$

onde: G_{epi} inclui o fator de correção pela depressão da densidade de fluxo na folha e o de autoabsorção, que dependem das características físicas da folha^[34] é descrito no apêndice B.

Como R é a taxa de reação dos materiais irradiados sob a cobertura de cádmio, a expressão 2.38 pode ser substituída por:

$$\phi_{\text{epi}} = \frac{A_{\text{Cd}}}{N_0 G_{\text{epi}} I} \ln \frac{E_2}{E_1} \quad (2.39)$$

Na qual A_{Cd} é a atividade do monitor irradiado com cádmio.

2.5 Formalismo de ativação

A relação entre o fluxo de nêutrons e a atividade induzida numa amostra baseia-se numa expressão que relaciona o número de átomos da amostra com a secção de choque de ativação e o fluxo dos nêutrons incidentes. Essa expressão 2.4, fornece a taxa de variação no número de átomos formados por unidade de tempo. Dessa maneira,

$$R = N_0 \sigma_0 \phi \quad (2.40)$$

onde: R = taxa de reação;

N_0 = número total de átomos da amostra;

σ_0 = secção de choque térmica de absorção do núcleo alvo;

ϕ = fluxo de nêutrons.

Há diversos casos a considerar, dependendo do tipo de núcleo alvo que está sendo bombardeado e do tipo de reação em estudo, entre eles estão:

CASO 1: este é o caso que se aplica aos monitores de fluxo, onde: os núcleos-alvo (N_0) são estáveis e possuem uma secção de choque σ_0 bem conhecida, os núcleos-produto (N_1) são radioativos, com uma constante de decaimento λ_1 ;

CASO 2: os núcleos alvo (N_1) são estáveis e possuem uma secção de choque σ_1 que se interessa medir. Estes núcleos formam, quando bombardeados, núcleos-produto radioativos (N_2);

CASO 3: quando os núcleos-alvo (N_1) são radioativos, formam na irradiação, núcleos-produtos (N_2) também radioativos que é o caso do presente trabalho;

CASO 4: quando os núcleos-alvo são radioativos, porém os núcleos-produto da irradiação são estáveis.

A seguir apresentam-se as expressões utilizadas nos cálculos da atividade induzida por nêutrons para os casos específicos do presente trabalho.

CASO 1: A variação no número de átomos radioativos formados durante a irradiação é igual a diferença entre a taxa de reação R e a taxa de decaimento. Tem-se então, considerando a expressão 2.40:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 + N_0 \sigma_0 \phi \quad (2.41)$$

onde: N_0 = número de átomos do núcleo alvo (estável);

σ_0 = secção de choque de absorção do núcleo alvo;

ϕ = fluxo de nêutrons;

N_1 = número de átomos do núcleo produto.

λ_1 = constante de decaimento do núcleo produto.

Resolvendo a equação diferencial 2.41 para um tempo de irradiação t:

$$A_1 = N_0 \sigma_0 \phi (1 - e^{-\lambda_1 t}) \quad (2.42)$$

Uma vez medida a atividade dos monitores com e sem cobertura de cádmio, é possível obter, com as correções mencionadas nos itens anteriores, o fluxo de nêutrons térmico ou epitérmico no ponto de irradiação, uma vez que os termos restantes da expressão são conhecidos.

CASO 3: A variação do número de átomos alvo (N_1) dependerá da taxa de reação assim como do decaimento que varia segundo a constante λ_1 . Esta variação pode ser expressa como:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 - N_1 \sigma_1 \phi = -(\lambda_1 + \sigma_1 \phi) N_1 \quad (2.43)$$

O número de átomos (N_1) da amostra alvo durante o tempo de irradiação t, é:

$$N_1 = N_1^0 e^{-(\lambda_1 + \sigma_1 \phi)t} \quad (2.44)$$

chamando à expressão $(\lambda_1 + \sigma_1 \phi) = \lambda_1'$.

A variação no número de átomos radioativos N_2 formados durante a irradiação dos átomos N_1 é:

$$\frac{dN_2}{dt} = -\lambda_2 N_2 + N_1 \sigma_1 \phi \quad (2.45)$$

onde: $\lambda_2 N_2$ é a taxa de decaimento, com λ_2 sendo a constante de desintegração do radionuclídeo formado da reação dos átomos N_1 .

Conclui-se que a atividade (A_2) do produto da irradiação é dada por:

$$A_2 = \lambda_2 N_2 = \lambda_2 \sigma_1 \phi N_1^0 \frac{(e^{-\lambda_1' t} - e^{-\lambda_2 t})}{(\lambda_2 - \lambda_1')} \quad (2.46)$$

3. PARTE EXPERIMENTAL

3.1 *Preparação dos alvos para a medida de secções de choque*

Os radionuclídeos utilizados nas medidas de secções de choque de captura para o ^{57}Co , ^{137}Cs e ^{241}Am foram obtidos a partir de soluções radioativas de alta pureza, desprovidas de carregador.

Com estas soluções radioativas foram confeccionados os alvos para as irradiações realizadas no reator IAEA-R1m. Estes alvos tiveram diferentes características, que levaram em consideração a posição e o tempo de irradiação, assim como os sistemas utilizados para a medida da atividade tanto do radionuclídeo alvo, como do produto da ativação.

A seguir é detalhada a metodologia utilizada na confecção dos diferentes alvos.

3.1.1 Alvo de ^{57}Co

A irradiação do radionuclídeo alvo pode ser efetuada tanto na Estação de Irradiação como próximo ao núcleo do reator. Isto está relacionado à meia-vida do ^{58}Co que é de 70,82 d o que permite que sua atividade possa ser medida tanto imediatamente, como transcorridos vários dias após a irradiação. Após testes preliminares na Estação de Irradiação, resolveu-se irradiar este elemento no núcleo do reator. Desta maneira obteve-se uma considerável melhoria na

estatística de contagem do radionuclídeo produto, como uma consequência da maior densidade de fluxo de nêutrons próximo ao núcleo do reator. A posição escolhida (36B prateleira 6) é destacada na figura 3.2. Nesta figura pode ser observada a sua localização com respeito aos elementos combustíveis e demais posições de irradiação.

Para esta amostra foi escolhido um tubo de quartzo como porta-amostra, em razão de sua resistência à irradiação e ser constituído por elementos (SiO_2) cuja ativação com nêutrons não interferem nas medidas de atividade.

Os alvos de ^{57}Co consistiram de alíquotas de uma solução aquosa de cobalto e HCl com uma atividade de ~ 15 kBq do radionuclídeo em estudo. Estas alíquotas (~ 10 μl) foram colocadas em ampolas de quartzo $\sim 48,6$ mm de comprimento, 8,3 mm de diâmetro externo e espessura de parede de 0,8 mm. Após a evaporação da solução, a ampola de quartzo foi selada em maçarico.

3.1.2 Alvo de ^{137}Cs

Considerando que a meia-vida do ^{138}Cs é de apenas 33,4 min decidiu-se efetuar as irradiações desta amostra na Estação de Irradiação 3, que permite sua retirada imediatamente após a irradiação.

Em razão da necessidade dos tempos de irradiação serem curtos neste dispositivo (até 30 min), o porta-alvo escolhido foi de polietileno, em lugar do quartzo, pela maior facilidade de selagem.

O alvos foram confeccionados por meio do depósito de uma solução aquosa de césio e HCl contendo uma atividade de $\sim 1,1$ MBq de ^{137}Cs , sobre um filme de polietileno de 0,4 mm de espessura, utilizando uma micro-pipeta de 5 μl . Após a evaporação da solução, foi colocado outro filme de polietileno sobre o material radioativo (da mesma espessura do anterior), para evitar perdas do

material radioativo e conseguir uma simetria lateral dos materiais adjacentes à amostra. O conjunto de filmes foi em seguida selado termicamente. Em cada caso foi verificada a ausência de contaminação nas bordas. Este teste consistiu em esfregar um material absorvente (papel de filtro adequado ou a ponta de um cotonete) nos laterais das fontes, em seguida foi verificada a taxa de contagem em um detector de contaminação superficial.

Antes da irradiação, e com o objetivo de diminuir a massa de polietileno e por conseguinte a atividade induzida no mesmo, em consequência da irradiação com nêutrons, foram realizadas auto-radiografias das fontes. Uma vez revelados os filmes, e determinada a posição do material radioativo, o polietileno excedente foi cortado, conseguindo-se assim uma considerável diminuição da radiação de fundo nos espectros analisados após as irradiações.

3.1.3 Alvo de ^{241}Am

O ^{241}Am decai pela emissão de uma partícula alfa, enquanto que o ^{242}Am decai por captura eletrônica e β^- (figura 2.5). Além disso, a probabilidade de emissão gama das transições do ^{242}Am é praticamente desprezível. Estas características levaram à necessidade de se utilizar o detector de coincidências beta-gama nas medidas para a determinação da atividade para estes radionuclídeos. Considerando as características necessárias das fontes a serem medidas por este sistema, tanto o radionuclídeo alvo como o produto da ativação tiveram que ser extraídos do invólucro irradiado, para a sua utilização na confecção das fontes a serem medidas. Este procedimento é apresentado no item 3.3.

Os alvos para a irradiação deste radionuclídeo consistiram no depósito de uma solução de ^{241}Am (aproximadamente 5 μl de uma solução aquosa de amerício e HCl com uma atividade total de ~ 40 MBq de ^{241}Am), em um invólucro plástico duplo. Cada invólucro consistiu em um envelope de polietileno de 0,2 mm

de espessura e aproximadamente 8x8 mm e 12x12 mm de lado, respectivamente. Após a evaporação da solução, as laterais abertas dos invólucros foram seladas. Em todos os casos realizaram-se testes de esfregaço sendo verificada a ausência de material radioativo com um detector de contaminação superficial, com o objetivo de verificar possíveis contaminações nas bordas. O processo de evaporação foi efetuado em uma dessecadora com sílica-gel.

3.1.4 Monitores de fluxo de nêutrons

A escolha dos materiais monitores do fluxo de nêutrons levou em conta as vantagens e desvantagens da utilização de cada um deles em relação ao tipo de irradiação, e as características do material alvo em estudo. Os materiais escolhidos foram os seguintes:

- fios de liga $^{197}\text{Au-Al}$ com concentração de 0,10 % de ouro. Este material produz uma perturbação, considerada desprezível, no fluxo de nêutrons na posição de irradiação, em consequência da baixa quantidade de átomos de Au. Por outro lado, o Al possui uma seção de choque de ativação pequena para nêutrons térmicos $\sigma_{\text{act}} = 0,230(3) \text{ b}^{[58]}$;
- fios de liga $^{59}\text{Co-Al}$ com concentração de Co de 0,475%. Em consequência da baixa concentração de Co presente nos monitores, este material produz uma perturbação também desprezível no fluxo de nêutrons na posição de irradiação;
- folhas de ouro puro, este material pode perturbar de forma considerável o fluxo de nêutrons na posição de irradiação. Entretanto este material foi utilizado em apenas algumas irradiações para comprovar as percentagens de Au presentes nos fios de liga Au-Al.

3.1.5 Limpeza, acondicionamento e determinação das massas das amostras e monitores

A limpeza das amostras e monitores foi feita com um solvente adequado com objetivo de remover impurezas indesejáveis das superfícies, que poderiam ser ativadas durante a irradiação:

- O polietileno, com o qual foram confeccionadas as fontes de ^{241}Am e ^{137}Cs foi limpo com tetracloreto e álcool etílico antes de serem utilizados, conforme descrito no item 3.1;
- As ampolas de quartzo foram lavadas com uma solução 2 % de Extran, enxaguadas com água destilada, lavadas novamente com ácido oxálico e enxaguadas com água destilada. Finalmente foram lavadas com álcool etílico. Após serem seladas e terem suas atividades medidas no espectrômetro de HPGe, as ampolas foram lavadas exteriormente com detergente, enxaguadas com água destilada e acetona;
- os discos ou fios metálicos foram limpos com acetona.

As massas dos monitores foram as seguintes:

- fios de liga Au-Al ~ 0,0040 g;
- fios de liga Co-Al ~ 0,0250 g e
- folhas de Au puro ~ 0,0015 g.

Estas massas foram determinadas em uma balança analítica Mettler M5SA, com uma incerteza da ordem de $\pm 20 \mu\text{g}$.

Após este procedimento, as amostras foram acondicionadas para evitar a contaminação com impurezas que poderiam ser ativadas durante a irradiação. O acondicionamento levou em consideração o local e tempo que as amostras iriam ser irradiadas no reator. Desta maneira, as amostras e monitores foram:

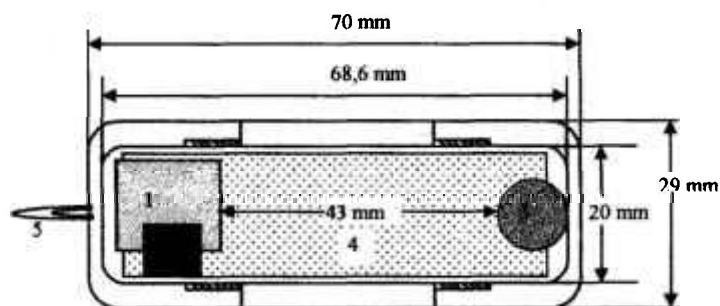
- introduzidas em invólucros plásticos, após o qual estes invólucros foram selados, para o caso das irradiações a serem efetuadas na Estação de Irradiação;

- envolvidos em folhas finas de alumínio (~0.05 cm), para o caso das irradiações que a serem efetuadas no núcleo do reator.

A escolha da primeira das modalidades de acondicionamento para as irradiações efetuadas na Estação foi resultado da necessidade de retirar-se rapidamente as amostras do reator (exemplo: irradiações de ^{137}Cs).

Os alvos radioativos e os monitores de fluxo foram adequadamente dispostos nos dispositivos de irradiação (“coelhos”) de polietileno ou alumínio, conforme fossem irradiados na Estação de Irradiação ou próximas ao núcleo do reator, respectivamente.

No caso das irradiações na Estação de Irradiação, as amostras foram fixadas dentro do dispositivo por meio de uma espuma, a qual impossibilita possíveis movimentos dos materiais, evitando assim uma aproximação indesejável do cádmio que envolvia alguns monitores. O Esquema do dispositivo de irradiação é apresentado na figura 3.1.



- 1- invólucro de polietileno com amostra alvo (~12x12 mm);
- 2- invólucro de polietileno com monitores de fluxo (~8x8 mm);
- 3- caixa de cádmio com monitores de fluxo, (diâmetro 12 mm, altura 2,2 mm);
- 4- espuma para afixar as amostras;
- 5- dispositivo para amortecer o impacto no tubo pneumático.

Figura 3.1: Esquema do coelho de polietileno e posicionamento das amostras, utilizado nas irradiações da Estação 3.

Como é apresentado na literatura^[34], existe uma distância mínima a ser mantida, entre as amostras a serem irradiadas com e sem cádmio.

No caso das amostras irradiadas no núcleo, esta distância foi mantida por meio de uma lâmina de alumínio recortada de modo a permitir a fixação das amostras no interior do “coelho” de alumínio.

3.2 Irradiação dos alvos

As amostras (constituídas pelos alvos de material radioativo e os monitores de fluxo) foram irradiadas no reator **IEA-R1m**. Este é um reator de tipo piscina, de 5 MW (operando a 2 MW) de potência, com elementos combustíveis do tipo MTR (Material Testing Reactor), compostos por 20 placas planas paralelas, contendo uma liga de U-Al. A figura 3.2 apresenta um esquema simplificado da disposição dos elementos constituintes do núcleo do reator.

Para irradiações efetuadas próximas ao núcleo (para algumas posições $\phi_{th} \approx 4 \times 10^{12}$ n/cm².s), os tempos de irradiação podem ser prolongados, porém o tempo de espera após a irradiação pode ser de várias horas ou dias, em razão da atividade alcançada pelos elementos irradiados (cádmio, filmes de alumínio, ou pelo invólucro externo). Isto pode ocasionar uma taxa de exposição acima dos limites permitidos para o manuseio de materiais radioativos caso se deseje retirar a amostra com antecedência. Outra característica é que o fluxo de nêutrons é em geral uma ordem de grandeza maior que o obtido na Estação 3 ($\phi_{th} \approx 2,4 \times 10^{12}$ n/cm².s), conseguindo-se assim maiores atividades do radionuclídeo produto da reação em estudo.

As Estações de irradiação utilizam um sistema pneumático para posicionamento das amostras próximo ao núcleo do reator, conforme mostra a figura 3.2. Nas estações de irradiação 3 e 4 do reator **IEA-R1m** as irradiações só podem ser feitas em períodos curtos, inferiores a 30 minutos em virtude da

fragilidade do coelho de polietileno. A Estação de Irradiação 3 foi escolhida em razão do seu fluxo de nêutrons ser superior ao da Estação 4 ($\phi_{th} \approx 4 \times 10^{11}$ n/cm².s). A distância da posição de irradiação da Estação 3 à fase lateral mais próxima do núcleo é de ~178 mm. Esta distância permite obter um espectro de nêutrons acentuadamente moderado.

No caso das irradiações efetuadas próximas ao núcleo do reator, as amostras foram fixadas dentro do “coelho” de alumínio, com uma lâmina do mesmo material, de modo a garantir a geometria desejada e evitar possíveis movimentos das amostras. Na maioria dos casos, as distâncias entre as amostras irradiadas com e sem cobertura de cádmio, manteve-se aproximadamente no mesmo valor que a utilizada nas irradiações da Estação (ver figura 3.1).

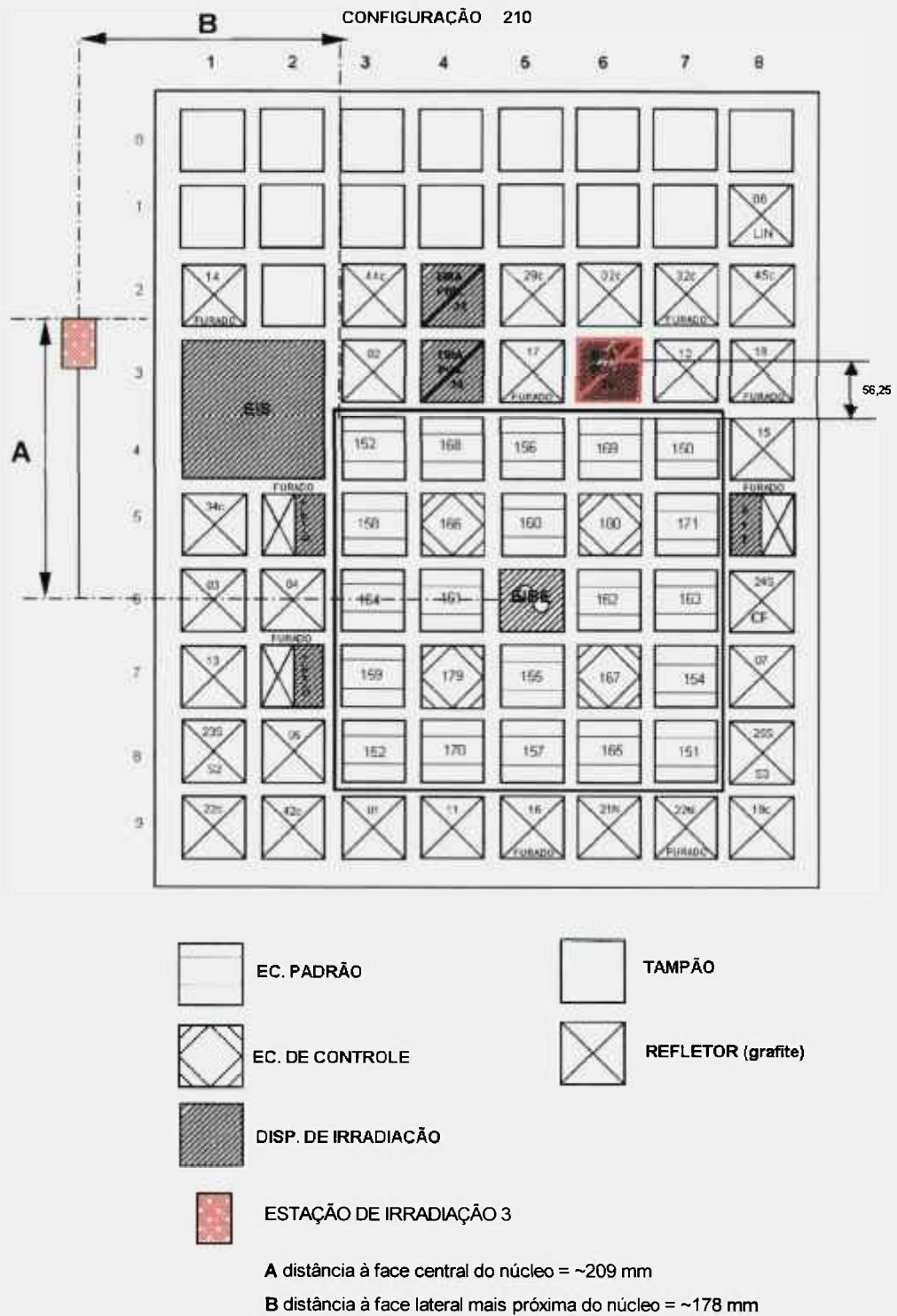


Figura 3.2: Esquema simplificado do núcleo do reator IEA-R1m.

3.2.1 Irradiação do ^{57}Co

A amostra de ^{57}Co , juntamente com os monitores de fluxo foram irradiados na posição 36 B prateleira 6, que dista ~56 mm do elemento combustível mais próximo.

Os tempos de irradiação foram de 10 h no caso das irradiações sem cobertura de cádmio e de 15 h no caso das irradiações com uma cobertura de 0,58(5) mm de cádmio.

Na primeira irradiação, juntou-se à ampola de quartzo contendo o material radioativo uma outra ampola vazia, também de quartzo, de massa muito próxima à da primeira (~2,0 g), que serviu de branco. A irradiação do branco teve como objetivo comparar os espectros de ambas amostras a fim de verificar a presença de raios gama de decaimento do invólucro, cujas energias pudessem interferir naquelas dos decaimentos estudados. Após o primeiro ensaio, verificou-se que os espectros de decaimento dos materiais em estudo não tinham contaminações e nas irradiações subsequentes o “branco” foi suprimido.

3.2.2 Irradiação do ^{137}Cs

As amostras contendo este radionuclídeo foram irradiadas na Estação de Irradiação 3, juntamente com os monitores de fluxo. Os materiais, devidamente acondicionados conforme detalhado no item 3.1.1, foram colocados no dispositivo plástico de irradiação (coelho), cujo desenho é apresentado na figura 3.1.

Em razão da baixa estatística alcançada no pico de decaimento do ^{138}Cs , foram efetuadas nove irradiações independentes.

3.2.3 Irradiação do ^{241}Am

Após o acondicionamento, detalhado no item 3.1.1, as amostras contendo este radionuclídeo foram irradiadas na Estação de irradiação 3 com o dispositivo apresentado na figura 3.1, juntamente com os monitores de fluxo. Os tempos de irradiação foram de 30 min no caso das irradiações dos materiais sem cobertura de cádmio. As irradiações com cobertura de cádmio realizaram-se em dois ciclos de irradiações de 30 min cada uma fazendo a troca do coelho de polietileno. Esta troca de coelho é necessária devido ao dano provocado no mesmo pela radiação (nêutrons e γ) dentro do núcleo do reator.

3.3 Preparação das amostras a serem medidas

Uma vez finalizada a irradiação, as amostras foram retiradas do reator e acondicionadas para as respectivas medidas. Em todos os casos foi retirado o polietileno ou folha fina de alumínio, utilizado para evitar possíveis contaminações indesejadas.

Após a retirada do alumínio que envolvia a ampola de quartzo, foi medida a atividade do ^{57}Co e ^{58}Co presente nas ampolas. Os detalhes da medida são apresentados no item 3.4.3.

As fontes de ^{137}Cs foram fixadas num suporte de fonte na forma de “anel” de alumínio com 3,00 mm de espessura ~30 mm e ~20 mm de diâmetros externo e interno, respectivamente. Este “anel” consiste de duas partes que se encaixam, de modo a fixar o polietileno substrato da fonte, conforme se observa na figura 3.3.

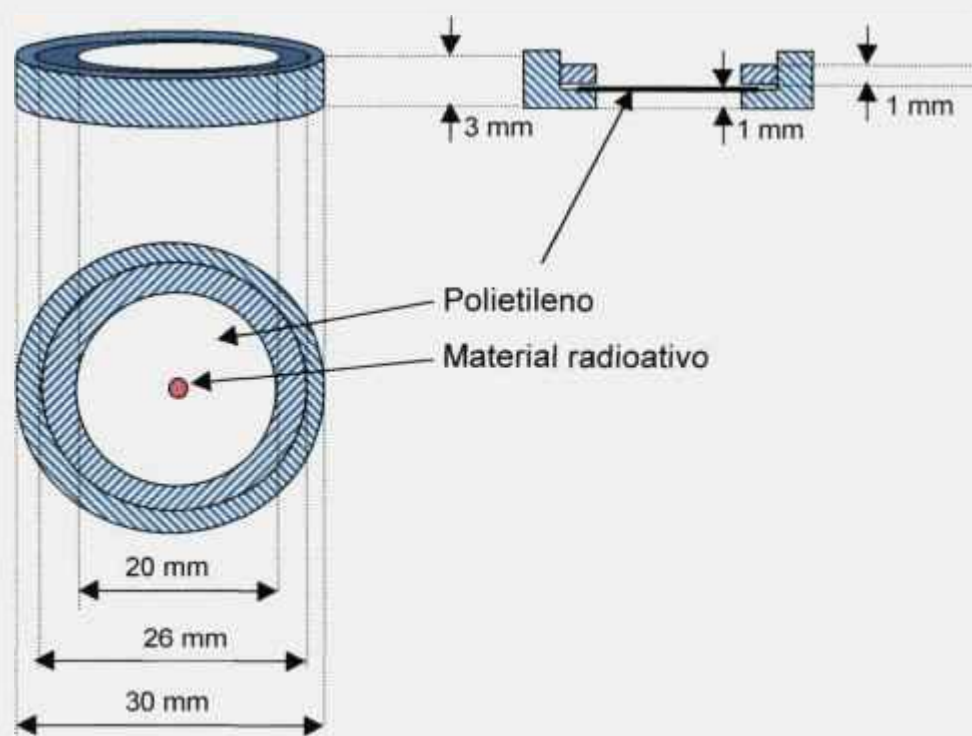


Figura 3.3: Esquema do anel de alumínio, suporte das amostras confeccionadas em polietileno.

Para determinar a atividade do ^{241}Am e ^{242}Am , utilizou-se o sistema de medida $4\pi\beta\text{-}\gamma$ e prepararam-se as fontes conforme descrito a seguir.

Para extrair os radionuclídeos ^{241}Am e ^{242}Am , foram depositados aproximadamente $50\ \mu\text{l}$ de numa solução de HCL 1 M (solvente) no invólucro interno, onde havia-se depositado o material radioativo. O solvente foi extraído com um picnômetro. A mesma solução foi introduzida e extraída repetidas vezes (no mínimo três vezes), do invólucro irradiado.

Como o sistema de medida utilizado para o estudo deste radionuclídeo tem como pré-requisito o uso de substratos condutores, $\sim 10\ \mu\text{l}$ da solução com Am irradiado foram depositados em um substrato de COLLODION (nitrato de celulose). Este substrato é constituído por uma arandela de aço inox de 40 mm e 25 mm de diâmetro externo e interno, respectivamente, onde é aderido o filme de

COLLODION, o qual é metalizado com Au com densidade superficial de aproximadamente $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. O esquema do substrato e amostra utilizados podem ser observados na figura 3.4.

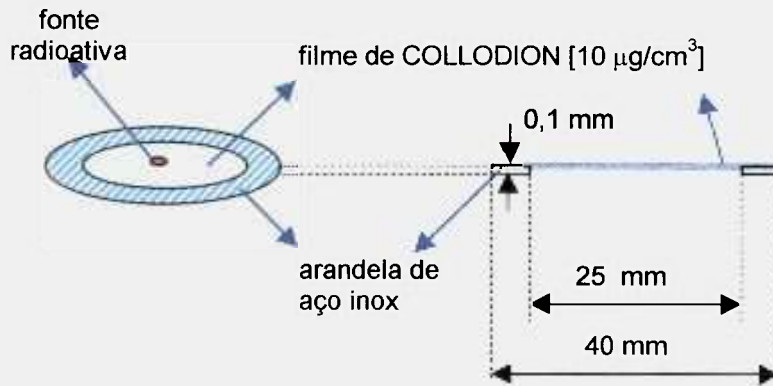


Figura 3.4: Esquema da arandela de aço inox, substrato de COLLODION e fonte radioativa utilizados no sistema de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$.

Para minimizar o efeito de cristalização do resíduo durante o processo de secagem, cada fonte foi preparada da seguinte forma:

- a) aplicação de uma gota de um agente (CYASTAT S.N), antes da deposição da solução radioativa;
- b) depósito de uma alíquota da solução radioativa. De acordo com a solução utilizada obtiveram-se três tipos diferentes de amostras:
 - 1) fontes mistas, contendo o Am irradiado ($\sim 6 \text{ MBq}$ de ^{241}Am) mais o depósito de uma alíquota de uma solução contendo ^{60}Co ($\sim 2 \text{ MBq}$), elemento utilizado como “traçador”;
 - 2) fontes de calibração do sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$, contendo unicamente uma alíquota da solução de ^{60}Co , e
 - 3) fontes contendo uma alíquota da solução de ^{241}Am sem irradiar;
- c) após a deposição das soluções, as fontes passaram por um processo de secagem em fluxo de N_2 aquecido a $\sim 45 \text{ }^\circ\text{C}$ ^[64];
- d) Uma vez secas as fontes, foi colocado sobre elas um outro filme de COLLODION previamente metalizado.

Os monitores de fluxo de nêutrons foram retirados dos invólucros correspondentes e medidos num dos sistemas que são apresentados no item 3.4.

3.4 Medida das amostras

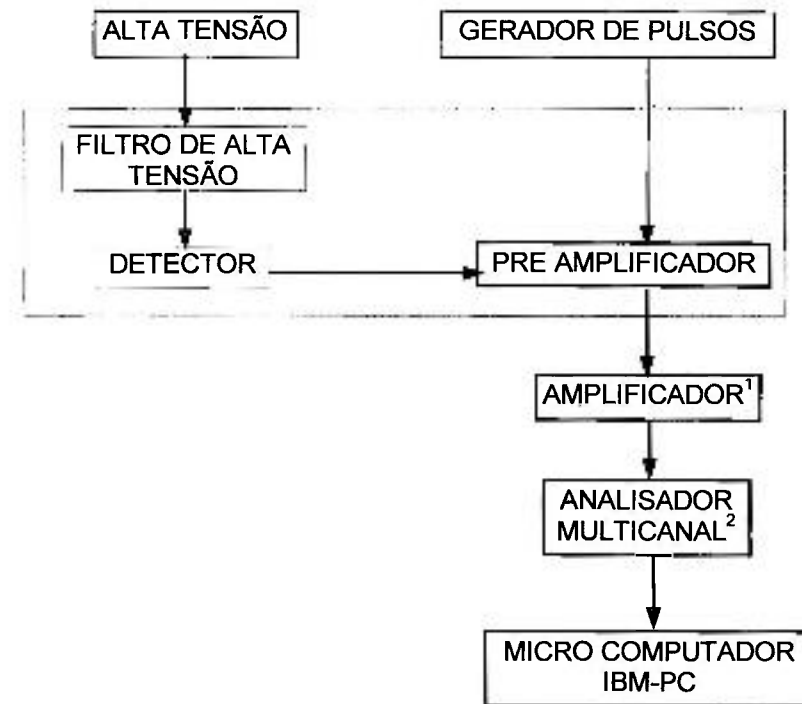
Os detectores utilizados no presente trabalho foram:

- Detector de Germânio Hiper Puro (HPGe), marca INTERTECHNIQUE - tipo EGC 20, de geometria cilíndrica, eficiência relativa de 20 % e resolução de ~ 3 keV para a energia de 1332,5 keV do ^{60}Co .
- detector proporcional de geometria 4π em coincidência com detectores NaI(Tl).

3.4.1 Descrição do espectrômetro de HPGe

A medida das atividades dos materiais cujo decaimento está associado à emissão de raios gama, foi efetuada utilizando o detector de Germânio Hiper Puro (HPGe). Este detector possui um diâmetro externo de 51,2 mm e área sensível $20,6 \text{ cm}^2$ e volume sensível $99,7 \text{ cm}^3$. O detector opera a -3000 Volts.

A eletrônica associada ao detector, é aquela convencional e esquematizada na figura 3.5. O sistema é constituído pelo detector acoplado a um pré-amplificador, um filtro de alta tensão, amplificador, analisador multicanal e micro computador do tipo PC.



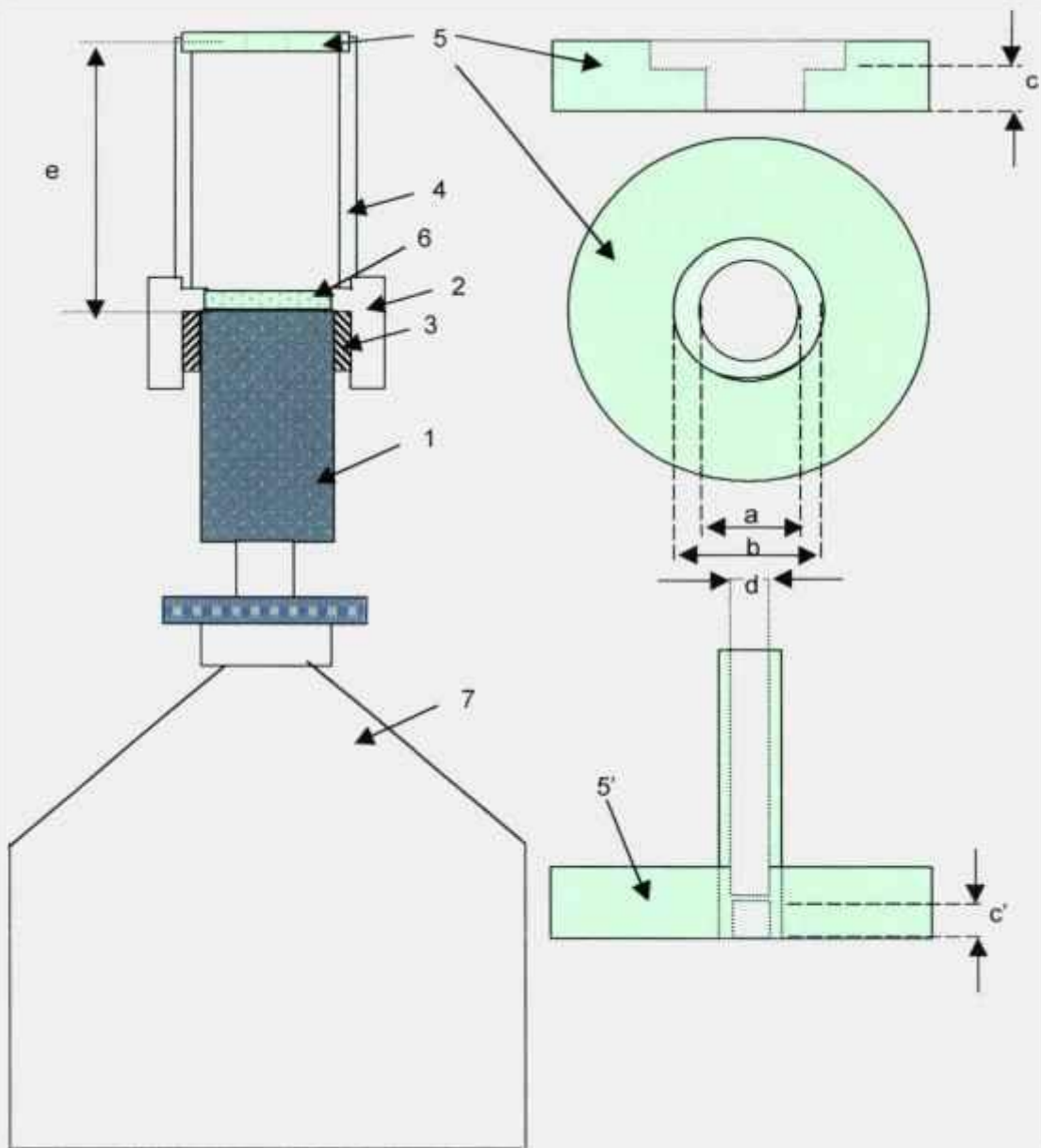
¹ Amplificador marca INTERTECHNIQUE, modelo 724;

² Analisador Multicanal CANBERRA GENIEPC com 2048 canais.

Figura 3.5: Sistema eletrônico para medição da radiação gama com o HPGe

Os sinais de saída do pré-amplificador, foram coletados no amplificador (INTERTECHNIQUE, modelo 724) e introduzidos no analisador multicanal (CANBERRA GeniePC). Os espectros assim obtidos foram analisados num microcomputador IBM compatível.

A metodologia de medição consistiu na colocação das diferentes amostras em suportes fixos com geometrias reproduzíveis, como poder ser observado na figura 3.6.



- 1 – detector de HPGe;
- 2 – base de lucite;
- 3 – anel fixador;
- 4 – tubo de lucite. O suporte possui tubos de diferentes alturas (e), para variadas distâncias fonte-superfície do detector;
- 5 – suporte de lucite para fonte, com diâmetros internos (b) diferentes, dependendo do tipo de fonte: padrão, com anel de alumínio ou de anéis de aço inox;
- 5' – suporte de lucite para fonte de quartzo;
- 6 – disco de lucite;
- 7 – criostato.

Figura 3.6: Esquema do detector e suporte de fontes.

O detector de HPGe (1) possui na parte superior, um anel fixador (3) e um suporte usinado em lucite (2), no qual se encaixam tubos do mesmo material, de diferentes alturas (4). Estes últimos foram usinados de modo a garantir a reprodutibilidade no posicionamento da fonte dentro de $\pm 0,3$ mm. As distâncias (e) fonte-superfície do detector foram de 26,8 mm e 88,2 mm.

No detector de HPGe, na parte inferior dos tubos de lucite, dentro do suporte de lucite e sobre o detector, colocou-se um disco do mesmo material de 15 mm de espessura (6), cujo objetivo é absorver as partículas beta provenientes do decaimento das fontes. Este material, composto por elementos de baixo número atômico, possui a vantagem de blindar o detector contra partículas carregadas sem a produção da radiação por freiamento, característica nos elementos com alto Z.

O dispositivo foi projetado de modo a possibilitar a colocação de diferentes suportes de amostras (5 e 5'), cujas dimensões são detalhadas a seguir:

- fontes de calibração, com dimensões: $b = 25,0$ mm, $c = 2,4$ mm;
- fontes com polietileno e anel de alumínio:
 $b = 30,0$ mm, $c = 1,7$ mm;
- fontes em COLLODION: $b = 40,5$ mm, $c = 4,0$ mm;
- ampolas de quartzo: $c' = 1,2$ mm, $d = 8,40$ mm.

O suporte para ampolas de quartzo (5'), figura 3.6, consiste em uma base cilíndrica de lucite com um orifício central de 10,5 mm de diâmetro. Neste orifício fixou-se um tubo, também de lucite, de dimensões: 8,6 mm de diâmetro interno, 10,5 mm de diâmetro externo e 30 mm de comprimento. A base do tubo possui um disco do mesmo material de $\sim 0,1$ mm de espessura. Este disco permite fixar a posição da ampola. Neste suporte, a ampola de quartzo permanece em posição vertical, com a base plana mais próxima ao detector.

No caso das medidas de ^{137}Cs , as amostras foram colocadas em um suporte de lucite, preso a um par de tubos guias de aço inox, de modo a manter-

se a uma distância fonte superfície do detector de 70 mm com uma ótima reprodutibilidade ($\pm 0,3$ mm).

3.4.1.1 Metodologia utilizada para a determinação de atividades com o detector HPGe

A metodologia de medida utilizada para a determinação de atividades com este detector baseia-se na calibração adequada da eficiência de detecção (com fontes de referência) para uma geometria específica.

Com os parâmetros desta curva podem ser calculadas as eficiências de detecção para as diferentes transições gama das amostras e a partir destes valores obterem-se as atividades correspondentes. As características de decaimento e emissão das fontes padrão utilizadas no presente trabalho são apresentadas na Tabela 4.1.

A eficiência de detecção foi determinada pela seguinte relação:

$$\varepsilon_{\gamma}(E) = \frac{S}{A I_{\gamma} t_m f_{geo} f_{\tau} f_A} \quad (3.1)$$

onde:

$\varepsilon_{\gamma}(E)$ = eficiência de pico para a energia E;

S = área sob o pico de absorção total para a energia gama considerada;

A = atividade da fonte padrão com a correspondente correção por decaimento apresentada no apêndice D, expressão D.3;

I_{γ} = probabilidade de emissão gama por decaimento;

t_m = tempo de medida;

f_{geo} = fator geométrico (leva em conta as diferentes distâncias entre a fonte padrão (D_p) e a fonte de atividade desconhecida (D_{fd}) com relação ao centro efetivo do detector) = D_p^2 / D_{fd}^2 ;

f_t = fator de tempo morto = $\frac{\text{área do puls. com fonte}}{\text{área do puls. do BG}}$
 f_A = fator de atenuação (correção devido ao envoltório da fonte)
 = $e^{\mu \rho x}$ para absorvedores externos à fonte;
 = $\frac{\mu \rho x}{1 - e^{-\mu \rho x}}$ para absorvedores internos à fonte; μ é o coeficiente de atenuação linear total que é uma função da energia^[65], ρ é a densidade do material e x é a espessura do envoltório da fonte. No caso dos fios, foi efetuado um cálculo considerando a forma da secção transversal dos mesmos como sendo circular. Como consequência destes cálculos, utilizou-se na determinação da atividade dos fios, $x = R_f \pi / 2$, para este fator de atenuação. Onde R_f é o raio do fio.

O cálculo das eficiências de detecção de cada linha de emissão das fontes padrões medidas, foi efetuado por meio do programa UNITCOV^[66]. Este programa, elaborado em linguagem FORTRAN, calcula a atividade ou eficiência de detecção (segundo as opções de entrada) para cada energia gama da fonte medida, a partir do espectro obtido. As opções que permitem operar este programa são:

- a calcula a eficiência (ou a atividade);
- b podem ser ingressados os parâmetros da curva de calibração ou a eficiência de uma energia de transição gama específica;
- c área sob o fotopico (calculada ou incluída como dado de entrada);
- d canais que delimitam o pico e as contagens de fundo (o programa localiza o centroide do fotopico, determina a largura a meia altura e os canais ou ingressam-se os valores desejados para o cálculo das áreas);
- e correção do tempo morto (é calculado pelo programa ou especifica-se a mesma);
- f distância em canais do pico ao início da contagem de fundo (em unidades de FWHM –largura à meia-altura);
- g subtração ou não da contagem de fundo.

Maiores detalhes dos cálculos da área sob o pico de absorção total, fator geométrico e correção devida ao tempo morto são apresentados no apêndice D.

Os efeitos de soma em cascata das amostras utilizadas como padrões, foram corrigidos por meio de expressões que consideram a eficiência total de cada energia gama de decaimento^[67]. A curva de eficiência total foi obtida por meio da seguinte expressão^[68]:

$$\varepsilon_T(E) = \frac{S_T}{S_p} \varepsilon_\gamma(E) \quad (3.2)$$

onde:

$\varepsilon_T(E)$ = eficiência total para a energia E;

S_p = contagens líquidas do fotopico de energia E;

S_T = contagens líquidas do espectro total.

$\varepsilon_\gamma(E)$ = eficiência de pico para a energia E

As fontes utilizadas para determinar a curva de eficiências totais foram: ^{57}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{198}Au e ^{241}Am .

Com a curva de eficiências totais, corrigiram-se as eficiências de pico das energias de 59,54 keV do ^{241}Am , 136,48 keV do ^{57}Co e 1332,5 keV do ^{60}Co pelo efeito de soma em cascata. A seguir, calcularam-se novamente os valores de ε_T para as energias utilizadas no ajuste. Realizou-se um novo ajuste de eficiências totais corrigidas possibilitando o cálculo dos fatores de correção para ^{133}Ba e ^{152}Eu de acordo com as expressões apresentadas na literatura^[67]. Uma vez corrigidos os valores de eficiência de pico dos padrões utilizados ajustou-se a curva de eficiência para o pico de absorção total em função da energia, obtendo-se, por interpolação, as eficiências de detecção gama para os diferentes radionuclídeos envolvidos no presente trabalho.

No ajuste de ambas as curvas de eficiências em função da energia foi utilizado o programa LOGFIT^[69]. Este programa realiza um ajuste polinomial de

$\ln(\varepsilon)$ vs. $\ln(E)$, pelo método dos mínimos quadrados. O programa considera todas as incertezas parciais envolvidas, bem como o seu grau de correlação. Fornece, além dos parâmetros de ajuste da curva de eficiência em função da energia, as incertezas nos parâmetros do ajuste, matriz de covariância nos parâmetros e o χ^2 do ajuste. De acordo com os dados do arquivo de entrada, o programa fornece também o valor interpolado da eficiência de detecção de energias previamente especificadas, sua incerteza e a matriz de correlação das incertezas das eficiências das energias escolhidas.

Com os parâmetros do ajuste para uma geometria particular, foi possível obter a atividade das fontes através do mesmo programa UNITCOV^[66], que as calcula através da expressão 3.1, colocando em evidência a atividade, A. Isto é realizado de acordo com os parâmetros de entrada descritos acima. Neste cálculo são consideradas todas as incertezas parciais correspondentes aos fatores da expressão 3.1, assim como as incertezas nas eficiências de detecção que surgem das incertezas nos parâmetros da curva de eficiências e a matriz de correlação dos parâmetros obtidos no ajuste por mínimos quadrados mencionado.

3.4.2 Descrição do sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$

O sistema de coincidência $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$ utilizado no presente trabalho, compõe-se de um detector de geometria 4π , tipo pill-box, a gás fluente operando em regime proporcional, empregado na detecção de partículas (α , β^- , β^+ e elétrons), acoplado a dois cristais de NaI(Tl), utilizados para medir as radiações gama coincidentes.

Contador proporcional 4π (PC)

O contador proporcional apresenta baixo ruído, baixa sensibilidade para radiação gama (<1 %), tempo de recuperação de ≈ 100 ns, e alta sensibilidade para partículas beta.

O detector 4π (PC) do LMN/ IPEN é formado por duas partes simétricas de latão, entre as quais desliza uma gaveta com um orifício, para a colocação das fontes. A vedação é garantida por um sistema de anéis de borracha colocados em cada uma das duas partes. O volume interno de cada parte é delimitado por definidores de latão, que a torna aproximadamente cilíndrica, tendo 30 mm de diâmetro e 75 mm de comprimento. Em cada uma das partes, estende-se paralelamente ao eixo do cilindro, um ânodo, constituído por um fio de aço inoxidável, de 25 μ m de diâmetro, preso pelas extremidades a isoladores de teflon.

O gás utilizado neste detector é uma mistura de 90 % de argônio com 10% de metano (P10), e é operado a pressão atmosférica. O detector funciona como contador de eventos pois, em geral, as partículas beta depositam somente uma fração de sua energia no volume sensível.

Este sistema é normalmente operado com uma tensão de 2050 V na medida de fontes beta-emissoras e de 1400 V, na medida de fontes alfa-emissoras.

Cristal cintilador de NaI(Tl)

Em contato direto com as paredes inferior e superior, de 0,3 cm de espessura do contador “pill-box”, estão posicionados dois cristais cintiladores de iodeto de sódio ativados com tálio, (NaI(Tl)), com dimensões de 76 mm x 76 mm.

A tensão de operação de cada cristal foi de 1.100 Volts, e a medida foi feita apenas nos picos de absorção total dos gamas em estudo. Todo o sistema possui

uma blindagem de chumbo (de 5 cm de espessura) para diminuir a radiação de fundo, principalmente para os cristais de NaI(Tl).

O sistema eletrônico associado (figura 3.7) é o convencional para este tipo de medida e é constituído por três vias distintas:

- *Via Beta* - Nesta via, os pulsos provenientes do detector 4π (PC), após serem amplificados, passam por um discriminador (analisador de altura de pulso mono-canal) para serem selecionados os intervalos de energia de interesse. Os pulsos selecionados são enviados a um analisador de porta de atraso que permite fixar eletronicamente o tempo morto e o tempo de resolução do sistema. Após esse processo, os pulsos são enviados simultaneamente a um contador e à via de coincidência;
- *Via Gama* - Os pulsos provenientes dos cintiladores são somados após sua amplificação, e os intervalos de energia de interesse são selecionados por meio de dois analisadores de altura de pulso mono-canais. Os tempos de resolução foram fixados eletronicamente por um módulo semelhante ao da via beta. Desta maneira, os pulsos são enviados simultaneamente aos contadores gama e às vias de coincidência (uma para cada energia gama);
- *Via de Coincidência* - Esta via é constituída de um módulo eletrônico, que registra os eventos provenientes de radiações emitidas simultaneamente.

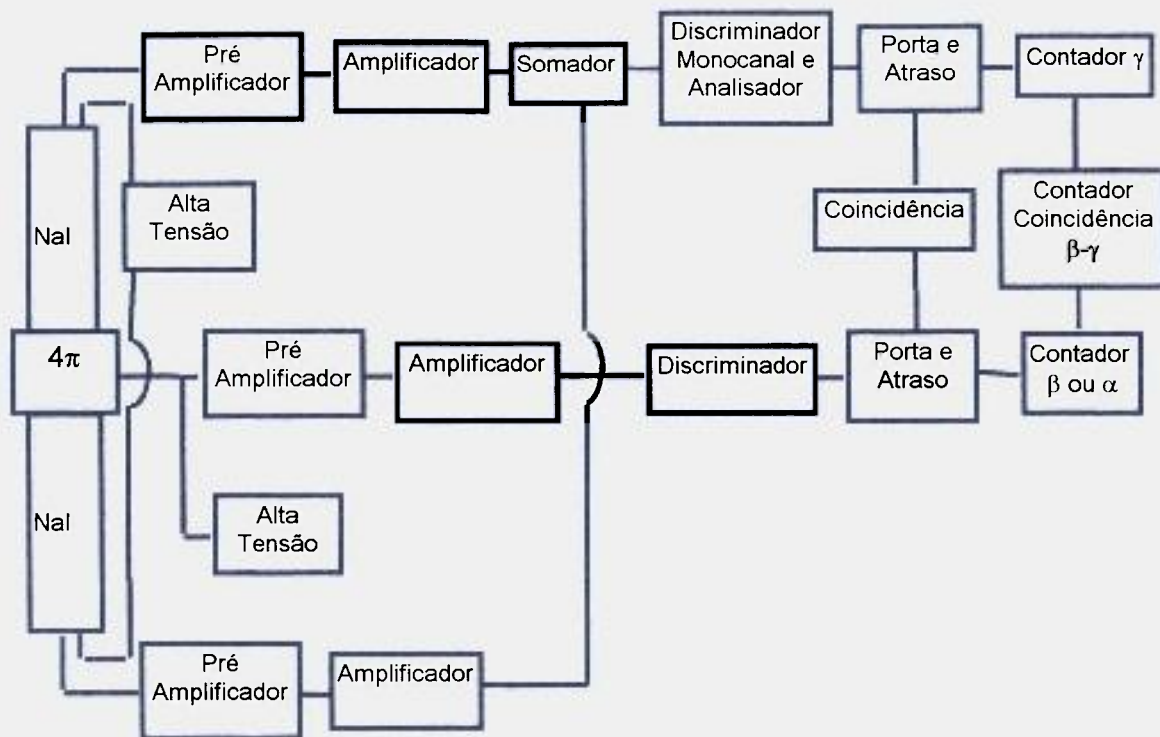


Figura 3.7: Arranjo eletrônico para o sistema de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$.

As radiações simultâneas provenientes da desintegração radioativa estudada foram detectadas e processadas por detectores diferentes e passaram por vários módulos eletrônicos, podendo ocasionar defasagem no tempo de chegada ao módulo de coincidência dos pulsos. Para corrigir este efeito, utilizou-se uma linha de atraso incorporada ao analisador monocanal, que coloca os pulsos das vias beta e gama em fase, de modo a atingir o módulo de coincidência sincronizados no tempo^[70].

O módulo de coincidência funciona como uma porta "E", registrando as coincidências apenas quando os pulsos provenientes das duas vias de detecção atingem a unidade de tempo pré-estabelecido, conhecido como tempo de resolução " τ_R ".

Neste tipo de detector são utilizados dois tipos de medidas, que podem ser divididos basicamente em:

- a) métodos diretos, quando a radiação é detectada em condições geométricas bem definidas, ou quando todas as radiações emitidas são detectadas. Esta foi a metodologia utilizada para determinar a atividade do ^{241}Am ;
- b) método de coincidência, quando por meio da medida adequada das taxas de contagem, a taxa de desintegração pode ser determinada sem o conhecimento exato dos parâmetros do detector, tais como ângulo sólido, eficiência etc. Esta foi a metodologia utilizada para determinar a atividade do ^{242}Am , associada ao Método do Traçador^[50]. Os detalhes deste método de medida são apresentados no Apêndice C.

3.4.3 Medida do ^{57}Co e ^{58}Co

Tanto o ^{57}Co como o ^{58}Co possuem esquemas de desintegração relativamente simples, cujas probabilidades de emissão gama por desintegração possibilitam a medida destes dois radionuclídeos num espectrômetro de HPGe. Estes esquemas podem ser observados na figura 2.3, item 2.2.2.2.

Devido à necessidade de irradiar o ^{57}Co no núcleo do reator, este foi acondicionado em uma ampola de quartzo, conforme mencionado no item 3.1. Antes da irradiação, verificou-se a localização do material radioativo dentro da mesma.

A distância fonte-superfície do detector escolhida neste cálculo foi 88,2 mm quando a amostra localizava-se na posição usual, isto é, com a base plana para baixo. O processo consistiu em medir a amostra repetidas vezes com a base plana para baixo e em sentido contrário. Calculou-se a atividade da amostra com o programa UNITCOV^[66] apresentado no item 3.4.1, considerando a distância fonte-superfície do detector de cada medida, e supondo em primeira

aproximação, que o material estivesse localizado na base plana da ampola. Desta análise concluiu-se que a posição do material radioativo manteve-se fixo na base, lugar onde foi depositada a solução radioativa. Os tempos de medida destas amostras foram de 60000 s.

Como as amostras de cobalto foram irradiadas no núcleo do reator, as medidas só puderam ser iniciadas 3 a 4 dias após o final da irradiação.

Na determinação da atividade de ^{58}Co , produto da reação $^{57}\text{Co}(n,\gamma)^{58}\text{Co}$, para amostras irradiadas sem a cobertura de cádmio, a distância fonte-superfície do detector escolhida foi de 88,20 mm, e os tempos de medida foram de 80000 s. Na figura 3.8, é apresentado o espectro correspondente, medido após a irradiação. Observam-se os fotopicos correspondentes às transições gama de 122,0614 keV (A_1), 136,4743 keV (A_2), 692,41 keV (A_3), 706,54 keV (A_4), 570,09 keV (A_5), 339,69 keV (A_6), e 352,33 keV (A_7) do ^{57}Co das quais só foram utilizadas nos cálculos da atividade as duas primeiras.

O pico de absorção total correspondente ao decaimento do ^{58}Co de 810,775 keV, B_1 , encontra-se isolado, razão pela qual foi relativamente simples obter sua atividade. O fotopico correspondente à aniquilação do β^+ , B_2 , do ^{58}Co com 511,003 keV, não foi utilizada nos cálculos para a determinação da atividade deste radionuclídeo.

Neste espectro podem ser observados também: os fotopicos correspondentes ao empilhamento das emissões gama do ^{57}Co com energias, em 244 e 259 keV, C_1 e C_2 , respectivamente. Outras energias identificadas foram: 846,75 keV e 1238,30 keV do ^{56}Co , D_1 e D_2 , respectivamente. A última delas, também poderia ser atribuída ao ^{214}Bi que pertence ao fundo natural, cujas energias de decaimento características são: 609,31 keV, 768,35 keV, 1120,29 keV e 1238,11 keV E_1 a E_4 , respectivamente.

Foram identificadas também as linhas de energia correspondentes ao ^{232}Th que pertence ao fundo natural, com energias de 238,63 keV, 583,14 keV, 911,07 keV e 968,94 keV, F_1 a F_4 , respectivamente. A linha identificada com G_1 pode ser atribuída ao ^{65}Zn , com uma energia de 1115,546 keV e H_1 a linha do ^{40}K cuja energia de decaimento é de 1460,75 keV. A última linha à direita do espectro, corresponde ao pico do pulsador eletrônico, I_1 .

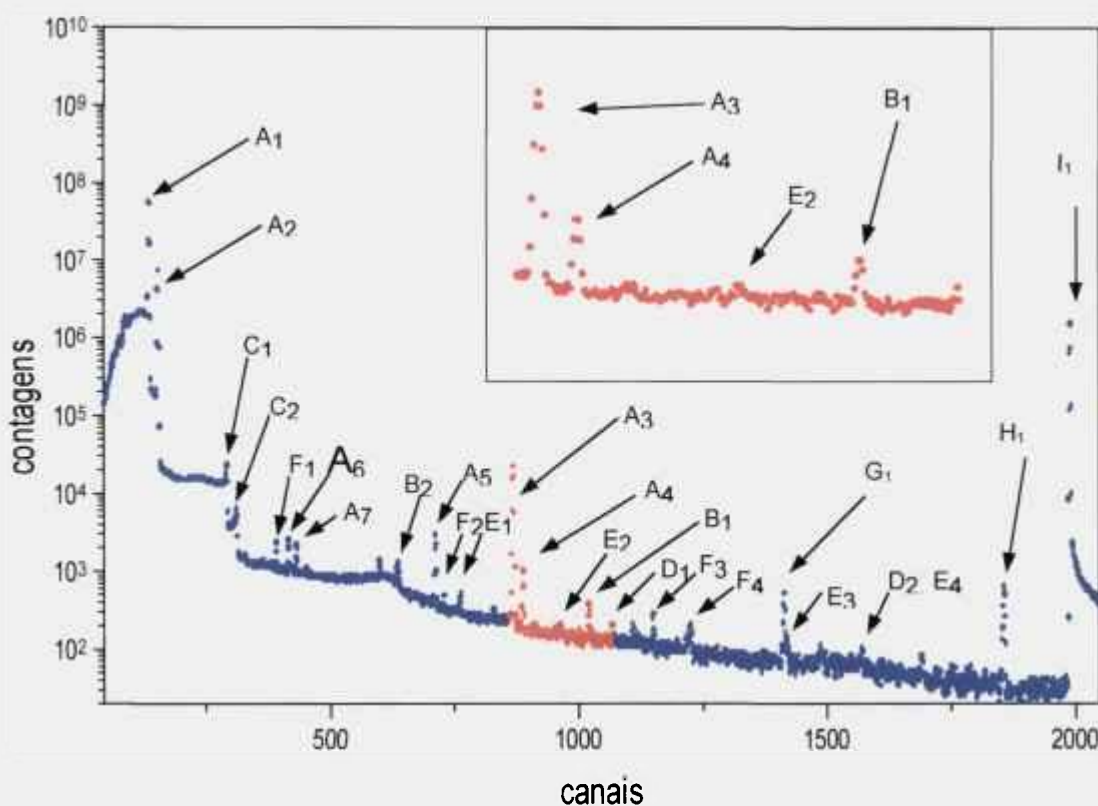


Figura 3.8: Espectro medido na determinação da atividade dos radionuclídeos ^{57}Co e ^{58}Co , no caso das irradiações sem cobertura de cádmio. No destaque podem ser observados os picos de absorção total correspondentes às energias de 692,41 keV (A_3), 706,54 keV (A_4), 768,35 keV (E_2) e 810,775 keV (B_1).

Para determinação da atividade do produto de ativação do ^{57}Co irradiado com cobertura de cádmio, a distância fonte-superfície do detector foi fixada a uma distância menor, de 26,75 mm, e os tempos de medida foram de 80000 e 230000 s em razão da baixa estatística de contagem. Os espectros obtidos foram similares ao apresentado na figura 3.8.

3.4.4 Medida do ^{137}Cs E ^{138}Cs

Considerando o tipo de desintegração destes dois radionuclídeos, a atividade foi determinada pela medida dos raios gama utilizando um espectrômetro de HPGe, apresentado no item 3.4.1.

Devido à baixa secção de choque da reação $^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{138}\text{Cs}$, as fontes radioativas contendo o radionuclídeo alvo possuíam uma elevada quantidade de átomos e como consequência, uma atividade elevada (≥ 1 MBq). Por esta razão, a correção para tempo morto atingiu um valor próximo ao 60 %. Entretanto, como a medida dos dois radionuclídeos foi efetuada de forma simultânea, as perdas de contagens devidas ao tempo morto e empilhamento do sistema de contagem para ambos os radionuclídeos são iguais e cancelam-se entre si.

Antes e após cada irradiação, foi determinada a atividade do ^{137}Cs presente em cada amostra, com o objetivo descartar possíveis fugas de material radioativo no processo de irradiação ou manipulação da fonte. Os tempos de espera desde o final das irradiações até o início das medidas variou entre 627 e 642 s, os tempos de medida foram de 2000 s. A distância fonte-superfície do detector escolhida nestas medidas foi de 70,0 mm, com o suporte descrito no item 3.4.1.1.

Na figura 3.9 é apresentado o espectro medido no HPGe para a determinação das atividades destes radionuclídeos. Podem-se observar o fotopico correspondente à transição do ^{137}Cs , com 661,660 keV, A₁, aquele correspondente ao decaimento do ^{138}Cs , com 1435,86 keV, B₁. Nesta figura podem ser identificadas as linhas C₁ e C₂, correspondentes ao empilhamento das emissões X + gama e gama + gama do radionuclídeo alvo, com energias de 693 keV e 1323 keV. Identificaram-se alguns contaminantes que provavelmente são: ^{56}Co cujas linhas de transição gama identificadas como D₁, D₂ e D₃, que correspondem às energias de 846,75 keV, 1810,70 keV e 2113,10 keV, respectivamente; ^{24}Na cuja energia de 1368,55 keV encontra-se marcada com E₁;

^{38}Cl cuja energia associada é de 1642,40 keV, identificado como F_1 e por último, o pico devido ao pulsador eletrônico, identificado com G_1 .

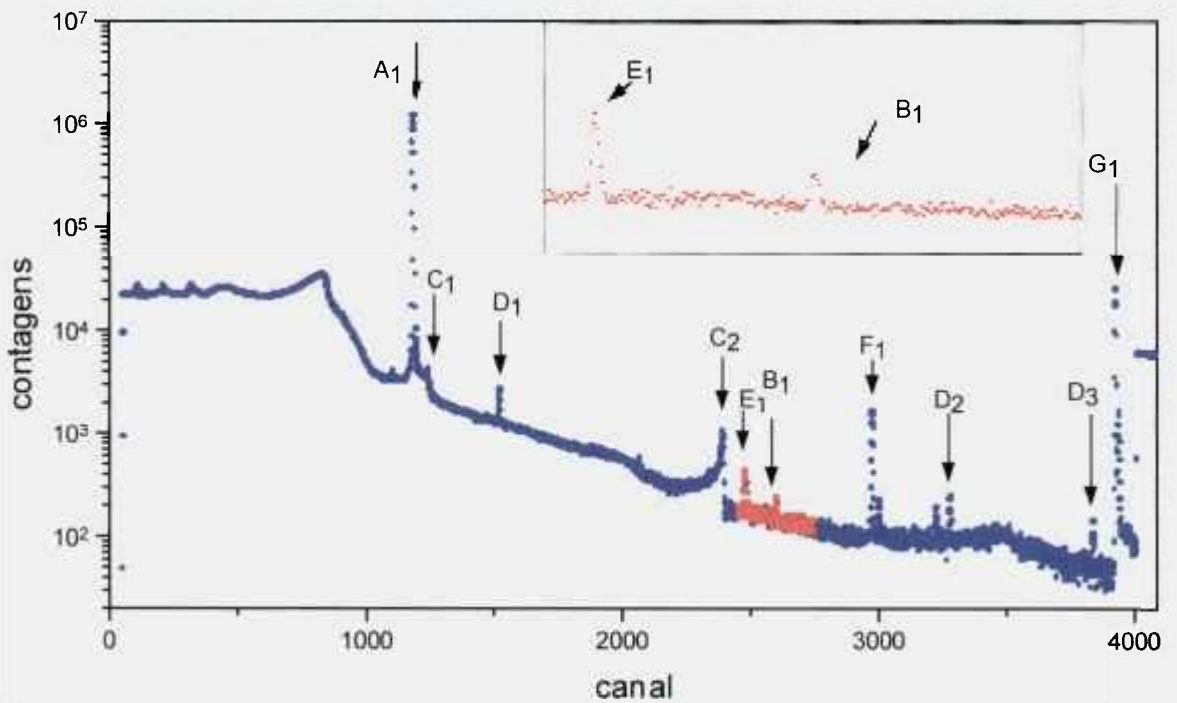


Figura 3.9: Espectro medido para a determinação da atividade dos radionuclídeos ^{137}Cs e ^{138}Cs irradiados sem cobertura de cádmio. Na figura em destaque podem ser observados os picos de 1368,55 keV (E_1) e 1435,86 keV (B_1).

Uma vez medidos os mencionados espectros, utilizou-se o programa UNITCOV^[66], para a determinação das atividades, por meio dos parâmetros da curva de calibração das eficiências, metodologia apresentada no item 3.4.1.1.

3.4.5 Medida do ^{241}Am e ^{242}Am

Como foi mencionado anteriormente, o sistema de detecção escolhido para a determinação das atividades destes radionuclídeos foi o sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$.

A principal dificuldade destas medidas consistiu na presença de uma alta atividade alfa, consequência do decaimento do ^{241}Am , na medida da atividade beta, do ^{242}Am . Por outro lado, em razão da probabilidade de emissão gama por decaimento deste último radionuclídeo ser praticamente nula, não foi possível detectar as coincidências beta-gama destes decaimentos, impossibilitando assim a utilização da metodologia de coincidências. Isto levou à necessidade de utilizar o denominado “Método do Traçador”, apresentada no apêndice C. O radionuclídeo “traçador” escolhido foi ^{60}Co , em razão do esquema de decaimento ser simples e apresentar pequenos coeficientes de conversão interna.

Após uma série de ensaios nos quais tentou-se medir estas fontes discriminando eletronicamente o “ruído” ocasionado pela radiação alfa presente nas amostras, resolveu-se minimizar este efeito por meio da colocação de absorvedores externos em ambos os lados da fonte. A variação da eficiência de detecção beta, mencionada no apêndice C, foi efetuada por meio da medida com absorvedores de diferentes espessuras. Os dados assim obtidos, permitiram o ajuste de uma reta e a extrapolação da mesma.

Para a via beta, a tensão de operação do contador proporcional foi de 1520 V. As medidas da via beta foram feitas no modo integral, discriminando-se apenas o ruído eletrônico. (~ 2 keV).

Para a via gama, com os detectores NaI(Tl), a tensão de operação foi de 1100 V.

Uma vez efetuado o ajuste eletrônico do sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$, por meio de uma fonte de ^{60}Co pura, foram medidas as fontes mistas com os diferentes absorvedores, e determinadas as contagens de fundo relacionadas com cada absorvedor. Cada medida consistiu em no mínimo 10 ciclos, com um tempo de contagem entre 50 e 500 seg cada, dependendo da taxa de contagens no detector proporcional. Este procedimento repetiu-se com cada absorvedor e para cada tipo de fonte.

Na figura 3.10, podem ser observados os espectros referentes às medidas da atividade beta das fontes mistas de $^{241, 242}\text{Am} + ^{60}\text{Co}$ com absorvedores de aproximadamente 6, 9, 12, 15, e 20 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$.

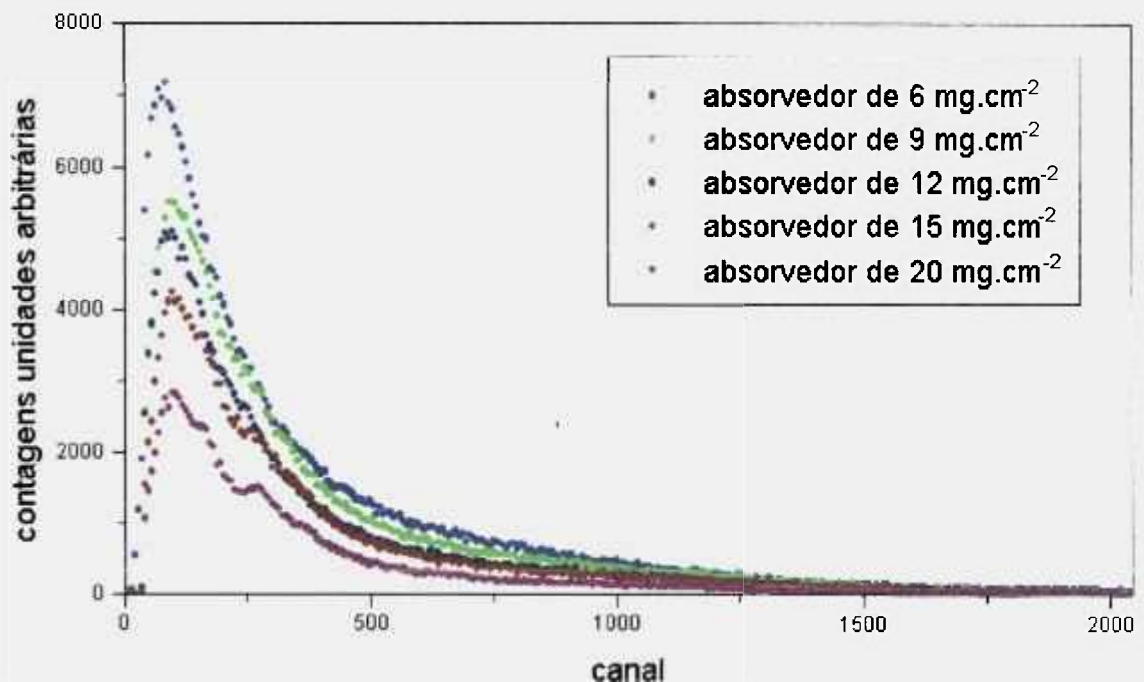


Figura 3.10: Espectros beta de uma fonte $^{241,242}\text{Am} + ^{60}\text{Co}$ com absorvedores de 6, 9, 12, 15, e 20 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$, respectivamente.

Uma vez medidas as fontes mistas, foi medida uma fonte de ^{241}Am nas mesmas condições eletrônicas. Esta medida serviu como contagem de fundo da fonte, associada à atividade alfa presente. De forma similar às fontes mistas, esta medida consistiu em pelo menos 10 ciclos de contagem de 50 a 500 s com cada absorvedor. O “fundo da própria fonte” não podia ser medido com a fonte respectiva, uma vez que estas continham o traçador de ^{60}Co incorporado às mesmas. Na figura 3.11, podem ser observados os espectros beta de uma fonte mista e o correspondente à fonte de ^{241}Am com absorvedor de $12\text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ (contagem de fundo).

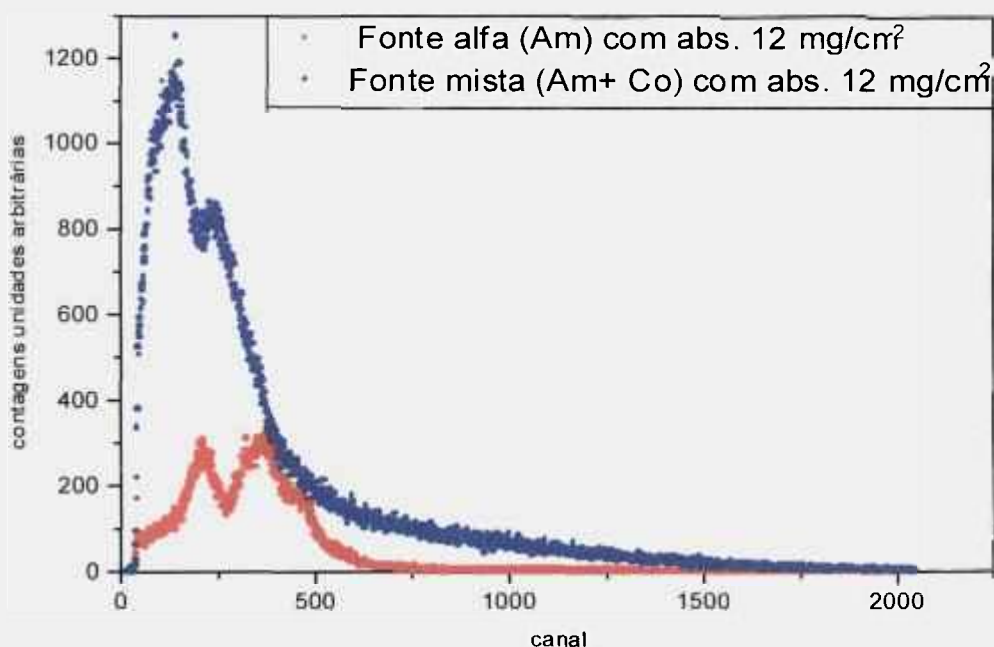


Figura 3.11: Espectro beta da medida de uma fonte mista (Am + Co) e de uma fonte de Am pura, com absorvedor de $12\text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$.

Os resultados de ineficiência beta, e contagens beta totais para as medidas com cada absorvedor foram calculados pelo programa DILUIP7^[71].

Após o decaimento total do ^{242}Am nas fontes mistas, mediu-se a atividade alfa de cada fonte e estabeleceu-se a relação entre a atividade alfa das fontes mistas em relação à mesma atividade da fonte de ^{241}Am pura. Esta relação

possibilitou a subtração do “fundo da própria amostra” com cada absorvedor, medido indiretamente. A atividade alfa foi medida utilizando-se uma tensão de operação do contador proporcional igual a 1400 V. Na figura 3.12 pode ser observado um dos espectro alfa obtidos.

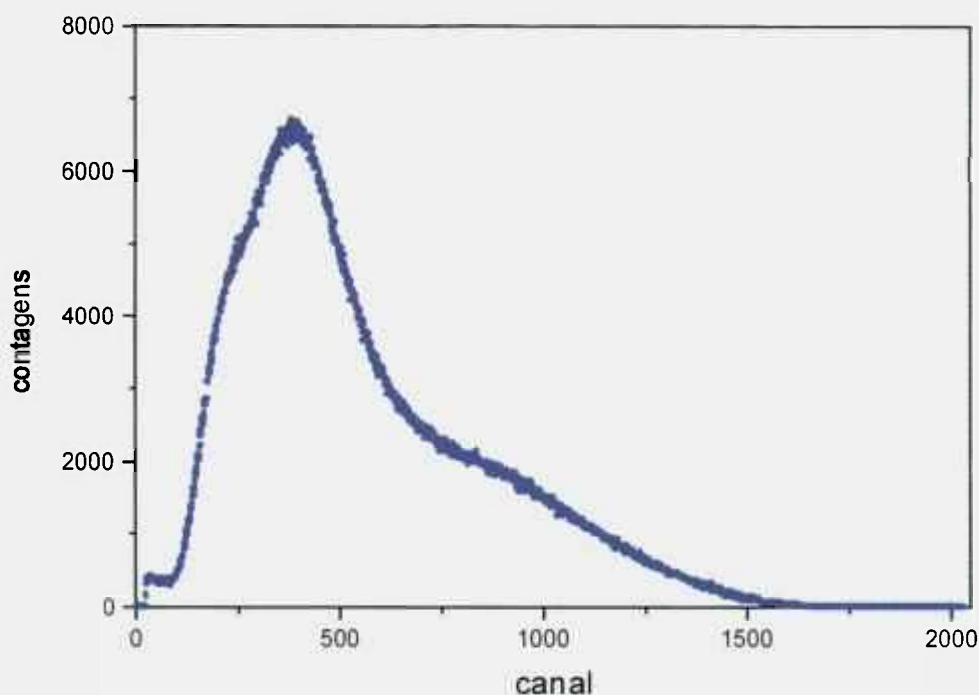


Figura 3.12: Espectro típico medido para a determinação da atividade alfa das fontes.

Por último, calibrou-se a fonte de ^{60}Co pura no sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$, a qual foi utilizada para determinar a eficiência de detecção das duas linhas de transição gama do ^{60}Co no HPGe. Determinou-se desta maneira a atividade de ^{60}Co presente em cada fonte mista. Para as medidas das fontes beta puras foi utilizada uma tensão de operação do contador proporcional de 2050 V, na via beta.

Na via gama, foi utilizado um intervalo de discriminação incluindo apenas os picos de absorção total do ^{60}Co . A tensão de operação com os detectores NaI(Tl) foi de 1100 V.

A atividade da fonte de ^{60}Co , foi calculada por meio do programa DILUIP7^[71]. Uma vez determinada a atividade de ^{60}Co presente em cada fonte e com os dados de eficiência de detecção beta para cada absorvedor, calcularam-se as contagens beta correspondentes ao traçador. Em seguida, foram efetuadas as seguintes correções:

- subtração da atividade de ^{60}Co de cada fonte (N_{β} total - N_{β} do Co), expressão C.15;
- decaimento do ^{242}Am pelo tempo de espera de cada ciclo de medida com relação ao final da irradiação;
- decaimento do ^{242}Am pelo tempo de medida expressão D.3;
- irradiações descontínuas, expressão D.7.

Com o objetivo de comprovar que a atividade beta medida era devida apenas ao ^{242}Am , foi confeccionada uma fonte do material irradiado sem a adição do traçador. Esta fonte foi medida no detector com absorvedores de 9 mg.cm^{-2} e foi acompanhado o decaimento por 7 dias com ciclos de medida de 642,13 s.

3.4.6 Medida dos monitores de fluxo

A maioria dos monitores de fluxo foram medidos no espectrômetro de HPGe. A distância fonte-superfície do detector escolhida foi de 88,20 mm, os tempos de medida variaram entre 4000 e 10000 s para as amostras de Au-Al e Au puro, e de 10000 a 50000 s na medida das amostras de liga Co-Al.

Os tempos de espera entre o final da irradiação e o início das medidas, não foi inferior a 5 dias. Esta espera teve por objetivo minimizar a atividade induzida no alumínio nas ligas Au-Al e Co-Al.

As respectivas atividades foram obtidas através do programa UNITCOV^[66], como foi apresentado no item 3.4.1.

Para verificar os teores de Au nas ligas Au-Al, irradiaram-se 4 conjuntos de fios de liga de um lote, 6 conjuntos de fios de liga de outro lote e 2 conjuntos de Au puro. Cada conjunto corresponde a um par de monitores com e sem cobertura de cádmio.

Uma vez analisadas as atividades das amostras irradiadas de acordo aos procedimentos apresentados no item 3.4.1.1 concluiu-se que o teor de Au em ambas partidas era de $(0,1000 \pm 0,0050)$ %.

Com o objetivo verificar a atividade do ^{198}Au nos monitores de liga Au-Al, para os cálculos de fluxo, alguns conjuntos deste material foram medidos no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$.

4. ANÁLISE E TRATAMENTO DE DADOS

4.1 *Cálculo da atividade das amostras irradiadas*

De acordo com a metodologia apresentada no item 3.4.1.1 foi realizado o ajuste da eficiência de detecção para o espectrômetro de HPGe, baseado na medida das fontes padrões na geometria específica escolhida em cada caso, com as correspondentes correções de soma em cascata.

Na tabela 4.1 são apresentadas as características das fontes padrões utilizadas, tais como meia-vida, energias e probabilidades de emissão gama por decaimento. A fonte de ^{88}Y foi construída e calibrada no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ do Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN, **LMN**, as demais foram fornecidas pela Agência Internacional de Energia Atômica. Estas fontes são consideradas como puntiformes, construídas em um disco de alumínio, com dimensões de: 25,0 mm de diâmetro externo e 1,7 mm de espessura. As fontes calibradas no **LMN**, também podem ser consideradas como puntiformes e foram construídas entre dois filmes de polietileno com 0,4 mm de espessura, fixados em um anel de alumínio (figura 3.3).

Tabela 4.1: Características dos radionuclídeos utilizados como fontes padrão^[72] para a determinação da curva eficiência em função da energia para o espectrômetro HPGe. Os números entre parêntesis correspondem à incerteza nos últimos dígitos (um desvio padrão)^[72].

Nuclídeo	Meia-vida [d]	Energia Gama [keV]	Intensidade Gama por decaimento (I_γ) [%]
⁶⁰ Co	1925,5(5)	1173,238(4)	99,857(22)
		1332,502(5)	99,983(6)
⁸⁸ Y	106,630(25)	898,042(4)	94,0(3)
		1836,063(13)	99,36(3)
¹³³ Ba	3862(15)	80,998(5)	34,11(28)
		276,398(1)	7,147(30)
		302,853(1)	18,30(6)
		356,017(2)	61,94(14)
		383,851(3)	8,905(29)
¹³⁷ Cs	[1,102(6)]x10 ⁴	661,660(3)	85,1(2)
¹⁵² Eu	4933(11)	121,7824(4)	28,37(13)
		244,6989(10)	7,53(4)
		344,2811(19)	26,57(11)
		411,126(3)	2,238(10)
		443,965(4)	3,125(14)
		778,903(6)	12,97(6)
		867,390(6)	4,214(25)
		964,055(4)	14,63(6)
		1112,087(6)	13,54(6)
		1408,022(4)	20,85(9)
²⁴¹ Am	[1,5785(24)]x10 ⁵	59,537(1)	36,0(4)

Como foram efetuadas várias medidas de cada fonte, calcularam-se as eficiências médias considerando cada uma das energias de transição gama apresentadas.

A curva ajustada para a eficiência total ou de pico em função da energia pode ser representada genericamente como:

$$\ln \varepsilon_\gamma(E) = \sum_{k=0}^{k=n} a_k (\ln E)^k \quad 4.2$$

onde: n = grau do polinômio.

Os parâmetros da curva de eficiência foram obtidos por ajuste polinomial utilizando o Método de Mínimos Quadrados^[73]. Para escolher o grau do polinômio desta curva, foi realizado o teste F de Snedecor^[74]. De acordo com este teste o melhor ajuste obteve um χ^2 reduzido igual a 0,952 com 3 graus de liberdade.

Na tabela 4.2.a, são apresentados os parâmetros do ajuste da curva de eficiências totais em função da energia, mencionado no item 3.4.1.1. Na tabela 4.2.b são apresentados os parâmetros do ajuste da curva de eficiências de pico em função da energia, com a correção pela soma em cascata mencionada no item 3.4.1.1. Nesta tabela são detalhadas também as incertezas nos parâmetros e a matriz de covariância das incertezas, para uma distância fonte-superfície do detector de 88,20 mm. O χ^2 obtido no ajuste foi 0,96 com 14 graus de liberdade.

As eficiências totais correspondentes aos raios X nas expressões utilizadas^[67] para corrigir a soma em cascata foram consideradas de acordo a seguinte expressão:

$$\varepsilon_T(E) = \varepsilon_T(59,54)e^{-[\mu(E) - \mu(59,54)]x} \quad 4.1$$

onde: $\varepsilon_T(E)$ = eficiência total da energia E, raio X ou gama de baixa energia;

$\varepsilon_T(59,54)$ = eficiência total da energia de 59,54 keV do ²⁴¹Am;

$\mu(E)$ = coeficiente de atenuação, dependente da energia para o lucite;

x = espessura em g.cm⁻² do disco de lucite descrito no item 3.4.1.

Tabela 4.2.a: Parâmetros obtidos da curva de eficiências totais ajustados para uma distância de 88,2 mm, no intervalo de energias entre 59,54 keV e 1332,5 keV.

Parâmetro	Valor Obtido	Incerteza	Matriz de covariância nos parâmetros			
a_0	3,6	1,7	2,8			
a_1	- 4,97	0,92	- 1,53	0,84		
a_2	1,03	0,17	0,27	- 0,15	0,028	
a_3	- 0,070	0,010	- 0,0016	0,0090	- 0,0016	0,0001

Tabela 4.2.b: Parâmetros obtidos da curva de eficiência ajustados para uma distância de 88,2 mm, no intervalo de energias entre 80,998 keV e 1408,022 keV.

Parâmetro	Valor Obtido	Incerteza	Matriz de covariância nos parâmetros			
a_0	-20,32	0,48	0,23			
a_1	8,79	0,25	- 0,12	0,06		
a_2	- 1,565	0,048	0,021	-0,011	0,0019	
a_3	0,0838	0,0025	- 0,0012	0,00063	- 0,00011	0,0000063

A tabela 4.3, referente aos radionuclídeos envolvidos nas medidas realizadas a 88,2 mm apresenta a seguinte distribuição: na primeira coluna são destacadas as energias utilizadas nos cálculos para obter as atividades das amostras, na segunda coluna as eficiências obtidas da interpolação da correspondente curva de eficiência cujos parâmetros foram apresentados da tabela 4.2.b, na terceira a incerteza na eficiência em % e na última coluna, a matriz de correlação entre as incertezas.

Tabela 4.3: Eficiências de detecção para as energias dos radionuclídeos medidos à uma distância fonte-superfície do detector de 88,2 mm.

Energia keV	Eficiência [x10 ⁻³]	Incerteza [%]	Matriz de correlação das eficiências [x 1000]							
122,06	7,4013	0,78	1000							
136,48	7,0122	0,78	998	1000						
411,80	2,9509	0,72	951	948	1000					
661,66	1,8812	0,69	910	898	984	1000				
810,78	1,5605	0,67	907	896	973	996	1000			
1173,238	1,1425	0,63	887	886	879	894	927	1000		
1332,502	1,0386	0,65	830	836	777	780	826	976	1000	

A correção pelo efeito de soma em cascata para a distância fonte superfície do detector de 26,8 mm foi efetuada utilizando uma curva de eficiência total para a distância de 23,0 mm de acordo com as relações apresentadas na literatura^[67]. A curva de eficiência total foi ajustada com fontes de ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs, ¹⁹⁸Au e ²⁴¹Am^[68]. Os parâmetros do ajuste das eficiências de pico para as medidas realizadas a 26,8 mm são apresentados na tabela 4.4. Utilizaram-se sete transições com energias no intervalo de 661,66 keV (¹³⁷Cs) até 1408,022 keV (¹⁵²Eu). O χ^2 obtido foi 1.87 com 5 graus de liberdade.

Tabela 4.4: Parâmetros obtidos da curva de eficiência ajustada para uma distância fonte-superfície do detector de 26,8 mm, correspondente às medidas relacionadas à reação ⁵⁷Co(n, γ)⁵⁸Co, para o intervalo de energias entre 661,66 keV e 1408,022 keV.

Parâmetro	Valor Obtido	Incerteza	Matriz de covariância nos parâmetros	
a ₀	1,81	0,15	0,022	
a ₁	-0,95	0,02	-0,0032	0,00047

A eficiência de detecção para a energia de 810,78 keV do ⁵⁸Co resultou 1,030x10⁻² com uma incerteza de 1,1 %.

Os parâmetros do ajuste da curva de eficiência em função da energia, para uma distância fonte-superfície do detector de 70,0 mm são apresentados na tabela 4.5 juntamente com as incertezas nos parâmetros e a matriz de covariância das incertezas. Os parâmetros deste ajuste correspondem ao intervalo de energias entre 383,85 keV do ^{133}Ba e 1836,10 keV do ^{88}Y , incluindo as energias dos radionuclídeos anteriormente citados. O χ^2 obtido no ajuste foi 1,62, com 10 graus de liberdade. Cabe destacar que a correção para o efeito de soma em cascata para ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{152}Eu foi realizada utilizando a curva de eficiência total para 88,2 mm. No caso do ^{88}Y , interpolou-se a eficiência total para a energia do pico de 898,04 e efetuou-se a correção para soma em cascata para a linha de 1836,10 keV.

Tabela 4.5: Parâmetros obtidos da curva de eficiência ajustada para 70,0 mm, para o intervalo de energias entre 383,85 keV e 1936,063 keV, correspondente às medidas relativas ao estudo da reação $^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{138}\text{Cs}$.

Parâmetro	Valor Obtido	Incerteza	Matriz de covariância nos parâmetros			
a_0	39,5	14,1	19,97			
a_1	- 18,5	6,4	-90,00	40,57		
a_2	2,60	0,95	13,48	-6,08	0,902	
a_3	- 0,13	0,67	-0,303	0,303	-0,045	0,0023

As eficiências para as energias dos radionuclídeos envolvidos são apresentadas juntamente com as incertezas e matriz de correlação correspondentes na tabela 4.6.

Tabela 4.6: Eficiências de detecção das energias dos radionuclídeos envolvidos nas medidas da reação $^{57}\text{Co}(n,\gamma)^{58}\text{Co}$, para uma distância fonte-superfície do detector de 70,0 mm.

Energia keV	Eficiência [$\times 10^{-3}$]	Incerteza [%]	Matriz de correlação das eficiências [x 1000]			
411,80	4,8345	0,99	1000			
1173,24	1,8108	0,73	597	1000		
1332,50	1,6061	0,74	531	919	1000	
1435,86	1,4932	0,83	439	755	950	1000

Na figura 4.1 apresentam-se os valores obtidos para as eficiências de detecção totais e para as do pico de absorção total das fontes padrões para as distâncias fonte-superfície do detector de 26,8 mm, 70,0 mm e 88,2 mm. As linhas cheias da figura representam as curvas ajustadas com os parâmetros apresentados nas tabelas 4.2.a, 4.2.b, 4.4 e 4.6.

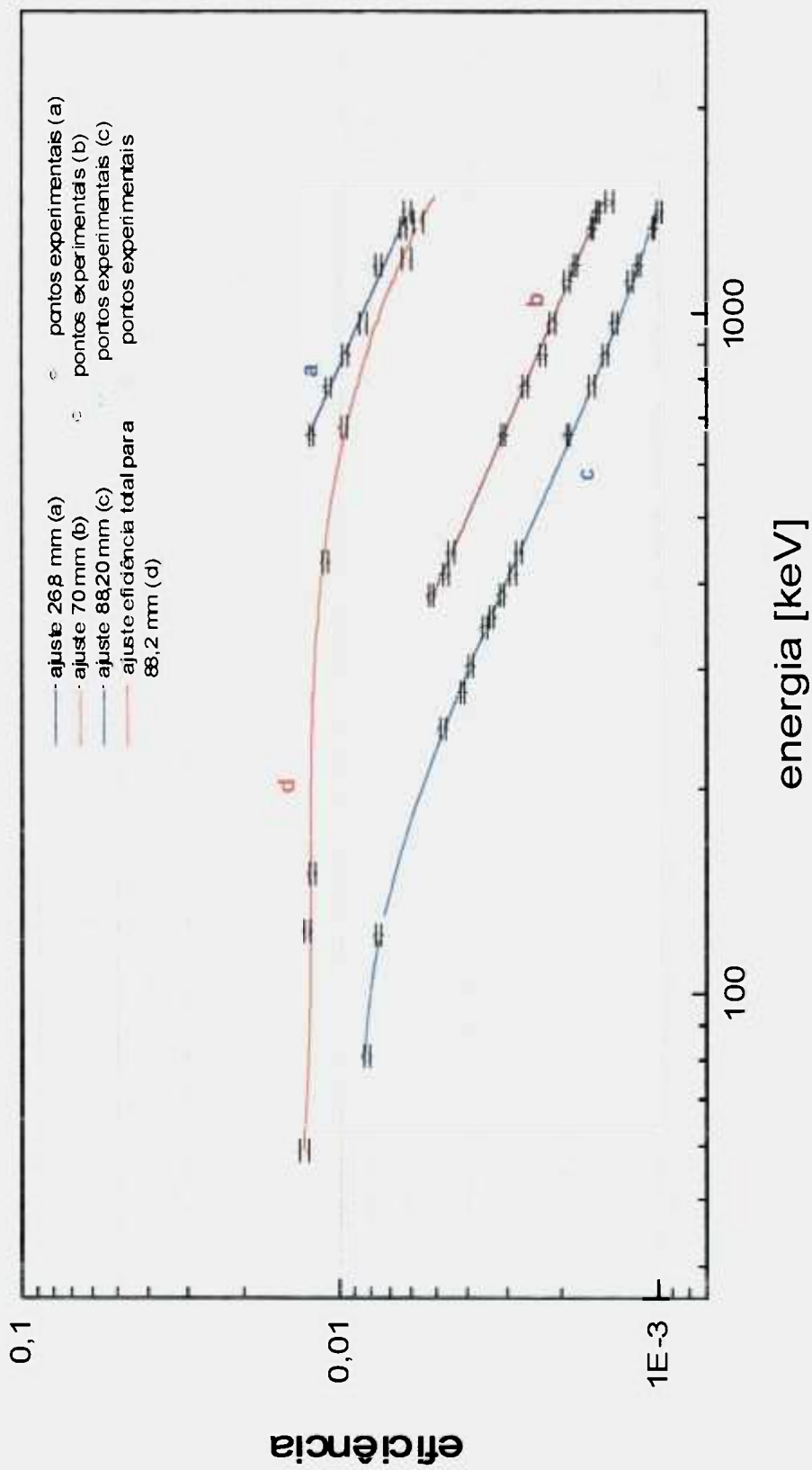


Figura 4.1: Curva de eficiências de detecção em função da energia para distâncias fonte-superfície do detector de 26,8 mm (a), 70,0 mm (b), 88,2 mm (c), e eficiências totais para 88,2 mm (d), para o detector de HPGe.

4.2 Determinação do fluxo

As reações utilizadas para determinar os fluxos térmico e epitérmico, nas posições de irradiação foram:

- $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$. Esta reação apresenta uma secção de choque com um comportamento $1/v$ na região térmica, afastando-se ligeiramente desse comportamento na região de energia próxima ao corte de cádmio devido à influência de um elevado pico de ressonância com energia de 8,906 eV;
- $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$. Esta reação apresenta uma secção de choque com um comportamento puramente $1/v$ na região térmica, e um pico de ressonância em torno de 100 eV.

Tanto o ^{198}Au como o ^{60}Co , possuem esquemas de desintegração simples, caracterizados pela emissão de uma partícula beta seguida de emissão gama, cujas energias e probabilidades de emissão por decaimento são apresentados na Tabela 4.7. Estas propriedades permitem que a atividade destes radionuclídeos possa ser determinada pelo método de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ ou por espectrometria gama, utilizando os sistemas de medida descritos nos itens 3.4.1 e 3.4.2.

Tabela 4.7: Características de decaimento dos radionuclídeos utilizados como monitores de fluxo^[72]. Os números entre parênteses correspondem às incertezas nos últimos dígitos (um desvio padrão).

Radio- Nuclídeo	meia-vida [d]	Energia gama [keV]	Intensidade gama por decaimento, I_γ [%]	Energia beta ^[58] [keV]	Intensidade de emissão beta por decaimento ^[58] [%]
^{198}Au	2,6943(8)	411,8044(11)	95,57(47)	285,3(6)	1,30(10)
				961,2(6)	98,00(10)
^{60}Co	1925(5)	1173,238(4)	99,857(22)	317,87(1)	99,883(21)
		1332,502(5)	99,983(6)		

A atividade dos monitores de fluxo foi medida a uma distância fonte-superfície do detector de 88,2 mm, utilizando para os cálculos os parâmetros da curva correspondente apresentados na tabela 4.2.b.

Uma vez conhecidas as atividades de cada conjunto de monitores foi obtido o fluxo térmico, a partir da expressão 2.32, utilizando os parâmetros que se apresentam na tabela 4.8. O valor de $r \sqrt{\frac{T}{T_0}}$, calculado a partir da expressão 2.29 foi de 0,036. Os valores dos fatores de correção, G e F, relacionados com a perturbação do fluxo pela presença da folha, foram calculados com o auxílio das expressões B.5, B.6 e B.3, respectivamente e também são apresentados na tabela 4.8.

Uma vez determinada a temperatura, (41,3 °C) calculada por meio da expressão 2.34, foi efetuada a devida correção no cálculo do fluxo, utilizando a expressão A.8.

Tabela 4.8: Parâmetros de ativação dos monitores de fluxo. Os números entre parênteses correspondem às incertezas nos últimos dígitos (um desvio padrão).

Monitor	Secção de Choque Térmica, σ_0 [b]	Integral de Ressonância, I [b]	$g(T)^{[58]}$	$s_0^{[58]}$	G	F	G_{epi}
¹⁹⁸ Au	98,8(3)	1560(40)	1,01	17,02	0,9999(2)	0,9999(2)	0,99(2)
⁶⁰ Co	37,2(2)	75,5 (1,5))	1,00	1,611	0,999(3)	0,999(8)	0,97(4)

O fluxo epitérmico foi calculado utilizando a expressão 2.42. O valor G_{epi} dos monitores, cujo cálculo é descrito no apêndice B, aparece na última coluna da na tabela 4.8.

Na tabela 4.9 são apresentados alguns valores típicos dos fluxos térmico e epitérmico com as respectivas incertezas, determinados com os monitores de

fluxo constituídos pelas liga Co-Al e Au-Al. Como foi mencionado no item 3.4.6, a atividade das ligas Au-Al foi medida com diferentes sistemas de detecção.

Tabela 4.9: Valores típicos de fluxos térmico e epitérmico medidos na Estação de Irradiação 3, com monitores de Co-Al e Au-Al. Na última coluna é especificado o detector utilizado na determinação das atividades.

Monitor	ϕ_{th} [$\times 10^{12}$ n/cm ² .s]	$\sigma_{\phi_{th}}$ [%]	ϕ_{epi} [$\times 10^{12}$ n/cm ² .s]	$\sigma_{\phi_{epi}}$ [%]	sistema de detecção
Co-Al	2,527	1,7	1,143	2,6	HPGe
Au-Al	2,404	2,0	1,259	3,1	HPGe
Au-Al	2,387	1,7	1,286	2,9	4 π β - γ

Nos valores determinados para os fluxos térmico e epitérmico para cada irradiação, constatou-se uma diferença entre eles quando os fluxos eram calculados com os monitores de Au ou de Co. Este resultado pode ser explicado pela diferença de energia das ressonâncias dos monitores, que respondem de modo diferente se a forma do espectro na região epitérmica afasta-se do comportamento 1/E.

Como foi descrito no item 2.1 a expressão 2.4 fornece a distribuição não ideal dos nêutrons^[34,39]. Nessa expressão o parâmetro α pode ser considerado como uma constante (independente da energia) para um determinado ponto próximo ao núcleo do reator^[75]. Este parâmetro pode assumir valores positivos ou negativos correspondendo a espectros “moles” ou “duros” respectivamente, quando comparados com o ideal, como pode ser observado na figura 4.2.

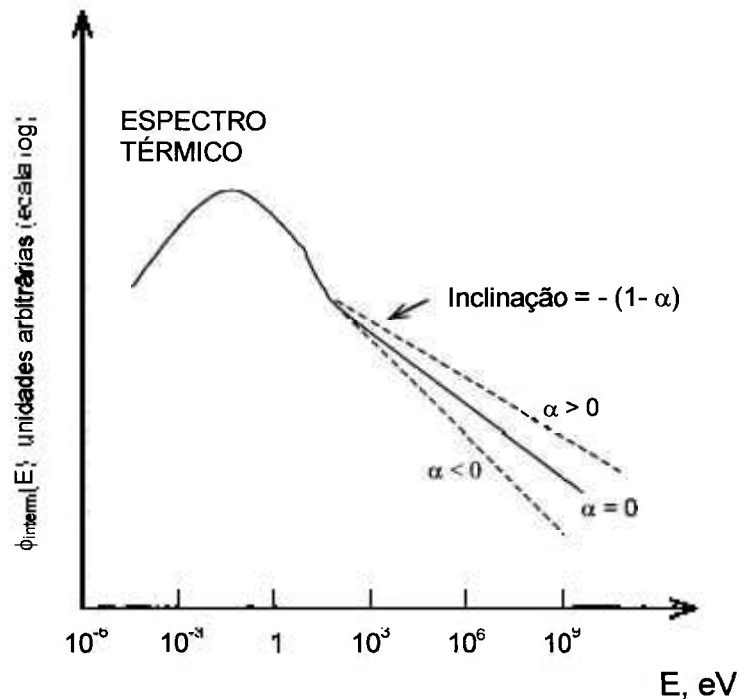


Figura 4.2: Espectro epitérmico não ideal $\phi(E) \cong 1/E^{1+\alpha}$.

A representação $1/E^{1+\alpha}$ permite corrigir a Integral de Ressonância do afastamento do espectro epitérmico garantindo assim a exatidão do resultado.

O parâmetro α pode, em princípio, ser determinado experimentalmente utilizando as atividades induzidas em diversos materiais, que podem ser irradiados mediante três metodologias^[75]:

- a) método com cobertura de cádmio, no qual monitores específicos α são irradiados sob uma folha de cádmio;
- b) método da diferença de cádmio, no qual os monitores são irradiados com e sem cádmio, e
- c) método dos detectores descobertos, no qual os monitores são irradiados sem cádmio.

Para o cálculo deste parâmetro, foi utilizada a segunda destas metodologias, utilizando monitores de Au e Co (item 3.1.4) indicados pelos subíndices 1 e 2, respectivamente.

Quando os monitores 1 e 2 são irradiados com e sem cádmio, α pode ser calculado resolvendo a seguinte expressão^[39]:

$$\frac{R_{Cd,2} - 1}{R_{Cd,1} - 1} - \frac{q_{0,1}(\alpha) + C_\alpha}{q_{0,2}(\alpha) + C_\alpha} = 0 \quad 4.3$$

com: $R_{Cd,i} = \frac{\left(\frac{A_{sp,i}}{A_{sp,i}} \right)_{s/Cd}}{\left(\frac{A_{sp,i}}{A_{sp,i}} \right)_{c/Cd}} \cdot F_{Cd,i}$

$q_{0,i}(\alpha) = q_{0,i}(\bar{E}_{r,i})^\alpha$ representa a Integral de Ressonância reduzida do monitor i para um espectro de nêutrons $1/E^{(1+\alpha)}$

$q_{0,i} = Q_{0,i} - 0,429$, corresponde a Integral de Ressonância reduzida do monitor i para um espectro de nêutrons $1/E$;

$$C_\alpha = \frac{0,429}{(2\alpha + 1)(0,55)^\alpha}$$

$Q_{0,i} = I_{0,i}/\sigma_{0,i}$, com $I_{0,i}$ sendo a Integral de Ressonância infinitamente diluída (sem efeito de autoblindagem),

$A_{sp,i}$ = atividade específica do monitor i ;

$\bar{E}_{r,i}$ = energia efetiva da ressonância do monitor i , e

$F_{Cd,i}$ = fator de transmissão dos nêutrons epitérmicos no cádmio do monitor i , respectivamente.

Os valores de Q_0 , \bar{E}_r e F_{Cd} utilizados são os detalhados na tabela 4.10.

Tabela 4.10: Constantes utilizadas para o cálculo do parâmetro α ^[75]. Os números entre parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos (um desvio padrão).

Reação	F_{Cd}	Q_0	\bar{E}_r
$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	0,991	15,71(28)	5,65(40)
$^{60}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$	1	1,990(54)	136(7)

O valor de α calculado foi 0,045.

Na tabela 4.11 são apresentados o fluxo térmico e epitérmico com as respectivas incertezas, determinados por meio dos monitores de liga Au-Al para a posição 36B prateleira 6, utilizada na irradiação do ^{57}Co .

Tabela 4.11: Fluxos térmico e epitérmico medidos na posição 36B prateleira 6 utilizada na irradiação do ^{57}Co .

Monitor	ϕ_{th} [$\times 10^{12}$ n/cm ² .s]	$\sigma_{\phi_{\text{th}}}$ [%]	ϕ_{epi} [$\times 10^{12}$ n/cm ² .s]	$\sigma_{\phi_{\text{epi}}}$ [%]
Au-Al	3,841	1,9	0,6219	3,1

4.3 Determinação das secções de choque

Como foi mencionado no item 3.2 algumas amostras foram irradiadas com e sem cobertura de cádmio. Isso possibilitou a determinação, tanto da secção de choque térmica como a Integral de ressonância, conforme descrito a seguir:

4.3.1 Determinação da secção de choque térmica

Genericamente, a secção de choque térmica para as reações de captura de nêutrons apresentadas nas figuras 2.3, 2.4 e 2.5 pode ser obtida por meio da expressão 2.46.

Considerando, a partir dos esquemas de decaimento que $\lambda_2 \gg \lambda_1$ e $\lambda_1 t_i \ll 1$, colocando em evidência a secção de choque, a expressão 2.46 se transforma em:

$$\sigma_1 = \frac{A^0 \lambda_1}{A_1 \phi_{\text{th}} (1 - e^{-\lambda_2 t})} \quad 4.4$$

onde: A_1 é a atividade do radionuclídeo alvo ao início da irradiação;

A_2^0 é a atividade do radionuclídeo produto, no estado fundamental, no final da irradiação.

A expressão 4.4 não leva em conta a probabilidade de produção dos estados isoméricos, x , das reações que foram destacadas nas figuras 2.3 a 2.5. A atividade do radionuclídeo produto no estado fundamental depende do valor de x , do tempo de espera desde o final da irradiação até o início da medida, assim como da meia-vida do estado isomérico. O cálculo do valor de x foi efetuado através da soma das probabilidades de formação para um dado spin, fornecidos pela expressão 2.7, com os parâmetros apresentados no item 2.2.2.1, para todas as reações estudadas no presente trabalho.

Para considerar a taxa de formação do isômero e a conseqüente atividade do nível fundamental, é que a expressão 4.4 foi modificada, resultando:

$$A_1 = \frac{A_2 \lambda_1}{A_1 \phi_{th} (\lambda_2 - \lambda_{2m})} \left[\left(1 - e^{-\lambda_{2m} t_i} \right) \left(e^{-\lambda_{2m} t_e} - e^{-\lambda_2 t_e} \right) - \left(e^{-\lambda_{2m} t_i} - e^{-\lambda_2 t_i} \right) e^{-\lambda_2 t_e} \right] + \left[1 - (1-p)x a \right] \left(1 - e^{-\lambda_2 t_i} \right) e^{-\lambda_2 t_e} \quad 4.5$$

onde: o primeiro somando trata do decaimento sucessivo dos nuclídeos produto da reação e o segundo somando do decaimento do estado fundamental;

λ_{2m} = constante de decaimento do radionuclídeo produto no estado metaestável;

A_2 = atividade do radionuclídeo produto no estado fundamental no instante do início da medida;

t_i = tempo de irradiação;

t_e = tempo de espera desde o final da irradiação até o início da medida.

p = probabilidade da transição do estado metaestável para o fundamental.

a = parâmetro que pode assumir os valores 1 ou 0, dependendo se o tipo de decaimento do estado metaestável contribui ou não na medida da atividade. Por exemplo:

- para o ^{58m}Co , $a = 0$, uma vez que a transição interna não contribui diretamente para a energia de 810,77 keV, utilizada na medida da atividade;
- para o ^{137m}Cs , $a = 1$, uma vez que a energia de 1435,86 keV utilizada na determinação da atividade do ^{138}Cs pode ser consequência do decaimento de ambos os estados;
- para ^{242m}Am , $a = 0$ uma vez que o ramo alfa não é detectado.

4.3.2 Determinação da Integral de Ressonância

Colocando em evidência a Integral de Ressonância na expressão 2.39 e realizando as mesmas considerações ligadas à probabilidade de produção do estado metaestável, obtém-se:

$$I_1 = \frac{A_{20\text{Cd}} \lambda_1}{A_{10\text{Cd}} \phi_{\text{epi}}} \ln \frac{E_2}{E_1} \left\{ \frac{\lambda_2 p x}{\lambda_2 - \lambda_{2m}} \right. \\ \left. \left[\left(1 - e^{-\lambda_{2m} t_i} \right) \left(e^{-\lambda_{2m} t_e} - e^{-\lambda_2 t_e} \right) - \left(e^{-\lambda_{2m} t_i} - e^{-\lambda_2 t_i} \right) e^{-\lambda_2 t_e} \right] + \right. \\ \left. + \left[1 - (p-1) x a \right] \left(1 - e^{-\lambda_2 t_i} \right) e^{-\lambda_{2m} t_e} \right\}^{-1} \quad 4.6$$

onde: da mesma forma que na expressão 4.5, o primeiro somando trata do decaimento sucessivo dos núclídeos produto da reação e o segundo somando do decaimento do estado fundamental;

$A_{20\text{Cd}}$ = atividade do radionuclídeo produto no estado fundamental irradiado com cobertura de cádmio ao início da media;

$A_{10\text{Cd}}$ = atividade do radionuclídeo alvo irradiado com cobertura de cádmio;

ϕ_{epi} = fluxo epitérmico na posição de irradiação;

E_1 e E_2 = limites de integração da Integral de Ressonância, 0,5 eV e 1E+6 eV respectivamente descritos na expressão 2.21.

4.3.3 Reação $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242g}\text{Am}$

Os cálculos efetuados para a obtenção desta secção de choque foram tratados separadamente, em função da metodologia utilizada.

As características de decaimento dos radionuclídeos envolvidos nesta reação são detalhados na figura 2.5, enquanto que a metodologia de preparação e de medida das amostras estão descritas nos itens 3.3 e 3.4.5, respectivamente.

Para determinar a atividade do ^{242}Am presente em cada fonte conforme especificado no item 3.4.5, foi confeccionada uma planilha de cálculo com o objetivo de realizar as correções necessárias para poder obter o valor extrapolado do radionuclídeo de interesse, metodologia que é detalhada no apêndice C. Cada linha da planilha corresponde aos valores obtidos das medidas realizadas com os absorvedores de 6, 9, 12, 15 e 20 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$.

Introduziram-se assim as contagens totais obtidas nas medidas das fontes mistas. Subtraíram-se a seguir, as contagens correspondentes à atividade do ^{60}Co presente em cada fonte. Este cálculo foi efetuado após o conhecimento da eficiência de detecção beta com cada absorvedor, fornecida pelo programa DILUIP7^[71], através da expressão C.9 e determinada a atividade de ^{60}Co presente em cada fonte, pela medida das mesmas no detector de HPGe.

Utilizando as contagens líquidas correspondentes às medidas com cada absorvedor, efetuaram-se as correções relacionadas ao decaimento durante a medida. Este considerou o intervalo de medida + tempo de impressão, e o número de ciclos.

Uma vez aplicado o fator de correção que leva em conta a probabilidade de emissão beta por decaimento (82,7 %) obtiveram-se as atividades de ^{242g}Am presente em cada fonte, para cada absorvedor.

Como a meia-vida do ^{242m}Am é muito longa (140 anos), não foi possível medir a atividade deste radionuclídeo nas amostras. Entretanto, a influência do decaimento deste nível ao estado fundamental, pode ser considerado desprezível.

Uma vez determinado o fluxo térmico na posição de irradiação e considerado um tempo de irradiação de 30 min, conforme mencionado no item 3.2.3, calcularam-se os valores de secção de choque para cada absorvedor, por meio da expressão 4.5. A atividade do ^{241}Am foi obtida pela medida do decaimento alfa mencionado no item 3.4.5. Outro fator utilizado foi o índice epitérmico^[22], indicado na expressão A.31.

Os valores de secção de choque foram normalizados a uma atividade alfa específica, correspondente à da fonte alfa de referência. Este fator de normalização foi determinado pelo quociente da atividade alfa de cada fonte e a da fonte de referência.

Conforme descrito no apêndice C, calculou-se o fator $r^{[76]}$, que corresponde ao fator de correção devida a diferença de energia das partículas de decaimento beta da amostra e do traçador, expressão C.18. Com o objetivo de diminuir a inclinação da reta utilizada na extrapolação, os valores de secção de choque para cada absorvedor, assim como os das ineficiências beta foram divididos, pelo valor de $r^{[76]}$.

Na tabela 4.12.a são apresentados os parâmetros obtidos da reta ajustada para obter, na extrapolação, a secção de choque térmica. O χ^2 obtido foi 1,93 com 18 graus de liberdade. Na tabela 4.12.b são apresentados os parâmetros obtidos da reta ajustada para obter, no valor extrapolado, a Integral de Ressonância. O χ^2 obtido foi 1,11 com 28 graus de liberdade. Nas tabelas são apresentadas ainda as incertezas nos parâmetros do ajuste e a matriz de covariância correspondente.

Tabela 4.12.a: Parâmetros obtidos da curva ajustada para obter a secção de choque efetiva da reação $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242g}\text{Am}$.

Parâmetro	Valor Obtido	Incerteza	Matriz de covariância nos parâmetros	
a_0	499,79	5,4	29,44	
a_1	25,93	2,5	-10,59	6,77

Tabela 4.12.b: Parâmetros obtidos da curva ajustada para obter Integral de Ressonância da reação $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242}\text{Am}$

Parâmetro	Valor Obtido	Incerteza	Matriz de covariância nos parâmetros	
a_0	1549,45	5,1	26,22	
a_1	92,50	2,3	-9,11	53,94

Uma vez determinado o valor da Integral de Ressonância, foi necessário realizar uma série de cálculos adicionais, com o objetivo de analisar o comportamento da função resposta desta reação considerando as ressonâncias do ^{241}Am , assim como a energia de corte de cádmio (0,5 eV). Estes cálculos foram efetuados para 84 valores de energias, correspondentes à média dos respectivos intervalos mencionados nos apêndices E e F. Foram calculados os incrementos de cada intervalo e a densidade de nêutrons de acordo a distribuição de Maxwell, expressão 2.2 e a distribuição epitérmica, expressão 2.3 para os 84 intervalos.

Uma vez obtida a densidade de nêutrons em cada intervalo, foi efetuada a normalização das distribuições conforme descrito em A.11 e A.12 de acordo com a razão experimental entre os fluxos térmico e epitérmico.

Em seguida, foi calculada a densidade de nêutrons epitérmicos de acordo à distribuição $1/E^{1+\alpha}$, utilizando o valor $\alpha = 0,045$ obtido experimentalmente.

A distribuição denominada *fluxo ideal* corresponde à soma da distribuição de Maxwell com a distribuição $1/E$ e a denominada *fluxo real* corresponde à soma da distribuição de Maxwell com a distribuição $1/E^{1+\alpha}$. Foi utilizada em ambas as distribuições a função de junção Δ_4 , apresentada por Westcott^[54] expressão A.10.

Uma vez introduzidos os valores de transmissão:

- a) para um filtro ideal, isto é, zero para energias de nêutrons inferiores a 0,5 eV e unitário para nêutrons com energias acima desse valor, e
- b) calculados pelo Método de Monte Carlo (apêndice F),

foram obtidos o:

- *fluxo ideal com filtro ideal* como o produto do *fluxo ideal* com a transmissão para um filtro ideal, e
- *fluxo real com filtro de cádmio* como o produto do *fluxo real* com a transmissão do filtro de cádmio, calculada por Monte Carlo.

Uma vez obtidas as secções de choque diferenciais do ^{241}Am para os 84 valores de energias médias (determinadas mediante a aplicação da fórmula de Breit-Wigner de multiníveis, E.1), foi possível determinar a taxa de reação deste radionuclídeo. Este valor corresponde ao produto dos fluxos transmitidos pelos filtros com as secções de choque diferenciais, com e sem absorvedor de cádmio. Obtiveram-se assim quatro conjuntos de dados, apresentados na tabela 4.13:

- *taxa de reação para fluxo ideal sem filtro*, R_{1-s} ;
- *taxa de reação para fluxo real sem filtro*, R_{2-s} ;
- *taxa de reação para fluxo ideal com filtro ideal* R_{1-c} , e
- *taxa de reação para fluxo real com filtro real*, R_{2-c} .

Tabela 4.13: Taxas de reação do ^{241}Am resultantes dos cálculos apresentados nos apêndices E e F.

Intervalos considerados	R_{1-c}	R_{1-s}	R_{2-c}	R_{2-s}
1º ressonância (0,246-0,469)eV	0	53,72	2,795	53,72
2º ressonância (0,531-1,5)eV	17,02	18,07	11,56	18,07
< 0,5 eV	0	624,20	4,20	624,20
> 0,5 eV	68,54	68,54	59,21	68,54
Total	68,54	692,74	63,41	692,74

A análise dos resultados consistiu na integração das taxas de reação relacionadas à primeira e à segunda ressonância do ^{241}Am , com aquelas correspondentes às energias abaixo e acima de 0,5 eV para as 4 espécies de dados apresentados, segundo pode ser observado na tabela 4.13.

Dos resultados expostos pode ser observado que:

- as taxas de reação para os fluxos ideal e real sem cádmio são as mesmas;
- a taxa de reação no intervalo compreendido pela primeira ressonância para o fluxo real com o filtro de cádmio, apresenta um valor diferente de zero, como consequência do cádmio não ser um filtro perfeito;
- este mesmo fato pode ser observado para energias abaixo de 0,5 eV;
- acima de 0,5 eV, a diferença entre a taxa de reação para o fluxo ideal com filtro ideal com à do fluxo real com filtro de cádmio é de 9,33, enquanto que
- a diferença da taxa de reação total para ambos os fluxos com filtros ideal e de cádmio vê-se compensada parcialmente, pelos nêutrons com energias menores que 0,5 eV, que são transmitidos pelo cádmio.

4.4 Determinação da meia-vida do ^{242g}Am .

Com o objetivo de verificar a meia-vida do produto da reação $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242g}\text{Am}$, foi medida uma fonte no sistema de detecção $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com absorvedores de $\sim 6 \text{ mg.cm}^{-2}$. Acompanhou-se o seu decaimento por 7 dias consecutivos, com medidas de 600 s cada.

Calculou-se o intervalo total entre medidas como sendo de 642,13 s, dos quais 42,13 s eram gastos na impressão dos dados acumulados e na recomposição da eletrônica para dar início a uma nova medida. A incerteza estimada neste valor foi de 0,2 %.

Uma vez decaída a atividade beta, calculou-se o chamado “BG” da fonte, causado pela alta atividade alfa presente na mesma. Obtiveram-se aproximadamente 650 pontos dos quais escolheram-se os primeiros 216 para determinar a meia-vida. Com os dados obtidos ajustou-se por Mínimos Quadrados a função:

$$y = \ln (C - \text{BG}) \quad 4.7$$

onde: C = contagens totais;

BG = contagens do BG da fonte, obtidas como uma média entre 10 medidas, obtidas após o decaimento completo da fonte.

A tabela 4.14 apresenta os parâmetros ajustados.

Tabela 4.14: Ajuste linear ponderado para verificar a meia-vida do produto da reação $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242g}\text{Am}$.

parâmetro	valor	incerteza
a_0	13,42141	2,2E-4
a_1	-0,007709	2,5E-6

4.5 Análise de incertezas

A análise de incertezas foi realizada através da metodologia de matriz de covariância, que considera as incertezas parciais e suas respectivas correlações para calcular a incerteza total, assim como o nível de correlação entre as incertezas nos parâmetros.

Este tratamento de matriz de covariância (\overline{V}_x) é descrito na literatura^[10,77].

Para obter a incerteza total na determinação das secções de choque para reações em estudo, o cálculo de incertezas foi dividido nas seguintes etapas:

- incertezas nas eficiências de detecção;
- incertezas nos fluxos térmico e epitérmico;
- incertezas nas secções de choque.

4.5.1 Incertezas nas eficiências de detecção

Uma vez identificadas as incertezas no processo de medida das fontes padrões, elas foram propagadas levando em consideração as respectivas correlações.

As incertezas parciais são listadas a seguir:

- a - σ_{I_γ} incerteza da probabilidade de emissão gama por decaimento. As probabilidades de emissão gama das diferentes energias de decaimento de uma fonte multienergética podem estar correlacionadas. Em função da escassez destes dados na literatura, esta correlação foi considerada nula;
- b - σ_λ incerteza associada à constante de decaimento, com correlação total entre as diferentes energias de um mesmo radionuclídeo;
- c - σ_τ incerteza no tempo morto. Correlação total entre as diferentes

- energias de uma mesma fonte;
- d - σ_{geo} incerteza correspondente ao fator geométrico. Em função do sistema de posicionamento das amostras descrito no item 3.4.1, a correlação destas incertezas foi considerada total;
 - e - σ_{fa} incerteza do fator de atenuação, considerado com correlação total;
 - f - σ_A incerteza na atividade. Correlação total entre as diferentes energias de um mesmo radionuclídeo;
 - g - σ_{ct} incerteza nos fatores de correção dos esquemas de decaimento. A correlação foi considerada total;
 - h - σ_S incerteza na área do fotopico. Correlação nula.

Com as incertezas apresentadas, e as respectivas correlações, o programa LOGFIT^[69] calcula a matriz de covariância das incertezas, \bar{V}_{eij} por meio da seguinte expressão^[10]:

$$V_{eij} = \sum_{l=1}^L \rho_{eijl} \cdot e_{il} \cdot e_{jl} \quad 4.8$$

onde: ρ_{eijl} são as correlações parciais entre as incertezas;

e_{ij} e e_{jl} são as incertezas parciais.

A incerteza na eficiência de cada energia considerada está relacionada às variâncias através da expressão^[78]:

$$\sigma_{\epsilon} = (V_{eii})^{1/2} \quad 4.9$$

A matriz de covariância das incertezas nos parâmetros do ajuste da curva de eficiência, V_{ak} é dada por^[10]:

$$V_{ak} = (A^t \cdot V_Z^{-1} \cdot A)^{-1} \quad 4.10$$

onde: A é a matriz [n x m] cujos elementos são

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

V_z é a matriz de correlação das incertezas nas eficiências com elementos

$$V_{zlj} = \frac{V_{elj}}{\sigma_{\epsilon_i} \cdot \sigma_{\epsilon_j}}$$

Calculados estes valores, o programa LOGFIT^[69] determina as incertezas nas eficiências das diferentes energias, interpoladas pela curva de calibração, assim como as correlações existente entre as mesmas.

4.5.2 Incertezas nas atividades das amostras

No cálculo da atividade de uma amostra, o programa UNITCOV^[66] utiliza tanto os parâmetros do ajuste, como suas incertezas, além da matriz de correlação dos parâmetros, para calcular as incertezas nas eficiências de detecção interpoladas.

As outras fontes de incerteza provém da própria medida das amostras. Nestes cálculos foram consideradas as mesmas incertezas detalhadas acima.

4.5.3 Incertezas nas secções de choque

Para determinar as secções de choque foram utilizadas expressões como a 4.5 e 4.6, que requerem o quociente $A_{\text{alvo}}/A_{\text{produto}}$. Por esta razão, muitas das incertezas cancelam-se, como as correspondentes aos fatores de correção do tempo morto, geométrico, atenuação, uma vez que as atividades do alvo e do produto da ativação foram medidos simultaneamente. Este foi o caso das incertezas relacionadas às medidas das atividades envolvidas nas reações $^{57}\text{Co}(n,\gamma)^{58}\text{Co}$ e $^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{138}\text{Cs}$. Algumas incertezas foram consideradas desprezíveis, como as correspondentes ao decaimento do radionuclídeo alvo (^{57}Co , ^{137}Cs , ^{241}Am), comparada com a dos respectivos produtos de ativação.

Nos casos dos radionuclídeos envolvidos nas medidas de calibração, as incertezas relacionadas às correções de tempo morto, e empilhamento de pulsos foram consideradas conforme descrito no item 3.4.3.

No caso das medidas realizadas para determinar a secção de choque e Integral de ressonância da reação $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242g}\text{Am}$ as incertezas consideradas foram as seguintes:

- Bg da própria fonte. Em razão da alta atividade alfa de cada fonte, esta incerteza diminui com a espessura do absorvedor. Foi considerada correlação total associada a cada absorvedor;
- atividade do ^{60}Co presente em cada fonte, que foi propagada entre a incerteza na atividade deste radionuclídeo determinada no HPGe e a incerteza na eficiência beta fornecida pelo programa DILUIP7^[71]. Correlação total;
- estatística de contagens beta, fornecida pelo programa DILUIP7^[71]. Correlação nula;
- tempo de espera. Sem correlação;
- fluxo térmico. Correlação total para valores obtidos de uma mesma irradiação;
- parâmetro α . Correlação total;
- tempo de irradiação e normalização das atividades alfa. Correlação total.

A incerteza total de todas as secções de choque apresentadas no presente trabalho incluiu também aquela relacionada aos diferentes valores de probabilidade de formação do isômero, x , nas expressões 4.5 e 4.6 para as determinações das secções de choque térmicas e Integral de Ressonância.

5. APRESENTAÇÃO E COMPARAÇÃO DE RESULTADOS

5.1 *Secções de choque térmica e integral de ressonância da reação*



Como foi mencionado no item 3.2, o radionuclídeo alvo foi irradiado com e sem cobertura de cádmio próximo ao núcleo do reator. Isso possibilitou obter os valores tanto da secção de choque térmica como da Integral de Ressonância.

Em função da amostra ter sido irradiada sem a cobertura de cádmio, a expressão 4.5 fornece o resultado da secção de choque efetiva desta reação. Nessa expressão foram considerados os fatores p e a como 1 e 0, respectivamente. O parâmetro x foi 0,28 e 0,57 de acordo com os cálculos efetuados por meio da expressão 2.7. Nestes cálculos, foi considerado um fator de multiplicidade gama -expressão 2.8-, que neste caso resultou em $N_\gamma = 3$, partindo dos núcleos compostos com spins 3^- ou 4^- , respectivamente.

Na tabela 5.1.a são apresentados os valores de secção de choque efetiva, para três medidas de uma mesma irradiação de ^{57}Co .

O cálculo da Integral de Ressonância foi realizado através da expressão 4.6. Na tabela 5.1.b são apresentados os valores de Integral de Ressonância obtidos de diferentes medidas do material irradiado com cobertura de cádmio.

Uma vez obtido o valor da Integral de Ressonância por meio da expressão 4.6 e conhecidos os valores dos fluxos térmico e epitérmico da irradiação sem cobertura de cádmio, foi possível subtrair a contribuição na atividade correspondente aos nêutrons epitérmicos, possibilitando a obtenção da secção de choque para um fluxo à temperatura T_n igual a 41,3 °C. A secção de choque para nêutrons térmicos foi obtida após aplicar a correção da temperatura na expressão 2.15, com o valor da temperatura calculado por meio da expressão 2.34. Na tabela 5.1.c são apresentados os valores de secção de choque térmica.

A atividade obtida em cada medida fornece dois valores diferentes de secção de choque ou Integral de Ressonância de acordo com a probabilidade de formação do isômero utilizada no cálculo. Nas tabelas 5.1.a, b e c, cada valor de secção de choque é o resultado da média aritmética dessas secções de choque. Nestas tabelas apresentam-se também, as incertezas e a correspondente matriz de correlação. A última linha destas tabelas corresponde ao fator de correlação adotado para cada incerteza parcial.

A secção de choque média foi determinada por ajuste de mínimos quadrados dos valores obtidos em cada medida. A incerteza correspondente à probabilidade de formação do isômero foi considerada desprezível, bem como às correspondentes as áreas dos fotopicos de 122,06 e 136,47 do ^{57}Co .

Tabela 5.1.a: Secções de choque efetiva da reação $^{57}\text{Co}(n,\gamma)^{58}\text{Co}$.

Medida	Secção de choque						Matriz de correlação [X 1000]		
	[b]	σ_t [%]	σ_1 [%]	σ_2 [%]	σ_3 [%]	σ_4 [%]			
1	75,8	10,5	2,27	0,75	1,90	9,71	1000		
2	83,1	10,7	2,27	0,75	1,90	9,98	88	1000	
3	86,8	8,5	2,27	0,75	1,90	8,05	106	104	1000
média	82,0	6,1							
Fator de correlação			1	1	1	0			

onde: σ_t = incerteza total

σ_1 = incertezas nos fatores λ_{57} , λ_{58} , ϵ_{57} propagada das duas linhas de energia consideradas e ϵ_{58} ;

σ_2 = incertezas nas probabilidades de emissão gama por decaimento de ambos os radionuclídeos;

σ_3 = incerteza no fluxo térmico;

σ_4 = incerteza na estatística de contagem do fotopico de 810,77 keV do ^{58}Co .

Tabela 5.1.b: Integrais de Ressonância para a reação $^{57}\text{Co}(n,\gamma)$.

Medida	I [b]	Secção de choque						Matriz de correlação [X 1000]	
		σ_t [%]	σ_1 [%]	σ_2 [%]	σ_3 [%]	σ_4 [%]	σ_5 [%]		
1	179,4	8,4	2,24	0,75	0,82	3,18	7,34	1000	
2	164,3	7,6	2,24	0,75	0,82	3,18	6,45	246	1000
Média	170,0	6,3							
Fator de correlação			1	1	0	1	0		

onde: σ_1 e σ_2 correspondem às mesmas incertezas da tabela 5.1;

σ_3 corresponde à propagação das incertezas nos fatores de correção do tempo morto e geométrico das medidas das amostras com geometrias diferentes;

σ_4 incerteza no fluxo epitérmico;

σ_5 incerteza na estatística de contagem do fotopico de 810,77 keV do ^{58}Co .

Tabela 5.1.c: Secções de choque para nêutrons térmicos da reação $^{57}\text{Co}(n,\gamma)^{58}\text{Co}$.

Medida	Secção de choque.		σ_t [%]	σ_1 [%]	σ_2 [%]	σ_3 [%]	σ_4 [%]	σ_5 [%]	Matriz de correlação [X 1000]	
	[b]									
1	73,9	10,1	2,27	0,75	1,904	7,34	0,22	1000		
2	80,1	10,3	2,27	0,75	1,90	6,45	0,22	70	1000	
3	83,7	8,5	2,27	0,75	1,90	6,45	0,22	85	83 1000	
média	79,3	6,1								
Fator de correlação			1	1	1	1	0			

onde: σ_1 a σ_4 são as mesmas incertezas da tabela 5.1 e

σ_5 corresponde a incerteza associada à atividade induzida pelos nêutrons epitérmicos.

Durante a irradiação da amostra de ^{57}Co com cobertura de cádmio o reator sofreu um "scram" (foi desligado), por um intervalo de 2 horas e 14 minutos. Desta maneira, a atividade do ^{198}Au dos monitores de fluxo de Au-Al sofreu uma correção por meio da expressão D.7. Com os valores corrigidos, foram calculados os fluxos térmico e epitérmico na posição de irradiação - expressões 2.32 e 2.39 -. A correção pela irradiação descontínua para o ^{58}Co foi considerada desprezível em função do intervalo entre irradiações e a meia-vida envolvidos.

O valor da incerteza na secção de choque térmica corresponde à propagação das incertezas anteriormente consideradas com aquela referente ao cálculo do fluxo de nêutrons epitérmicos.

O resultado da secção de choque efetiva, (σ_{ef}) do ^{57}Co obtido no presente trabalho foi $(82,0 \pm 4,9)$ b, o da Integral de Ressonância, (I) de $(170,0 \pm 1,1)$ b e o da secção de choque térmica, (σ_0) de $(79,3 \pm 4,8)$ b. Como foi mencionado, este parâmetro não havia sido medido anteriormente e não há dados para comparação. No trabalho realizado por LINCKE^[27] é apresentado um método para reduzir reações indesejáveis na produção de ^{58}Co na reação do níquel natural $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$. Pode-se constatar que com o valor da Integral de Ressonância

obtido no presente trabalho, a produção do ^{58}Co induzida por nêutrons epitérmicos no ^{57}Co resultaria numa quantidade desprezível.

A incerteza total dos três resultados apresentados acima foi obtida considerando as incertezas parciais e as correlações apresentadas. As mesmas foram: 6,1 % para a secção de choque efetiva e a secção de choque térmica, respectivamente; 6,3 % para a Integral de Ressonância. O fator dominante nos três casos é a incerteza nas contagens, que não estão correlacionadas. Por esta razão, os elementos que não pertencem a diagonal principal possuem valores relativamente pequenos.

5.2 Secções de choque da reação $^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{138}\text{Cs}$

Considerando a expressão 4.5 e o esquema de decaimento dos radionuclídeos envolvidos nesta reação, figura 2.4, os valores de p e a aplicados foram 0,81 e 1, respectivamente. O parâmetro x utilizado (cálculos efetuados com o auxílio da expressão 2.7), foi 0,11 e 0,34. Estes resultados foram obtidos por meio da somas das probabilidades parciais considerando um fator de multiplicidade gama, $N_\gamma = 4$ (expressão 2.8), partindo dos núcleos compostos com spins 3^+ ou 4^+ , respectivamente até alcançar o spin 6^- do estado meta-estável.

Como conseqüência do baixo fluxo de nêutrons na posição de irradiação, não foi possível medir a Integral de Ressonância. Com o objetivo de corrigir a contribuição dos nêutrons epitérmicos na produção de ^{138}Cs , o valor da Integral de Ressonância utilizado foi extraído da literatura^[4,13,24].

Para obter o valor final da secção de choque desta reação, foram efetuadas nove irradiações. Os diferentes valores foram agrupados de modo a melhorar a estatística de contagem do ^{138}Cs , obtendo quatro valores de secções de choque. Os resultados obtidos com cada grupo, são apresentados nas tabelas 5.2.a e 5.2.b, juntamente com as fontes de incerteza, os correspondentes fatores de correlação assim como a matriz de correlação. A secção de choque média foi

determinada por meio de um ajuste de mínimos quadrados aos valores de cada grupo. A incerteza total, foi obtida levando-se em conta todas as incertezas parciais e correlações correspondentes.

As incerteza total obtida para a secção de choque efetiva foi de 5,8 % enquanto que para a secção de choque térmica, foi de 6,1 %. Ambas possuem como fator dominante, a incerteza na estatística de contagem, que não é correlacionada, resultando em valores relativamente pequenos fora da diagonal principal da matriz de correlação.

Tabela 5.2: Secções de choque, incertezas parciais e matriz de correlação para a reação $^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{138}\text{Cs}$. A última linha corresponde ao fator de correlação adotado para cada incerteza parcial. A incerteza na eficiência de detecção foi calculada pela Matriz de Covariância apresentada na tabela 4.5.

a) Resultados da secção de choque efetiva.

Grupo de irradiação	Secção de choque	σ_1	σ_2	σ_3	σ_4	σ_5	σ_6	Matriz de correlação [X 1000]				
	[b]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]					
1	0,276	14,8	14,6	0,97	1,2	0,99	1,5	1000				
2	0,239	9,4	9,1	0,97	1,2	0,99	1,5	40	1000			
3	0,274	11,1	10,8	0,97	1,2	0,99	1,5	34	54	1000		
4	0,292	9,7	9,4	0,97	1,4	0,99	1,5	41	64	55	1000	
Média	0,264	5,8										
Fator de correlação			0	1	1	1	1	1				

b) Resultados da secção de choque térmica, σ_0

Grupo de irradiação	Secção de choque (b)	σ_1	σ_2	σ_3	σ_4	σ_5	σ_6	σ_7	Matriz de correlação [x 1000]			
		[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]				
1	0,265	14,8	14,6	0,97	1,2	0,99	1,5	1,8	1000			
2	0,229	9,4	9,1	0,97	1,2	0,99	1,5	1,8	62 1000			
3	0,263	11,0	10,8	0,97	1,2	0,99	1,5	1,8	53	82	1000	
4	0,280	9,7	9,4	0,97	1,4	0,99	1,5	1,8	62	96	82	1000
Média	0,253	6,1										
Fator de correlação		0	1	1	1	1	1	1				

onde: σ_1 = incerteza total;

σ_2 = incerteza na estatística de contagem;

σ_3 = incerteza no tempo morto e empilhamento;

σ_4 = incerteza no decaimento do ^{138}Cs ;

σ_5 = incerteza na eficiência de detecção;

σ_6 = incerteza na produção de ^{138m}Cs ;

σ_7 = incerteza da atividade induzida pelos nêutrons epitérmicos.

O resultado da secção de choque efetiva do ^{137}Cs obtido no presente trabalho foi $(0,264 \pm 0,015)$ b. Este valor concorda com o obtido por HARADA et al.^[26] de $(0,250 \pm 0,013)$ b. O índice da convenção epitérmica de Westcott de 0,036 é maior que o de 0,02 obtido por HARADA^[26]. Considerando que a Integral de ressonância possui valores pequenos (0,3-0,5 b), a contribuição dos nêutrons epitérmicos torna-se desprezível, o que leva a concordância entre ambos resultados. Por outro lado, o valor do presente trabalho discorda significativamente com o encontrado por STUPEGGIA^[25], de $(0,110 \pm 0,033)$ b. Esta discrepância não pode ser justificada pela presença de nêutrons epitérmicos, uma vez que em ambos experimentos essa contribuição é pequena.

O resultado da secção de choque para nêutrons térmicos, (σ_0) foi $(0,253 \pm 0,015)$ b. Este valor levou em consideração a correção de $(5,7 \pm 1,8)$ % devida à contribuição da atividade induzida por nêutrons intermediários, utilizando o valor da Integral de ressonância de $I = (0,51 \pm 0,15)$ b. Este

resultado corresponde ao valor médio calculado entre os resultados obtidos por SEKINE et al.^[24], ENDF/B-V^[41], e JENDL-3^[52]. Considerando unicamente o valor $I = (0,36 \pm 0,07)$ b dado por SEKINE et al.^[24], o resultado do presente trabalho torna-se $\sigma_0 = (0,259 \pm 0,015)$ b. Ambos os resultados concordam com o valor $(0,25 \pm 0,02)$ b obtido por SEKINE et al.^[24].

A probabilidade de formação do estado metaestável, x , foi calculada de acordo com as somas das probabilidades parciais dos diferentes spins, (expressão 2.7), obtendo-se um resultado de 0,34 partindo do núcleo composto de spin 4^+ e considerando um fator de multiplicidade gama, $N_\gamma = 4$, e spin do núcleo resultante (estado meta-estável) 6^- . Partindo de um núcleo composto com spin 3^+ e $N_\gamma = 4$ a probabilidade de formação do estado meta-estável foi de 0,11. Estes dois resultados coincidem com os apresentados por SEKINE, et al.^[24]. Na determinação da atividade do ^{138}Cs consideraram-se os tempos de irradiação e espera e fizeram-se correções que levaram em conta o valor de x . Estes fatores acarretaram em uma incerteza de 1,5 % ou menos, a qual foi incluída na incerteza total da secção de choque.

5.3 Secções de choque térmica e Integral de Ressonância da reação



A secção de choque desta reação foi calculada através da expressão 4.6, considerando os fatores p e a iguais a 0,995 e 0, respectivamente, como pode ser observado na figura 2.5.

Na tabela 5.3 é apresentado o resultado obtido para x , probabilidade de formação do estado isomérico do ^{242}Am . Esses resultados foram obtidos por meio da soma das probabilidades parciais (expressão 2.7), considerando os fatores de multiplicidade gama que aparecem na primeira coluna, nas duas colunas seguintes

são apresentados os resultados obtidos para x calculados considerando os spins dos núcleos compostos como sendo 2^+ ou 3^+ , respectivamente até alcançar o spin 1^- do estado metaestável.

Tabela 5.3: Probabilidade de formação do estado ^{242m}Am .

N_γ	$J = 2^+$	$J = 3^+$
2	0,776	0,428
3	0,668	0,403
4	0,594	0,378
5	0,536	0,358
6	0,490	0,340
7	0,451	0,323

Na figura 5.1 são apresentados os valores parciais de secção de choque térmica para cada absorvedor em função da ineficiência do Co, normalizados pelo fator r (item 4.3.2), as incertezas parciais e a curva de extrapolação referidas no item 4.3.3, tabela 4.12.a. As fontes referem-se a duas irradiações independentes. Cada conjunto de pontos é o resultado da medida de cada fonte com os absorvedores externos de 6, 9, 12, 15 e 20 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$. O ajuste de primeiro grau, foi realizado com 20 pontos, obtendo um χ^2 igual a 1,933, com 18 graus de liberdade.

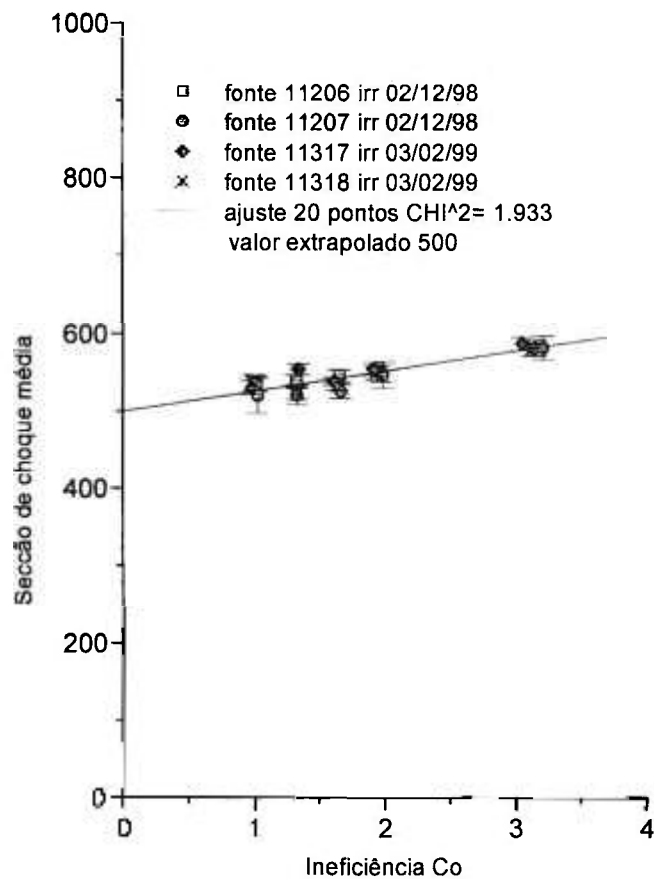


Figura 5.1: Valores de secção de choque média em função de ineficiência de Co utilizados para ajustar a curva de extrapolação. O ponto extrapolado fornece a secção de choque média da reação $^{242}\text{Am}(n,\gamma)^{242g}\text{Am}$.

Na determinação da atividade do ^{242g}Am , as correções pelo decaimento do ^{242m}Am , em razão da diferença entre as meias-vidas de ambos os núclídeos, foi considerada desprezível.

Os valores de g e s para o ^{241}Am foram calculados por meio das expressões apresentadas na literatura^[54], na qual foi escolhida a função de junção Δ_4 ^[54]. Os valores obtidos foram: $g = 1,02455$ e $s = 5,4943$.

O valor extrapolado da secção de choque média, $\bar{\sigma}$, resultou:

$$\bar{\sigma} = (500 \pm 8) \text{ b}$$

Finalmente, a secção de choque térmica obtida após a correção pelo efeito da temperatura, tornou-se:

$$\sigma_0 = (602 \pm 9) \text{ b}$$

Este valor concorda com o obtido por KALEBIN^[29] de $\sigma_0 = (624 \pm 20) \text{ b}$ e com o recomendado por MUNGHABGHAB^[2] de $(585 \pm 12) \text{ b}$ dentro do valor das incertezas, e discorda com os obtidos por HARBOUR^[23], $\sigma_0 = (748 \pm 20) \text{ b}$ e por SHINOHARA^[30], de $(768 \pm 58) \text{ b}$.

O cálculo da Integral de Ressonância seguiu o mesmo procedimento, sendo aplicada a expressão 4.6, com a substituição dos valores correspondentes aos radionuclídeos alvo e produto, respectivamente.

Na figura 5.2 são apresentados os valores parciais de Integral de Ressonância para cada absorvedor, as incertezas parciais e a curva de extrapolação. As fontes se referem a três irradiações independentes. Cada conjunto de pontos é o resultado da medida de cada fonte com os absorvedores externos de 6, 9, 12, 15 e 20 mg.cm⁻². O ajuste de primeiro grau, foi realizado com 30 pontos, obtendo um χ^2 igual a 1,107, com 28 graus de liberdade, apresentado na tabela 4.12.b.

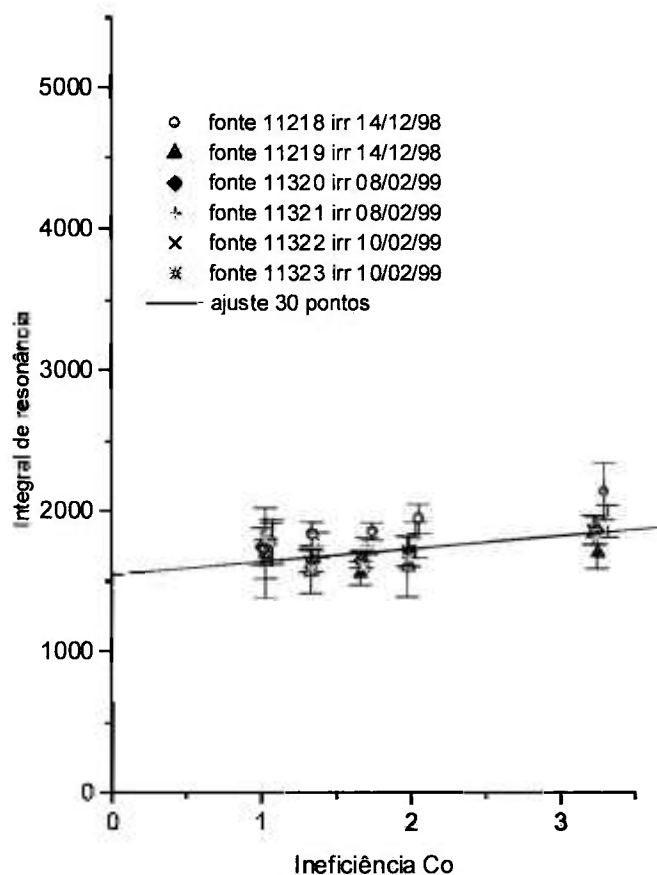


Figura 5.2: Resultados de Integral de Ressonância em função de ineficiência de Co utilizados para ajustar a curva de extrapolação. O ponto extrapolado fornece a de Integral de Ressonância da reação $^{242}\text{Am}(n,\gamma)^{242}\text{Am}$.

Comparando os valores da taxa de reação total para os espectros ideal e real com cádmio, apresentados na tabela 4.13, foi calculado o fator de correção para a integral de ressonância que resultou igual a 7,5 %, uma vez que uma parte dos nêutrons com energias abaixo de 0,5 eV, que são transmitidos pelo cádmio, compensam parcialmente aqueles de energia acima desse valor, que são absorvidos. A incerteza estimada desta correção foi de 4,3 %. Neste valor foi considerada a incerteza nas seções de choque diferenciais do Cd e do Am (20% cada), a incerteza na medida da espessura

do cádmio (10 %) e à da determinação do fator de correção do fluxo intermediário α (49 %).

O valor extrapolado da Integral de Ressonância, de acordo com a metodologia descrita no item 4.3.3 foi de:

$$I = (1549 \pm 53) b.$$

O valor da Integral de Ressonância obtida no presente trabalho, após a aplicação da correção resultante do cálculo teórico (7,5%) torna-se:

$$I = (1665 \pm 91) b.$$

Este valor está em acordo com o determinado por SHINOHARA^[30] de $(1694 \pm 146) b$, por KALEBIN^[29] de $(1650 \pm 120) b$ e por WESTON and TOOD^[79] de $(1526 \pm 92) b$ dentro dos valores das incertezas, porém está em desacordo com aqueles publicados por BAK^[80] de $(2100 \pm 200) b$ e por HARBOUR^[23] de $(1330 \pm 117) b$.

Dos resultados obtidos cabe ressaltar, que o valor da integral de ressonância concorda, dentro dos valores das incertezas, com o mais recente obtido na literatura^[30]. Entretanto, a secção de choque térmica discorda do valor mais recente^[30]. Esta discordância pode estar associada ao corte de cádmio e a característica do espectro, que não foram detalhados no referido trabalho.

5.4 MEIA-VIDA DO ^{242g}Am

O resultado da meia-vida do produto da reação de ativação do ²⁴¹Am obtida como consequência do ajuste apresentado na tabela 4.14 foi de:

$$T_{1/2} = 16,01(3) h$$

O valor entre parênteses representa a incerteza no último dígito e corresponde à incerteza de 0.18 %. A figura 5.3 apresenta os dados correspondentes à diferença dos valores obtidos experimentalmente conforme descrito no item 4.4, e os dados obtidos do ajuste apresentado na tabela 4.14 com o qual se obteve o valor de meia-vida apresentado. Cada valor obedece a um intervalo de medida de 600 s.

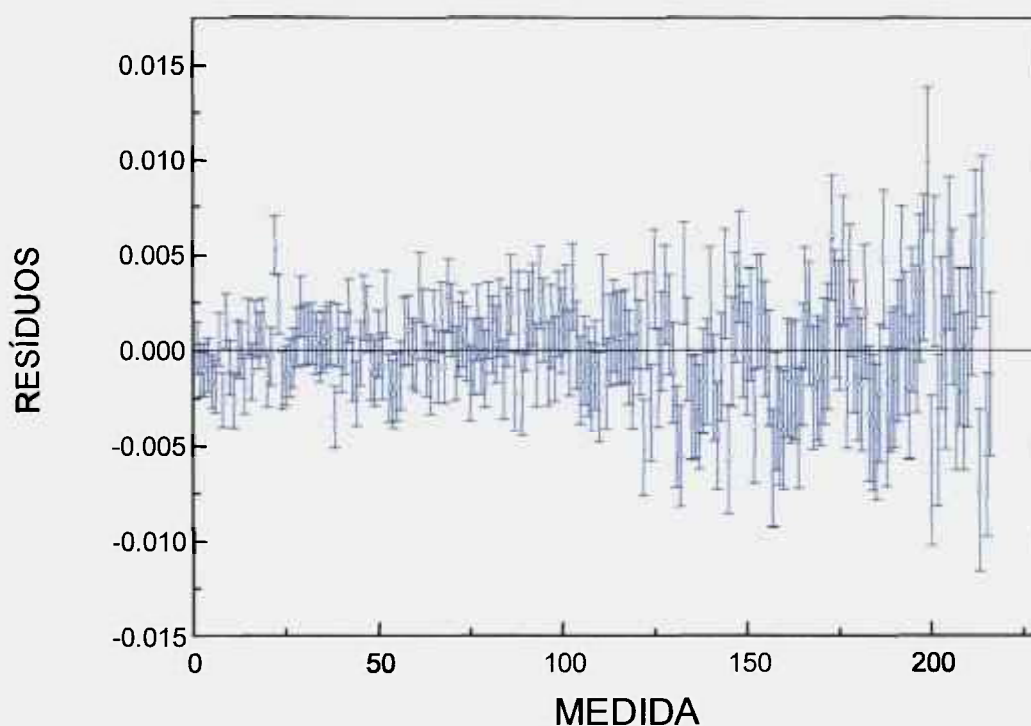


Figura 5.3: Curva de resíduos dos pontos ajustados com relação aos dos pontos experimentais.

O valor da meia vida obtido no presente trabalho para o ^{242}gAm , concorda com o de $(16,02 \pm 0,02)$ h da literatura^[46], dentro da incerteza estimada, indicando que não houve a presença de impurezas emissoras beta detectáveis durante a medida do ^{242}gAm .

6. CONCLUSÕES E RECOMENDAÇÕES

No presente trabalho, determinaram-se as secções de choque de três radionuclídeos e a Integral de Ressonância de dois deles.

Pelas características dos núcleos estudados, o ^{57}Co , considerado um núcleo intermediário ($25 < A < 80$) e o ^{137}Cs bem como o ^{241}Am considerados núcleos pesados ($A > 80$), possuem diferentes funções resposta para a interação com nêutrons. Os três apresentaram uma secção de choque caracterizada pelo comportamento $1/v$ na região de nêutrons térmicos; o primeiro deles sem ressonâncias aparentes (figura 2.6); o segundo deles apresenta uma ressonância para nêutrons rápidos ($\sim 10^3$ eV), enquanto que o último é caracterizado por várias ressonâncias das quais as duas primeiras se localizam na região de nêutrons epitérmicos, com a energia de corte de cádmio entre elas. Este comportamento levou à necessidade de realizar uma série de correções. Estas correções foram baseadas em cálculos teóricos que incluíram a determinação de secções de choque diferenciais, por meio da equação de Breit-Wigner de multiníveis e da transmissão no cádmio para nêutrons, numa simulação baseada no método de Monte Carlo. Esta simulação abrangeu todo o espectro de energias e detalhou o intervalo de 0,2 eV a 0,7 eV.

Por outro lado, em função do tipo das reações estudadas, os três núcleos possibilitaram a formação de estados isoméricos. Por este motivo foi necessário realizar um estudo cuidadoso da ativação dos dois estados isomérico e fundamental, em função de suas meias vidas, características de decaimento, além de considerar a probabilidade de formação do isômero calculada teoricamente.

Em razão das características destas reações, realizou-se também um estudo cuidadoso do comportamento da distribuição de energias dos nêutrons. Neste estudo verificou-se o afastamento da distribuição ideal, por parte dos nêutrons epitérmicos. Determinou-se o parâmetro α , indicativo da inclinação desse afastamento.

Em função das geometrias de medida utilizadas no detector de HPGe, foi necessário determinar as curvas de eficiência para o espectro total e para o pico de absorção total a fim de corrigir os efeitos de soma em cascata.

Os valores de secções de choque e Integral de Ressonância obtidos para a reação $^{57}\text{Co}(n,\gamma)^{58}\text{Co}$ são inéditos e serão de utilidade nos estudos relacionados à estrutura interna destes radionuclídeos. Considerando os valores das incertezas obtidas nestas determinações, recomenda-se realizar novas medidas com o objetivo de reduzi-las.

Os resultados obtidos no estudo da secção de choque térmica e da Integral de Ressonância do ^{241}Am , alcançaram os objetivos propostos bem como os da secção de choque térmica do ^{137}Cs .

Dos parâmetros apresentados no ajuste dos resíduos para a determinação da meia-vida do produto da reação do ^{241}Am pode-se concluir que não houve contribuição apreciável de impurezas na medida.

Em função dos cálculos que levaram em consideração a presença do estado metaestável, conclui-se que dadas as características das medidas realizadas neste trabalho, estes não induziram incertezas que contribuíssem em grau significativo a incerteza total na medida, embora tenha sido necessário realizar um estudo cuidadoso da presença das mesmas, em função da atividade do radionuclídeo a ser medido.

Algumas sugestões para trabalhos futuros:

- Melhorar a exatidão nas secções de choque e integral de ressonância obtidas para a reação $^{57}\text{Co}(n,\gamma)^{58}\text{Co}$;
- Dar continuidade ao estudo das secções de choque de nuclídeos radioativos, com ênfase na determinação da taxa de formação de isômeros.

APÊNDICE A

FORMALISMO DE WESTCOTT

A densidade de nêutrons térmicos para uma distribuição de Maxwell, em função da velocidade, é dada por^[36,37]

$$n(v) = \frac{4n}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{m}{2kT} \right)^{3/2} v^2 e^{(-mv^2/2kT)} \quad (\text{A.1})$$

onde: $n(v)$ = densidade de nêutrons = $\phi(v)/v$ [nêutrons/cm³];

Da equação A.1, pode ser derivada a expressão da velocidade mais provável, correspondente ao máximo da distribuição de Maxwell, dada por:

$$v_T = \left(\frac{2kT}{m} \right)^{1/2} \quad (\text{A.2})$$

Quando o meio moderador está a uma temperatura igual a $T_0 = 20,44$ °C $\equiv 293,6$ Kelvins, a velocidade v_T possui o valor: $v_0 = 2200$ m/s. A energia correspondente (máximo da distribuição) $E_{T_0} = k T_0$, é denominada energia térmica e possui o valor de 0,025 eV.

O fluxo convencional é definido por

$$\phi_0 = n v_0$$

A secção de choque para nêutrons desta velocidade (2200 m/s) é chamada secção de choque térmica σ_0 e seus valores estão tabelados na literatura para a maioria dos elementos^[1,2,34]. Portanto,

$$\sigma(2200 \text{ m/s}) \equiv \sigma_0.$$

No caso ideal de um material com uma secção de choque puramente $1/v$, pode-se colocar a dependência com a velocidade do nêutron em termos da secção de choque térmica:

$$\sigma(v) = \frac{\sigma_0 v_0}{v} \quad (\text{A.3})$$

Nesse caso, a taxa de reação é dada por:

$$R = N_0 \sigma_0 v_0 \int_0^{\infty} n(v) dv \quad (\text{A.4})$$

onde: N_0 = número total de átomos do nuclídeo de interesse na amostra.

Como a integral $\int_0^{\infty} n(v) dv$ é igual a densidade total de nêutrons térmicos n_{th} , a expressão A.4 se reduz a:

$$R = N_0 \sigma_0 v_0 n_{th} \quad (\text{A.5})$$

O produto $n_{th} v_0 = \phi_{0 th}$ é denominado fluxo térmico, para uma distribuição de nêutrons com uma velocidade de 2200 m/s.

O fluxo na temperatura real do meio moderador obedece à expressão^[57]:

$$\phi = n_{th} \bar{v}$$

onde: \bar{v} é a velocidade média dos nêutrons.

A velocidade média: \bar{v} , numa distribuição de Maxwell com temperatura T, se relaciona com a velocidade v_0 pela expressão:

$$\bar{v} = \sqrt{\frac{4 T}{\pi T_0}} v_0 \quad (\text{A.6})$$

Assim, a expressão para o fluxo real pode ser colocada na forma:

$$\phi_{th} = \frac{R}{N_0 \sigma_0 \sqrt{\frac{\pi T_0}{4T}}} \quad (A.7)$$

ou substituindo $R/N_0 \sigma_0$ por ϕ_0 temos:

$$\phi_{th} = \phi_0 \sqrt{\frac{4T}{\pi T_0}} \quad (A.8)$$

Na prática, os materiais não apresentam secções de choque com comportamento $1/v$. Nessas condições, a expressão A.8 não corresponde a uma aproximação do caso real, tornando-se necessária a aplicação de correções para o desvio de $1/v$. Essas correções são obtidas de uma maneira adequada pela utilização do formalismo de Westcott^[38,53,57].

Para aplicação deste formalismo considera-se que o espectro de nêutrons segue uma distribuição Maxwelliana na região térmica e uma distribuição $1/E$ na região epitérmica. A figura 2.2 mostra o comportamento destas duas distribuições. A componente $1/E$ se sobrepõe a Maxwelliana e tem início numa certa energia E_c .

Essas duas componentes estão relacionadas entre si por meio de *uma função de junção*, ou função de corte; expressões apropriadas para essa função, que tem a finalidade de tornar o espectro contínuo na região de junção, podem ser encontradas na literatura^[53,57].

Em sua forma mais simples, a função de junção, comumente denominada Δ , é uma aproximação para uma função degrau do tipo:

$$\begin{aligned} \Delta &= 0 & \text{para } E_c < \mu k T \\ \Delta &= 1 & \text{para } E_c > \mu k T \end{aligned} \quad (A.9)$$

onde μ é um coeficiente escolhido de modo de ajustar a junção ao caso real. A energia de corte E_c neste caso é dada em unidades de kT . No caso de reatores moderados a água pesada, o valor de μ está em torno de 5^[54], de modo que a energia de corte está em torno de $5kT$.

Segundo estudos realizados por WESTCOTT^[54], baseado em funções de junção medidas e nas características que associam o comportamento com efeitos moleculares e de temperatura, é possível utilizar outras expressões para a mencionada função Δ . De acordo com as características de cada função Δ apresentadas por WESTCOTT, no presente trabalho foi utilizada a função Δ_4 , na qual a forma do “degrau” é independente da temperatura a saber:

$$\Delta_4 = \frac{1}{1 - \frac{0,26}{1 + (E/(16,4 k T))^5} \left(\frac{4,75 k T}{E} \right)^7} \quad (\text{A.10})$$

Pode-se escrever então uma expressão para a densidade de nêutrons correspondente à soma da componente Maxwelliana mais a componente $1/E$, ambas ligadas pela função de junção^[57]:

$$n(v) = n_m \rho_m(v) + n_i \Delta \rho_i(v) \quad (\text{A.11})$$

onde n_m é a densidade de nêutrons Maxwelliana dada por $n_m = n(1 - f)$ e n_i é a densidade de nêutrons epitérmicos dada por $n_i = nf$ onde f é a fração de nêutrons epitérmicos na densidade total n . $\rho_m(v)$ e $\rho_i(v)$ são respectivamente as funções de distribuição da densidade dos nêutrons Maxwelliana e epitérmica normalizadas:

$$\int_0^\infty \rho_m(v) dv = \int_0^\infty \Delta \rho_i(v) dv = 1 \quad (\text{A.12})$$

sendo que:

$$P_m(v) = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{m}{2kT} \right)^{3/2} v^2 e^{-\frac{mv^2}{2kT}} \equiv \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v^2}{v_T^3} e^{-\left(\frac{v}{v_T}\right)^2} \quad (\text{A.13})$$

e

$$P_1(v) = v_T \mu^{1/2} v^{-2} \quad (\text{A.14})$$

Dessa forma, tem-se que a densidade de nêutrons pode ser expressa por:

$$n(v) = n(1-f) \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v^2}{v_T^3} e^{-\left(\frac{v}{v_T}\right)^2} + n f \Delta v_T \mu^{1/2} v^{-2} \quad (\text{A.15})$$

A taxa de reação para a determinação do fluxo é obtida substituindo a expressão A.15 em A.4, considerando que a secção de choque σ depende da velocidade do nêutron, com o qual $\sigma = \sigma(v)$

$$R = N_0 \left[n(1-f) \int_0^\infty \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v^3}{v_T^3} e^{-\left(\frac{v}{v_T}\right)^2} \sigma(v) d(v) + n f v_T \mu^{1/2} \int_0^\infty \frac{\Delta}{v} \sigma(v) d(v) \right] \quad (\text{A.16})$$

Quando o espectro é puramente Maxwelliano, caso em que não há contribuição epitérmica, a fração de nêutrons epitérmicos f é zero. A taxa de reação para determinação do fluxo é dada por:

$$R = N_0 \left[n \int_0^\infty \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v^3}{v_T^3} e^{-\left(\frac{v}{v_T}\right)^2} \sigma(v) d(v) \right] \quad (\text{A.17})$$

Para facilitar os cálculos é conveniente definir a taxa de reação em termos de uma secção de choque efetiva Maxwelliana $\hat{\sigma}_m$, da seguinte forma:

$$R = N_0 n v_0 \hat{\sigma}_m \quad (\text{A.18})$$

onde n_{v_0} é a densidade de fluxo convencional particularizado para o caso: $n = n_m$.

Comparando A.17 com A.18 tem-se:

$$\hat{\sigma}_m = \frac{1}{v_0} \int_0^\infty \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v^3}{v_T^3} e^{-\left(\frac{v}{v_T}\right)^2} \sigma(v) dv \quad (\text{A.19})$$

Uma vez que na literatura^[1] podem-se encontrar facilmente os valores tabelados para σ_0 , o formalismo de Westcott define um fator de correção g que permite a obtenção da secção de choque efetiva Maxwelliana $\hat{\sigma}_m$ por meio do valor de σ_0 . Este valor corrige a secção de choque $\hat{\sigma}_m$ para a influência da temperatura (dada pelo termo v_T) e para a variação da secção de choque na região Maxwelliana em $\sigma(v)$. O fator g é definido pela expressão:

$$g \equiv \frac{\hat{\sigma}_m}{\sigma_0} = \frac{1}{v_0 \sigma_0} \int_0^\infty \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v^3}{v_T^3} e^{-\left(\frac{v}{v_T}\right)^2} \sigma(v) dv \quad (\text{A.20})$$

Os valores de g estão tabelados na literatura^[81] para diversos materiais e várias temperaturas. Portanto, a secção de choque efetiva $\hat{\sigma}_m$ pode ser calculada pela expressão:

$$\hat{\sigma}_m = \sigma_0 g \quad (\text{A.21})$$

É evidente que quando um material é puramente $1/v$ o valor de $g = 1$, e a expressão A.18 recai na expressão A.5.

Quando o espectro não é puramente Maxwelliano, caso em que existe uma fração do espectro epitérmico sobreposta ao térmico, a taxa de reação é dada por:

$$R = N_0 \left[n(1-f)v_0 \hat{\sigma}_m + n f v_T \mu^{1/2} \int_0^\infty \frac{\Delta \sigma(v)}{v} dv \right] \quad (\text{A.22})$$

Separando a parte epitérmica tem-se que:

$$R = N_0 \left[n v_0 \hat{\sigma}_m + n f \left[v_T \mu^{1/2} \int_0^\infty \frac{\Delta \sigma(v)}{v} dv - v_0 \hat{\sigma}_m \right] \right] \quad (\text{A.23})$$

Novamente é conveniente definir uma secção de choque efetiva $\hat{\sigma}$, de maneira de simplificar a expressão para a taxa de reação:

$$R = N_0 n v_0 \hat{\sigma} \quad (\text{A.24})$$

onde:

$$\hat{\sigma} = g \sigma_0 + \frac{f \mu^{1/2} v_T}{2 v_0} \int_0^\infty \left[\sigma(v) - \frac{v_0 \hat{\sigma}_m}{v} \right] \frac{\Delta 2 dv}{v} \quad (\text{A.25})$$

substituindo $\frac{2 dv}{v}$ por $\frac{dE}{E}$ tem-se:

$$\hat{\sigma} = g \sigma_0 + \frac{f \mu^{1/2} v_T}{2 v_0} \int_0^\infty \left[\sigma(v) - \frac{v_0 \hat{\sigma}_m}{v} \right] \frac{\Delta dE}{E} \quad (\text{A.26})$$

A partir dessa expressão pode-se verificar que existem duas partes: a Maxwelliana dada por $(g \sigma_0)$ e a contribuição do fluxo epitérmico dada por:

$$\frac{f \mu^{1/2} v_T}{2 v_0} \int_0^\infty \left[\sigma(v) - \frac{v_0 \hat{\sigma}_m}{v} \right] \frac{\Delta dE}{E} \quad (\text{A.27})$$

Utilizando uma função Δ do tipo degrau do tipo A.9, a expressão A.27 se reduz a:

$$\frac{f \mu^{1/2} v_T}{2 v_0} \int_{\mu kT}^{\infty} \left[\sigma(v) - \frac{v_0 \hat{\sigma}_m}{v} \right] \frac{dE}{E} \quad (\text{A.28})$$

Convém notar que a integral da expressão A.28 envolve somente componentes ressonantes da secção de choque, uma vez que está subtraída a componente $1/v$.

Da expressão A.28 podemos definir uma nova fração de nêutrons epitérmicos r proporcional a $(f \mu^{1/2})$ dada pela expressão:

$$r = \frac{f (\mu \pi)^{1/2}}{4} \quad (\text{A.29})$$

O parâmetro r , para simplificação de notação, é denominado também fração de nêutrons epitérmicos e é determinado experimentalmente.

Da mesma equação A.28 define-se um outro fator denominados dado pela expressão:

$$s = \frac{1}{\sigma_0} \left[\frac{4T}{\pi T_0} \right]^{1/2} \int_{\mu kT}^{\infty} \left[\sigma(v) - \frac{\hat{\sigma}_m v_0}{v} \right] \frac{dE}{E} \quad (\text{A.30})$$

Este fator é função da variação da temperatura T e da secção de choque no intervalo μkT a ∞ , isto é, na região epitérmica. Este fator encontra-se tabelado na literatura para a maioria dos materiais e várias temperaturas^[28]. Para o caso da determinação da secção de choque térmica da reação $^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242g}\text{Am}$ do presente trabalho, os fatores g e s foram calculados, como indica WESTCOTT^[54], tomando como valor da temperatura o calculado segundo a expressão 2.34 do item 2.4.2.

No caso em que os materiais são irradiados com e sem cobertura de cádmio, é conveniente utilizar um o fator identificado por s' , que é função da variação da temperatura T e da secção de choque no intervalo μkT a E_{Cd} .

Portanto a secção de choque efetiva $\hat{\sigma}$ é obtida por meio da secção de choque σ_0 pela relação:

$$\hat{\sigma} = \sigma_0 (g + r s) \quad (\text{A.31})$$

De modo que a taxa de reação é dada por:

$$R = N_0 n v_0 \sigma_0 (g + r s) \quad (\text{A.32})$$

A partir da equação A.32 coloca-se nv_0 em evidência e obtém-se o fluxo convencional (térmico + epitérmico):

$$\phi_0 = \frac{R}{N_0 \sigma_0 (g + r s)} \quad (\text{A.33})$$

APÊNDICE B

FATOR DE CORREÇÃO PARA O CÁLCULO DO FLUXO DEVIDO À PERTURBAÇÃO PELA PRESENÇA DA FOLHA

Qualquer instrumento de medida ao ser introduzido num meio, produz neste perturbações que poderão afetar, em maior ou menor medida, a grandeza física que se deseja medir.

Uma das vantagens dos detectores de ativação está no fato de serem de pequenas dimensões, fazendo com que sua presença no meio acarrete apenas pequenas perturbações no fluxo. Embora sendo pequenas, essas perturbações devem ser consideradas de modo a se obter uma melhor exatidão no cálculo do fluxo.

A perturbação no fluxo ocasionada pela presença da folha é na realidade o resultado de dois efeitos superpostos^[63]: *depressão de fluxo* e *auto-blindagem*.

- *Depressão de fluxo*: devido à presença da folha no meio, ocorre uma atenuação do fluxo, pois o volume da folha vai deslocar um volume igual de água, modificando assim o meio moderador dos nêutrons. Por outro lado, a presença da folha reduz o fluxo na sua vizinhança, uma vez que uma fração considerável de nêutrons é absorvida pela folha.

A esses dois efeitos costuma-se chamar de depressão de fluxo H.

- *auto-blindagem* ("self-shielding"): este efeito é ocasionado na própria folha, devido a sua espessura finita. É denominado sombra pois os átomos das camadas mais externas absorvem uma fração dos nêutrons incidentes, ficando as camadas mais internas expostas a um fluxo mais baixo, uma vez que parte já foi absorvida pelas camadas externas.

A figura B.1 esquematiza o comportamento do fluxo de nêutrons na presença da folha, onde:

- ϕ é o fluxo na ausência da folha (fluxo não perturbado),
- ϕ_s é o fluxo na superfície da folha,
- $\bar{\phi}$ é o fluxo médio e portanto a densidade de fluxo determinado experimentalmente pela ativação da folha.

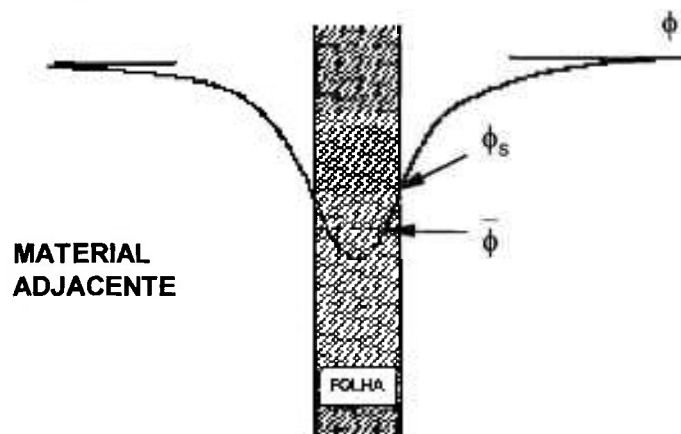


Figura B.1: Variação do fluxo devido a presença da folha^[34].

O fator H é dado pela relação:

$$\frac{\phi_s}{\phi} = H \quad (\text{B.1})$$

e o fator G é dado por:

$$\frac{\bar{\phi}}{\phi_s} = G \quad (\text{B.2})$$

Portanto,

$$\frac{\bar{\phi}}{\phi} = G H = F \quad (\text{B.3})$$

Assim, o fluxo procurado ϕ será obtido pelo fluxo determinado experimentalmente $\bar{\phi}$ por meio da relação B.3.

B.1 COEFICIENTE DE AUTO-BLINDAGEM G PARA NÊUTRONS TÉRMICOS

A correção G para fluxo isotrópico pode ser definida como a razão entre a probabilidade de absorção na folha em estudo e a probabilidade de absorção em uma folha idealmente fina e é dada por:

$$G = \frac{1 - 2 E_3(X)}{2 X} \quad (\text{B.4})$$

onde: $X = N_T \sigma_a t$ é a espessura da folha em unidades de caminho livre médio num meio absorvedor com secção de choque de absorção σ_a . Sendo que:

N_T = número de núcleos alvo/unidade de massa atômica,

t = espessura da folha [g/cm^3].

A fração de nêutrons absorvida na folha, numerador da expressão B.4, é simplesmente $(1 - e^{-X})$ no caso de feixe paralelo e monoenergético de nêutrons. Entretanto, no caso de feixe monoenergético isotrópico essa fração é dada por $[1 - 2 E_3(X)]$, onde $E_3(X)$ é obtida, segundo BAUMANN & STROUD^[63], a partir de expressões apropriadas de fluxo isotrópico e efetuando medidas sobre os ângulos de incidência dos nêutrons na folha.

No caso de folhas finas, $X \ll 1$, expressão B.4 pode ser aproximada por^[34]:

$$G = 1 - \frac{3X}{4} - \frac{X^2}{6} + \frac{X^3}{48} + \frac{X}{2} (\ln X + 0,577216) \quad (\text{B.5})$$

B.2 COEFICIENTE DE DEPRESSÃO DO FLUXO H

Se o raio da folha for muito maior que o caminho livre médio de transporte o fator H é dado pela expressão^[34]:

$$H = \frac{1}{1 + XG \left[\frac{3DL}{4\lambda_{tr}(D/2 + L)} - 1 \right]} \quad (\text{B.6})$$

Se o raio da folha for muito menor que o caminho livre médio de transporte, o fator H é dado pela expressão:

$$H = \frac{1}{1 + \frac{0,34 XGD}{\lambda_{tr}}} \quad (\text{B.7})$$

onde: D = diâmetro da folha,

L = comprimento de difusão térmica na amostra ($L = 2,64 + 0,0061 T$),

λ_{tr} = caminho livre médio de transporte.

B.3 COEFICIENTE DE AUTO-BLINDAGEM G PARA NÊUTRONS EPITÉRMICOS

Na região epitérmica a secção de choque de ativação possui duas componentes, a devida ao comportamento $1/v$ e aquela devida às ressonâncias. A auto-blindagem da parte $1/v$ é desprezível quando comparada com a auto-

blindagem térmica, mas em razão dos nêutrons ressonantes pode possuir valores que devem ser considerados por causa dos altos valores da secção de choque nas ressonâncias.

O comportamento é similar a aquele com nêutrons térmicos, a auto-blindagem depende do tipo de feixe de nêutrons (normal ou isotrópico), do espectro dos mesmos e da função resposta da secção de choque nessa faixa de energia. Na literatura^[34,36] são apresentadas as expressões convenientes para o cálculo de G em cada caso. De igual forma, são apresentadas tabelas para diferentes materiais (^{115}In , ^{197}Au , ^{59}Co , ^{186}W , ^{55}Mn e ^{63}Cu), onde podem ser obtidos os valores de G_{epi} , em função da espessura das folhas ou fios, os quais são o resultado de aproximações teóricas e experimentais^[34].

No presente trabalho, o cálculo de G_{epi} foi realizado interpolando os valores das mencionadas tabelas de acordo com a espessura da folha ou diâmetro do fio utilizado e os apresentados nas mesmas. No caso das ligas Au-Al e Co-Al, os diâmetros introduzidos nos cálculos foram o produto dos diâmetros reais multiplicados pelos teores de ligas correspondentes.

APÊNDICE C

METODOLOGIA DE MEDIDA POR COINCIDÊNCIAS $4\pi\beta\text{-}\gamma$

O método de coincidência é aplicável, principalmente a radionuclídeos que se desintegram pela emissão de duas ou mais radiações, isto é: $\alpha\text{-}\gamma$, $\beta\text{-}\gamma$, raio $X\text{-}\gamma$, emitidas simultaneamente. Este método baseia-se no uso de dois detectores, um para cada tipo de radiação e na determinação dos eventos coincidentes, como pode ser observado no esquema simplificado da figura C.1.

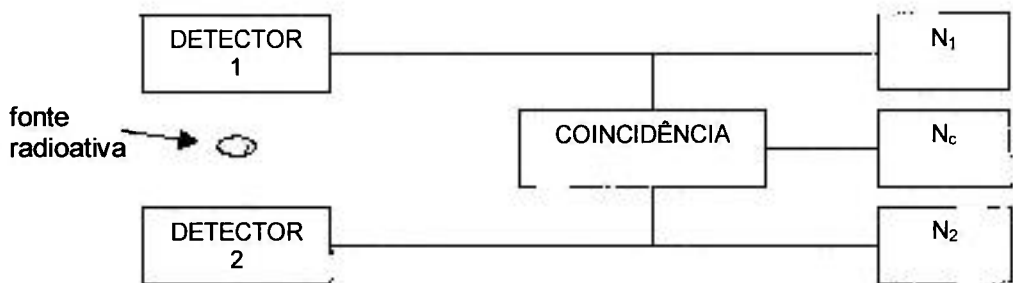


Figura C.1: diagrama simplificado do sistema de coincidências.

Considera-se um exemplo simples de um emissor genérico, no qual tem-se um nuclídeo de atividade A_0 , que decai pela emissão de uma única partícula beta seguida por transições gama (figura C.2):

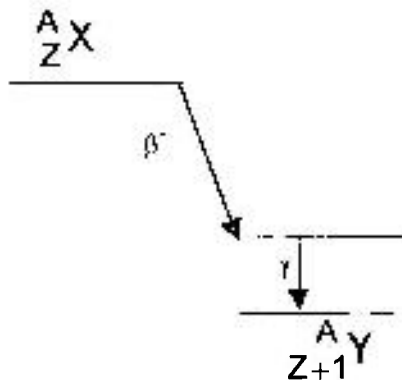


Figura C.2: Esquema de decaimento para um beta-emissor genérico.

Os pulsos dos detectores 1 e 2, correspondentes às radiações beta e gama, são registrados separadamente e o método de coincidência utiliza um terceiro canal de contagem, com um circuito eletrônico que só é ativado com os pulsos dos dois canais beta e do canal gama em coincidência no tempo. Desconsiderando as correções envolvidas, as taxas de contagens serão N_β e N_γ estão relacionadas à atividade (A_0) pelas eficiências de detecção ε_β e ε_γ :

$$N_\beta = A_0 \varepsilon_\beta \quad \text{C.1}$$

$$N_\gamma = A_0 \varepsilon_\gamma \quad \text{C.2}$$

Supondo unicamente que as probabilidades de detecção das duas radiações são diferentes, a taxa de contagem de coincidências pode ser expressa por:

$$N_c = A_0 \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma \quad \text{C.3}$$

Multiplicando-se as equações C.1 e C.2 e dividindo pela C.3 tem-se:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = A_0 \quad \text{C.4}$$

Tem-se assim, a taxa de desintegração ou atividade (A_0), em função apenas das contagens observadas. Estas equações devem ser modificadas, uma vez que:

- a) pelo menos um dos detectores é sensível a mais de um tipo de radiação;
- b) os esquemas de decaimento são normalmente mais complexos que o considerado no exemplo;
- c) são utilizadas fontes não puntiformes;
- d) os tempos de resposta são diferentes para cada detector.

Em um caso real onde o radionuclídeo decai por beta⁻-gama e apresenta um esquema de desintegração complexo, com n ramos beta, as expressões C.1, C.2 e C.3 podem ser re-escritas como:

$$N_{\beta} = A_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \right] \quad C.5$$

$$N_{\gamma} = A_0 \sum_{r=1}^n a_r \varepsilon_{\gamma r} \quad C.6$$

$$N_c = A_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} \varepsilon_{\gamma r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \varepsilon_{cr} \right] \quad C.7$$

onde: $\varepsilon_{\gamma r}^i = \frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r}$ = eficiência para o gama correspondente ao r-ésimo grupo beta;

a_r = abundância do r-ésimo grupo beta;

$\varepsilon_{\beta r}$ = eficiência para o r-ésimo grupo beta;

α_r = coeficiente de conversão interna total para o r-ésimo grupo beta;

ε_{cr} = eficiência de contagens para coincidências gama-gama;

ε_{ec} = eficiência do detector beta para elétrons de conversão;

$\varepsilon_{\beta\gamma}$ = eficiência do detector beta para radiação gama.

Multiplicando-se as expressões C.5 e C.6 e dividindo pela C.7, obtemos:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = A_0 \frac{\sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \right] \left[\sum_{r=1}^n a_r \varepsilon_{\gamma r} \right]}{\sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} \varepsilon_{\gamma r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \varepsilon_{cr} \right]} \quad C.8$$

Da análise da expressão C.8 conclui-se que para a determinação de A_0 é necessário o conhecimento dos parâmetros do esquema de desintegração e as probabilidades de detecção, isto é, dos coeficientes de conversão interna e das intensidades gama por emissão dos núclídeos envolvidos. Para contornar este problema e manter a principal característica do método, foi utilizado o método desenvolvido por BAERG^[48] e CAMPION^[82] chamado "Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência", que permite obter a atividade, independentemente do conhecimento das eficiências de detecção e dos parâmetros do esquema de desintegração.

Segundo esta metodologia, a determinação de A_0 só é possível com o estabelecimento de uma relação funcional entre N_β e o parâmetro de eficiência N_c/N_γ tal que $N_\beta \rightarrow A_0$ quando $N_c/N_\gamma \rightarrow 1$.

Esta condição é válida quando $\varepsilon_{\beta r}$ (eficiência dos vários ramos beta) pode ser representada como uma função de uma única eficiência $\varepsilon_{\beta s}$, onde:

$\varepsilon_{\beta r} = f_r(\varepsilon_{\beta s})$ e que esta relação se conserve para o caso em que a eficiência possua um valor tal que:

$f_r \rightarrow 1$ quando $\varepsilon_{\beta s} \rightarrow 1$, condição válida quando os valores de ε_{ec} , $\varepsilon_{\beta\gamma}$ e ε_γ são constantes ou nulos.

Das expressões C.6 e C.7 obtém-se:

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = \frac{\sum_{r=1}^n a_r \varepsilon'_{\gamma r} [\varepsilon_{\beta r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \varepsilon_{cr} / \varepsilon'_{\gamma r}]}{\sum_{r=1}^n a_r \varepsilon'_{\gamma r}} \quad \text{C.9}$$

fazendo $\frac{a_r \varepsilon'_{\gamma r}}{\sum_{r=1}^n a_r \varepsilon'_{\gamma r}} = k_r$, constante para uma dada eficiência beta (r-ésimo ramo

beta) e $\sum k_r = 1$, tem-se:

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = 1 - \sum k'_r [1 - f_r(\varepsilon_{\beta s})] \quad \text{C.10}$$

onde: $k'_r = k_r (1 - \varepsilon_{cr} / \varepsilon'_{\gamma r})$ e $N_c/N_\gamma \rightarrow 1$ quando $\varepsilon_{\beta s} \rightarrow 1$.

Conclui-se que N_β é uma função do parâmetro da eficiência N_c/N_γ , deste modo:

$$N_\beta = A_0 F \left(\frac{N_c}{N_\gamma} \right) \quad \text{C.11}$$

onde $F \rightarrow 1$ quando $N_c/N_\gamma \rightarrow 1$.

A expressão C.11 é conhecida como fórmula de coincidência generalizada^[83]. Para um intervalo limitado de variação do parâmetro de eficiência e para espectros semelhantes dos grupos beta, esta função é linear.

A fórmula de coincidência generalizada pode ser escrita de forma mais conveniente para sua solução gráfica ou analítica^[84], utilizando a razão $N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$ como variável dependente e $[1 - (N_c/N_{\gamma})]/(N_c/N_{\gamma})$, denominado ineficiência, como variável independente. Obtém-se assim, uma função G, cuja variação é mais lenta que a da função F, referida na expressão C.11.

A fórmula geral de coincidência pode ser reescrita como:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = A_0 G \left[\frac{1 - (N_c / N_{\gamma})}{(N_c / N_{\gamma})} \right] \quad \text{C.12}$$

onde a função $G \rightarrow 1$ e $N_{\beta}N_{\gamma}/N_c \rightarrow A_0$ quando $\left[\frac{1 - (N_c / N_{\gamma})}{(N_c / N_{\gamma})} \right] \rightarrow 0$.

A variação do parâmetro de eficiência pode ser obtida pelo uso de absorvedores externos, auto-absorção na fonte, discriminação eletrônica ou qualquer outro método que possibilite a variação da eficiência beta. No presente trabalho, foi utilizada a primeira das alternativas, escolhendo absorvedores externos de alumínio, com espessuras de 6, 9, 12, 15 e 20 mg.cm⁻², aproximadamente.

Determina-se assim a atividade A_0 a partir do gráfico de $N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$ em função da ineficiência beta, e $[1 - (N_c/N_{\gamma})]/(N_c/N_{\gamma})$, obtendo-se a função G que relaciona $N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$ com A_0 .

No caso de núclídeos que decaem apenas por emissão beta (beta puros) ou para os casos de emissão beta-gama não coincidentes, isto é, quando o estado excitado do núcleo possui uma meia-vida longa, é utilizada uma técnica denominada Método do Traçador^[49,50,85].

Este método consiste na medida, pelo método de coincidência, de uma mistura de um emissor beta puro e um emissor beta-gama, quimicamente compatíveis e com energias beta próximas, onde o emissor beta-gama atua como traçador^[50]. A medida é feita pelo método de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ combinado com a técnica de extrapolação linear da variação da eficiência. O método do traçador se baseia no fato de que, quando um emissor beta e um outro beta-gama (o traçador) são combinados em uma fonte, há uma única função que relaciona as eficiências de detecção para as duas espécies radioativas.

Esta função é tradicionalmente considerada como uma função linear, que em modo geral, pode expressa como:

$$\varepsilon_{\beta_x} = f(\varepsilon_{\beta_t}) \quad \text{C.13}$$

onde: ε_{β_t} e ε_{β_x} = eficiências de detecção do traçador e do radionuclídeo de interesse, respectivamente.

Assim, pela variação da eficiência de detecção do traçador, temos que: $\varepsilon_{\beta_x} \rightarrow 1$ e $f(\varepsilon_{\beta_t}) \rightarrow 1$ no limite, quando $\varepsilon_{\beta_t} \rightarrow 1$, o que significa que as duas eficiências de detecção se aproximam da unidade simultaneamente, para as duas espécies.

Desta maneira, o método do traçador pode ser expresso pela relação:

$$A_x^0 f(\varepsilon_{\beta_t}) = [N_\beta - N_t^0 \varepsilon_{\beta_t}] \quad \text{C.14}$$

Considerando que, quando $\varepsilon_{\beta_t} \rightarrow 1$, teremos,

$$A_x^0 = N_\beta - N_x^0 \quad \text{C.15}$$

De acordo com as considerações do método de coincidência, as contagens beta da fonte são determinadas por:

$$N_{\beta} = N_{\beta_x} \varepsilon_{\beta_x} + N_{\beta_t} \varepsilon_{\beta_t} + N_{\beta_t} (1 - \varepsilon_{\beta_t}) \left(\frac{\alpha}{1 + \alpha} \right) \quad \text{C.16}$$

Como a eficiência do traçador é determinada pelo parâmetro de eficiência, rearranjando a expressão C.16, chega-se à expressão que determina a atividade do beta emissor, em função da eficiência e atividade do traçador:

$$A_x^0 = \frac{N_{\beta} - N_{\beta_t} \varepsilon_{\beta_t}}{\varepsilon_{\beta_t}} = \frac{N_{\beta_x} \varepsilon_{\beta_x} + N_{\beta_t} (1 - \varepsilon_{\beta_t}) \left(\frac{\alpha}{1 + \alpha} \right)}{\varepsilon_{\beta_t}} \quad \text{C.17}$$

onde: α = coeficiente de conversão interna do radionuclídeo de interesse.

As correções para tempo morto e resolução foram obtidas a partir das relações dadas por COX and ISHAM^[86].

Maiores detalhes dos fatores de correção aplicados para obtenção da atividade das fontes como tempo morto, tempo de resolução e coincidências espúrias, encontram-se na literatura^[87].

Algumas vezes, a mencionada função G ainda possui uma grande inclinação. Uma maneira de obter uma curva com menor inclinação é realizar o quociente tanto da ineficiência do traçador como da atividade do traçado por um fator identificado como r que obedece à relação^[76]:

$$r = \frac{\varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta_x}} \quad \text{C.18}$$

onde: r é o fator de correção da eficiência de detecção beta do traçado que considera a diferença de energia de ambos.

APÊNDICE D

METODOLOGIA E TRATAMENTO DE VARIÁVEIS UTILIZADAS PARA O CÁLCULO DA EFICIÊNCIA DE DETECÇÃO OU ATIVIDADE DAS AMOSTRAS

D.1 AREA SOB O PICO DE ABSORÇÃO TOTAL

A metodologia do cálculo da área do o pico de absorção total utilizado no trabalho foi o de integração numérica, descrito a seguir, e ilustrado pela figura D.1.

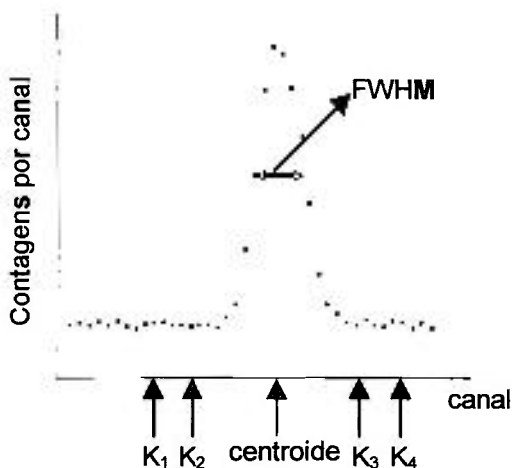


Figura D.1: Esquema dos parâmetros utilizados no método de integração da área sob o pico de absorção total.

No programa UNITCOV^[66], o centroide é identificado por meio da calibração de canais em função da energia. Os parâmetros dessa calibração são introduzidos no arquivo de entrada de dados, e uma vez fixada a energia a ser considerada, é localizado o centroide.

Com o dado da distância do centroide ao início das contagens do pico, X – em unidades de FWHM, largura a meia altura –, também é introduzido como dado no arquivo de entrada, é possível identificar:

K_p = canal da centroide;

K_1 = início da contagem de fundo = $K_p - (Y \text{ FWHM})$;

K_2 = início da contagem do pico de absorção total = $K_p - (X \text{ FWHM})$;

K_3 = fim da contagem do pico de absorção total = $K_p + (X \text{ FWHM})$;

K_4 = fim da contagem de fundo = $K_p + (Y \text{ FWHM})$;

onde: X foi escolhido como 1,5 e

$$Y = X + 1$$

A área sob o pico de absorção total, S, foi calculada segundo a expressão:

$$S = \sum_{k_2+1}^{k_3-1} C_i - (S_B \cdot F_K) \quad \text{D.1}$$

onde: C_i = contagens do canal i;

S_B = área sob o espectro de contagens de fundo, dada pela fórmula D.2;

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

A área sob o espectro das contagens de fundo, S_B , é dado por^[88]:

$$S_B = \sum_{k_1}^{k_2} C_i + \sum_{k_3}^{k_4} C_i \quad \text{D.2}$$

D.2 CORREÇÕES APLICADAS NOS CÁLCULOS DE ATIVIDADE

Os fatores de correção considerados foram os denominados: geométrico, tempo morto, de atenuação, de absorção na própria fonte, assim como o devido ao decaimento das amostras.

D.2.1 DECAIMENTO

A atividade A de uma fonte radioativa num determinado instante, é função da atividade inicial, A_0 , do tempo t transcorrido entre a sua calibração ou produção e o instante de medida, do tempo de medida e da meia-vida desse radionuclídeo. Antes de utilizar os dados de atividade medidos no detector, tanto para o caso da curva de calibração como nos cálculos na determinação do fluxo ou secção de choque, é preciso realizar determinadas cálculos que consistem na:

1. correção da atividade da amostra pelo tempo de espera desde a calibração da fonte ou desde o final da irradiação, segundo o caso, até sua medida, e
2. correção da atividade medida no caso das irradiações intermitentes

A primeira destas correções é realizada através de uma expressão do tipo:

$$A_y = A e^{\lambda t_e} \frac{(1 - e^{-\lambda t_m})}{\lambda t_m} \quad \text{D.3}$$

onde: $A_y = A_0$ no caso das fontes padrão, A_2 ou A_1 segundo os casos analisados no item 2.3;

A = atividade medida;

λ = constante de decaimento = $\ln 2 / T_{1/2}$, com $T_{1/2}$ a meia-vida;

t_e = tempo transcorrido desde a calibração da fonte padrão ou desde o final da irradiação até o início da medida;

t_m = tempo de medida e

$\frac{\lambda t_m}{(1 - e^{-\lambda t_m})}$ leva em conta o decaimento da atividade durante o tempo de medida.

Existem casos em que as irradiações são efetuadas em dois ou mais períodos. Nestes casos é preciso realizar correções devido ao decaimento dos radionuclídeos envolvidos nas mesmas.

No caso particular das amostras de ^{241}Am irradiadas com cádmio e os respectivos monitores de fluxo, foi preciso aplicar esta correção, dadas as características das irradiações, como foi explicitado no item 3.2.

A figura D.2 esquematiza a atividade de um radionuclídeo genérico.

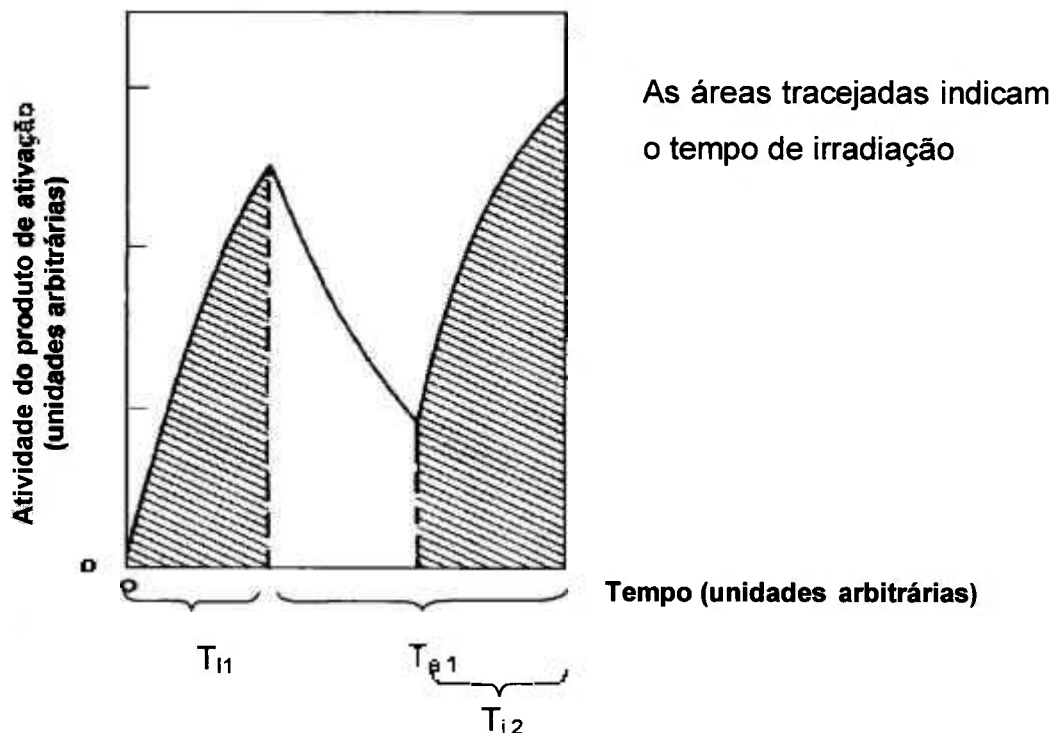


Figura D.2: Variação da atividade de uma amostra em uma irradiação descontínua de dois ciclos.

De uma maneira simplificada, podemos supor que a atividade final está composta pela soma das atividades referentes aos dois períodos de irradiação. Assim:

$$A = A_1 + A_2 \quad \text{D.4}$$

Chamando ao tempo transcorrido desde o final da primeira irradiação até o final da Segunda t_{e1} , e aos tempos de irradiação t_{i1} e t_{i2} , respectivamente, as atividades resultantes podem adotar as seguintes expressões:

$$A_1 = N_0 \sigma \phi (1 - e^{-\lambda t_{i1}}) e^{-\lambda t_{e2}} \quad D.5$$

$$A_2 = N_0 \sigma \phi (1 - e^{-\lambda t_{i2}}) \quad D.6$$

Somando ambas expressões e rearranjando,

$$A = N_0 \sigma \phi (1 - e^{-\lambda(t_{i1} + t_{e1})} + e^{-\lambda t_{e1}} - e^{-\lambda t_{i2}}) \quad D.7$$

Nesta expressão não é considerado o decaimento da atividade consequência do segundo período, correção já mencionada na expressão D.3. Para fins práticos, todas as atividades foram referidas ao final da irradiação.

D.2.2 FATOR GEOMÉTRICO

A eficiência do pico de absorção total num detector de HPGe para fontes puntiformes é função da energia da transição gama e da distância fonte-detector, d , proporcional a $(d + d')^{-2}$, para d muito maior que o diâmetro da fonte ou detector. Nessa expressão, d' é a distância de penetração efetiva no volume sensível do detector, que depende da energia do fóton. Desta maneira, a eficiência do pico de absorção total $\varepsilon(E_\gamma, d)$ deve ser expressa de acordo com a expressão:

$$\varepsilon(E_\lambda, d) = \frac{\varepsilon_0(E_\lambda)}{[d + d'(E_\lambda)]^2} \quad D.8$$

onde: ε_0 = eficiência do fóton de energia E_γ , considerada como a eficiência intrínseca do pico de absorção total.

Para determinar a distância fonte-superfície do detector, d , foram consideradas as características geométricas do suporte das amostras, figura 3.6 além das dimensões das amostras, figuras 3.3 e 3.4.

O valor d' foi determinado teoricamente, considerando o coeficiente de absorção do detector, $\mu(E)$, e a profundidade sensível do detector de HPGe, $h = 51,2$ mm, de acordo com a expressão:

$$d' = \frac{1}{\mu} \left(1 + \frac{\mu h}{1 - e^{-\mu h}} \right) \quad \text{D.9}$$

O fator geométrico determinado pela expressão:

$$f_{\text{geo}} = \frac{(d_{\text{amostra}} + d')}{(d_{\text{IAEA}} + d')} \quad \text{D.10}$$

foi considerado igual a 1 dado que as distâncias d_{amostra} , d_{IAEA} são as mesmas, de acordo com as dimensões dos suportes de amostras e espessuras destas, figuras 3.3, 3.4 e 3.6, dentro da incerteza de reprodutibilidade, considerada em $\pm 0,3$ mm

A correção para o tamanho finito das amostras foi considerada desprezível.

D.2.3 TEMPO MORTO

As perdas de contagens devidas aos efeitos de tempo morto e empilhamento de pulsos foram corrigidas através do método do pulsador. Para isso, foram introduzidos ao pré-amplificador, pulsos eletrônicos por meio de um pulsador de precisão, (figura 3.5), os quais foram recolhidos no amplificador, juntamente com os pulsos provenientes do detector. A localização do pico do pulsador no espectro, figuras 3.8 e 3.9 foi selecionada de modo a não interferir com nenhum outro pico existente no espectro. Pelo número de contagens do pico do pulsador, pode-se calcular esta correção, pela relação:

$$f_{\tau} = \frac{S_{p \text{ BG}}}{S_{p \text{ fonte}}} \quad \text{D.11}$$

onde: $S_{p \text{ BG}}$ = área do pico do pulsador no espectro da contagem de fundo natural;

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

APÊNDICE E

CÁLCULO DAS SECÇÕES DE CHOQUE DIFERENCIAIS DO ^{113}Cd E DO ^{241}Am

Na figura E.1 apresenta-se o diagrama de blocos do programa elaborado para calcular as secções de choque diferenciais dos radionuclídeos ^{113}Cd e ^{241}Am .

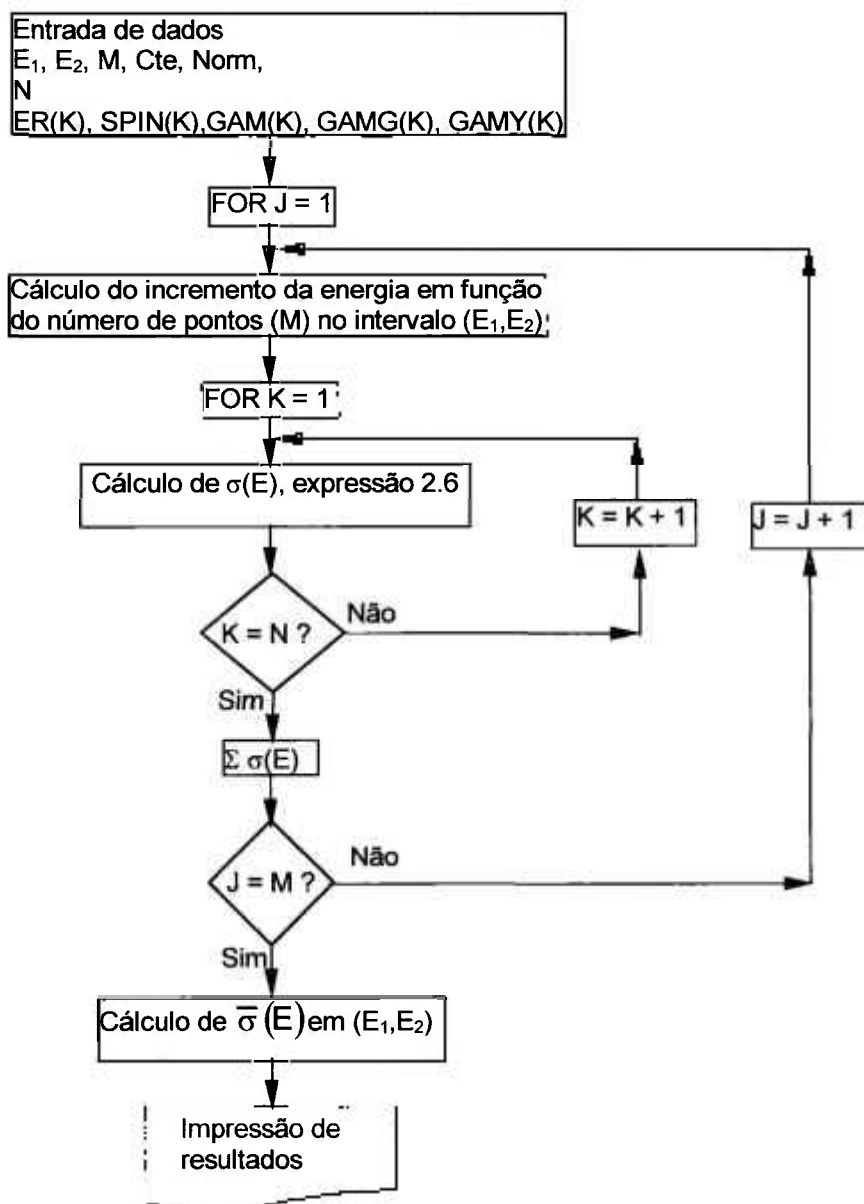


Figura E.1 : Diagrama de blocos do programa BRWIGME.

Como pode ser observado na literatura^[4], as secções de choque diferenciais apresentam-se como os valores médios para intervalos amplos de energia. Dadas as características da função resposta da secção de choque de captura do ^{241}Am , possuir duas ressonâncias próximas ao corte de Cd (0,308 e 0,573 eV), é que foi preciso obter as secções de choque de captura diferenciais do ^{241}Am e do ^{113}Cd , para intervalos de energia pequenos, na região das duas ressonâncias mencionadas. Estes resultados foram utilizados para determinar, através de uma simulação pelo método de Monte Carlo (apêndice F), o fator de transmissão do cádmio, com um melhor detalhe nessa região de interesse. Através dos valores de nêutrons transmitidos, foi possível calcular a função resposta do ^{241}Am no espectro real da experiência e comparar a mesma com o caso de um espectro ideal, item 4.3.3.

O programa BRWIGME foi elaborado para calcular as secções de choque diferenciais, $\sigma(E)$, havendo escolhido 48 intervalos de energia de nêutrons compreendidos no intervalo 0,2 a 0,7 eV.

Os dados de entrada foram:

- energia inicial e final do intervalo considerado, E_1 e E_2 ;
- número de subintervalos considerados, M. Foram escolhidos 1000 pontos para determinar a secção de choque diferencial média para cada um desses 48 intervalos de energia escolhidos;
- constantes de normalização que foram calculadas em função do spin dos níveis de excitação dos núcleos compostos considerados^[4,89], CTE, NORM;
- número de ressonâncias consideradas para o cálculo, N. No caso do ^{113}Cd , foram utilizadas as três primeiras ressonâncias^[4,5], entanto que para o ^{241}Am , foram consideradas as 83 primeiras, que incluem as 5 negativas^[21];
- Energia da ressonância $ER(K)$, spin $SPIN(K)$, larguras para os canais de nêutrons, gama e total, $GAM(K)$, $GAMG(K)$ e $GAMT(K)$ respectivamente.

Uma vez lidos os dados de entrada, o programa calcula o incremento de energia, ΔE , em função do número de pontos M, entre os limites de energia E_1 e E_2 . Uma vez identificada a primeira energia de interesse, calculada $\sigma(E)_N$

(expressão 2.5), para cada uma das N ressonâncias consideradas. Soma os N valores de $\sigma(E)_N$ obtendo a secção de choque diferencial, $\sigma(E)$, para essa energia de nêutron, o que equivale à expressão 2.6.

Este procedimento foi repetido M vezes, para cada $E+\Delta E$ até atingir a energia final do intervalo. Calcula a secção de choque diferencial média do intervalo (E_1, E_2) considerado, obedecendo à expressão:

$$\sigma(E)_{E_1, E_2} = \frac{\sum_{M=1}^M \sigma(E)_M}{M} = \frac{\sum_{M=1}^M \left(\sum_{N=1}^N \sigma(E)_N \right)}{M} \quad (E.1)$$

permitindo comparar este resultado com o fornecido na literatura.

O programa BRWIGME, elaborado na linguagem BASIC é o apresentado a seguir:

```

REM PROGRAMA PARA CALCULO DAS SECCOES DE CHOQUE
REM SECCAO DE CHOQUE DE CAPTURA MEDIA NUM INTERVALO
REM PELA APLICACAO DA FORMULA DE BREIT-WIGNER
REM PARA Cd, COM INTERVALOS DIVIDIDOS NUM NUMERO (O) DE
SUBINTERVALOS
REM Com entrada de energias e RESSONANCIAS
REM
REM 02/06/99 Nora
REM
REM ER = ENERGIA DA RESSONANCIA (eV)
REM E = ENERGIA TERMICA (0.0253eV)
REM GAMN = LARGURA PARA SCATTERING
REM GAMG = LARGURA PARA ALSORCAO
REM GAMT = LARGURA TOTAL
REM SPINJ = J
REM AMBC= LAMBDA CORTADO
REM AG= FATOR g
REM N = NUMERO DE RESSONANCIAS
REM M = NUMERO DE PONTOS NO INTERVALO
REM RES ENERGIA DO PONTO A SER CALCULADO
REM
REM
REM
CLEAR
CLS
DIM ER(100), SPINJ(100), GAMN(100), GAMG(100), GAMT(100)
REM
FD$ = "C:\LMN\BASIC\DATA\BRWIGME.DAT"
OUT$ = "C:\LMN\BASIC\DATA\BRWIGME.OUT"
REM

```

```

OPEN "I", #5, FD$
OPEN "O", #6, OUT$
INPUT #5, E1, E2, M, O, CTE, NORM
INPUT #5, N
  FOR K = 1 TO N
    INPUT #5, ER(K), SPINJ(K), GAMN(K), GAMG(K), GAMT(K)
  NEXT K
REM
PRINT #6, "SECCAO DE CHOQUE DE CAPTURA MEDIA"
PRINT #6, "NUMERO DE SUBINTERVALOS = "; O
PRINT
SIGMAT = 0
M1 = M - 1
FOR J = 1 TO M
  SIGMAS = 0
  SIGT = 0
  ENE = E1 + (J - 1) * (E2 - E1) / M1
  PRINT #6, USING "ENERGIA..=#.#####^"; ENE
  FOR H = 1 TO O
    SIGS = 0
    ENES = ENE + ((H - 1) * (E2 - E1) / (O * M))
    IF ENES > E2 GOTO 200
  REM   PRINT #6, USING "ENERGIA SUB ..=#.#####^"; ENES
  FOR K = 1 TO N
    REM   PRINT #6, USING "ENERGIA..=#.#####^"; ER(K)
    REM   SPJ = SPINJ(K)
    GN = GAMN(K)
    GG = GAMG(K)
    GT = GAMT(K)
  REM   AG = (2 * SPJ + 1) / (2 * (2 * AI + 1))
    DENOM = ((ENES - ER(K)) ^ 2) + ((GT / 2) ^ 2)
    SIG = (CTE * GN * GG) / ((ENES) ^ (.5) * DENOM)
    IF (ER(K) < 0) THEN SIG = -SIG * NORM
    SIGS = SIGS + SIG
  REM   PRINT #6, USING "RESSONANCIA (eV).....=###.###"; ENERR
  REM   PRINT #6, USING "SECCAO DE CHOQUE(barns).....=###.#####^"; SIGMA
  PRINT
  NEXT K
  REM   PRINT #6, USING "SEC CHO SUB..=#.#####^"; SIGS
  REM
  IF H = 1 AND H = O THEN SIGMAR = SIGS * .5
  SIGR = SIGS
  SIGT = SIGT + SIGR
  NEXT H
  REM   PRINT #6, USING "SEC CHO SUB SOMA..=#.#####^"; SIGT
  SIGMAS = SIGT / (O - 1)
  PRINT #6, USING "SECCAO DE CHOQUE ...=#.#####^"; SIGMAS
200 IF J = 1 THEN SIGMAR = SIGMAS * .5
  IF J = M THEN SIGMAR = SIGS * .5
  SIGMAR = SIGMAS
  SIGMAT = SIGMAT + SIGMAR
  NEXT J
  SIGMAM = SIGMAT / M1
  PRINT #6, USING "SECCAO DE CHOQUE MEDIA NO INTERVALO..=#.#####^";
SIGMAM
CLOSE #5
CLOSE #6
STOP
END

```

APÊNDICE F

CÁLCULO DE TRANSMISSÃO DE NÊUTRONS NO CÁDMIO POR MONTE CARLO

A técnica de Monte Carlo consiste no seguimento de cada uma, entre um grande número de partículas desde a fonte, através da sua “história” até sua “morte” numa das categorias pré-estabelecidas, utilizando as probabilidades dos eventos elementares que em cada estágio determinam o problema.

Em um problema particular, uma partícula está caracterizada por um conjunto de parâmetros que determinam o comportamento em todas as situações que possa encontrar durante sua existência. Estes sempre incluem a posição, coordenadas de direção e na maioria dos casos, a energia.

No caso particular deste trabalho, a simulação consistiu no seguimento de uma partícula ao contrário do problema real. Isto é, supôs-se que as partículas emergiam da fonte com distribuição isotrópica e após atingir alguma das paredes da caixa de cádmio segundo as probabilidades introduzidas (secções de choque dependentes da energia das partículas), eram absorvidas ou não. Foi calculada assim a transmissão das partículas através do cádmio, como uma função da energia das mesmas.

Na figura F.1 apresenta-se o diagrama de blocos do programa elaborado para calcular a transmissão de nêutrons no cádmio.

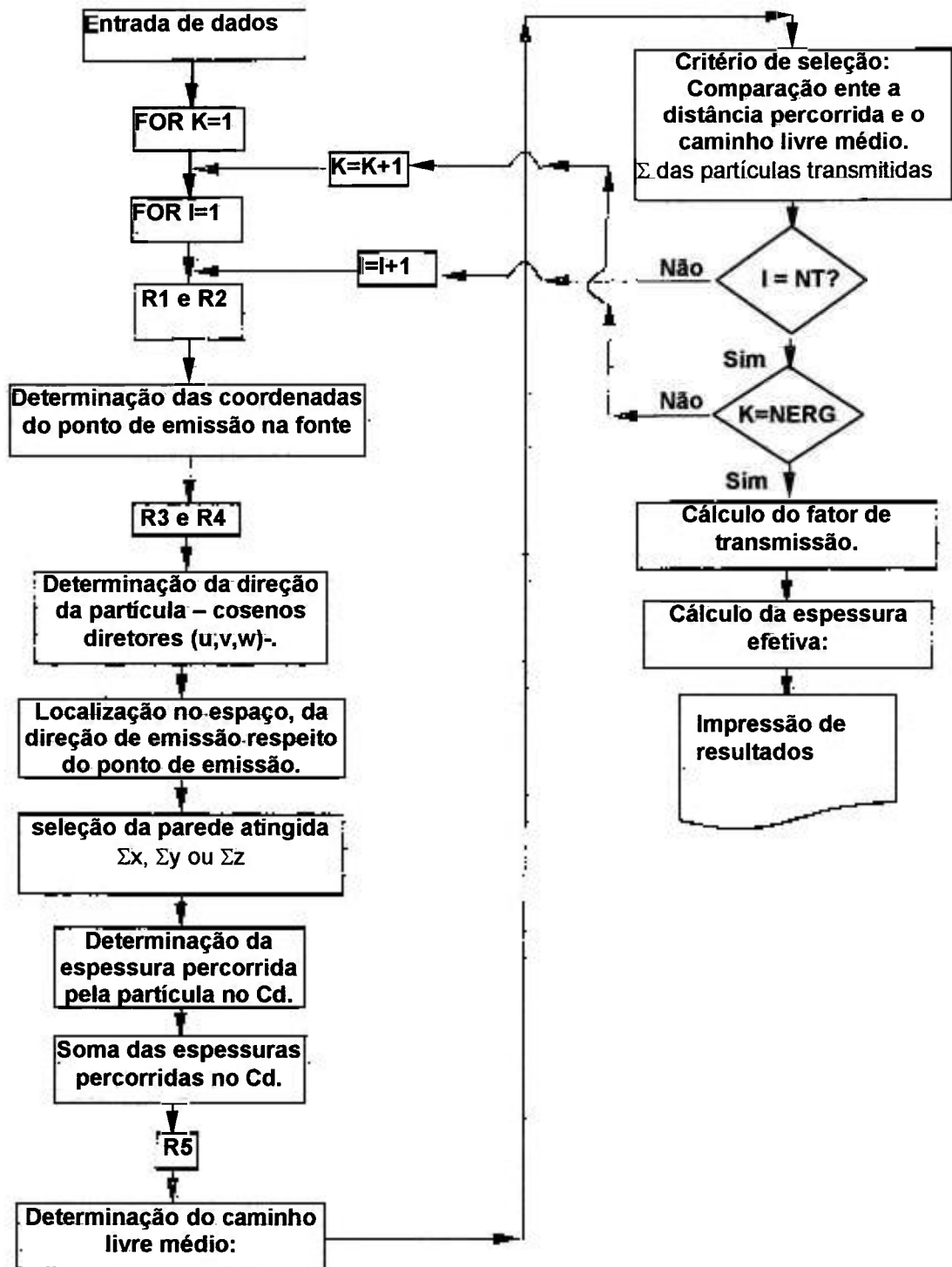


Figura F.1 : Diagrama de blocos do programa de cálculo do fator de transmissão de nêutrons pelo método de Monte Carlo.

Os parâmetros de entrada que foram utilizados no programa MCARLO são detalhados a seguir:

- fonte de Am, de raio $RF = 0,2$ cm, no centro da origem de coordenadas e no centro de uma caixa de cádmio, de espessura $TCD = 0,0529$ cm,
- dimensões da caixa de cádmio, paralelepípedo retangular, com laterais a uma distância DLX, DLY, DLZ do centro de coordenadas –em mm-;
- densidade atômica do cádmio, $PM = 0,04635$ átomos. cm^{-3} ;
- fluxo, $PHI = 2 \times 10^{12}$;
- número de histórias, $NT = 150000$;
- número de energias a serem consideradas, $NERG = 84$,
- energias, $E(K)$ e as correspondentes secções de choque, $\sigma(K)$.

Trinta e seis das 84 energias consideradas e suas correspondentes secções de choque, corresponderam à energia média dos intervalos que são comumente descritos na bibliografia^[4], (de 1.0×10^{-5} a 2.0×10^7), enquanto que as 48 restantes compreendidas no intervalo 0,2 a 0,7 eV, corresponderam às mesmas energias, e secções de choque, consideradas nos cálculos das secções de choque diferenciais descrito no apêndice E.

Na Figura F.2, apresenta-se um diagrama da caixa de cádmio, o alvo, assim como as coordenadas utilizadas para os cálculos.

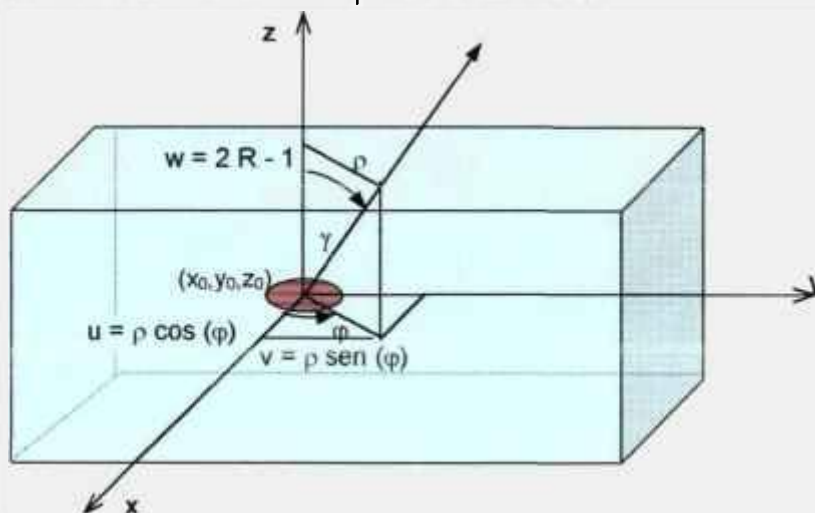


Figura F.2 : Esquema da caixa de cádmio e coordenadas utilizadas nos cálculos.

Uma vez introduzidos os parâmetros de entrada, descritos no diagrama de blocos, figura F.1, foram estabelecidas as coordenadas (x_0, y_0) , do ponto de emissão da partícula pela fonte. Isto foi efetuado gerando dois números aleatórios com os quais foram determinados a distância do ponto de emissão à origem de coordenadas e o ângulo desse vetor respeito do eixo x. Os detalhes das rotinas de cálculo podem ser achadas na literatura^[90].

De acordo com as características físicas dos alvos, item 2.1.3 , a espessura da mesma foi considerada nula, desta maneira, $z_0 = 0$.

Da mesma forma que na determinação do ponto de emissão da partícula, para obter sua direção, foram gerados outros dois números aleatórios, com os quais foram estabelecidos:

- o coseno diretor w , e através dele a projeção do vetor direção sobre o plano XY, e
- o ângulo dessa projeção respeito do eixo x, com a conseqüente determinação dos cosenos diretores u e v .

Esses cosenos diretores, determinaram as coordenadas (x_1, y_1, z_1) do ponto de impacto da partícula com a caixa de cádmio, desta maneira:

$$\begin{aligned} HW &= \frac{DLZ}{w} \\ x_1 &= x_0 + u HW \\ y_1 &= y_0 + v HW \end{aligned} \quad \text{F.1}$$

Foram obtidas a seguir, as distâncias do ponto de emissão da partícula às paredes da caixa de cádmio, mediante as expressões:

$$\begin{aligned}
 HX &= \left| \frac{DLX - x_0}{u} \right| \\
 HY &= \left| \frac{DLY - y_0}{v} \right| \\
 HZ &= \left| \frac{DLZ}{w} \right|
 \end{aligned}
 \tag{F.2}$$

O primeiro “critério de seleção” foi determinar qual das paredes da caixa de cádmio foi atingida pela partícula. Em função da parede atingida e da direção da partícula, foi estimada a espessura percorrida no cádmio para essa historia particular.

Em forma paralela a estes cálculos foi esquematizado um contador de partículas para cada parede, assim como das espessuras percorridas.

De acordo aos conceitos apresentados na literatura^[90] a atenuação de um feixe de partículas que atravessam uma espessura determinada, está relacionada ao número total de átomos do absorvedor e á secção de choque deste, pela expressão:

$$n = n_0 e^{-N\sigma l} \tag{F.3}$$

onde: n = número de partículas emergentes,
 n_0 = número de partículas incidentes,
 N = número de partículas alvo por cm^{-3} ,
 σ = secção de choque do alvo, e
 l = espessura do mesmo.

A probabilidade da partícula sofrer sua primeira colisão entre l e $l + dl$ é dada por:

$$p(l) dl = e^{-N\sigma l} N\sigma dl \tag{F.4}$$

Enquanto que a função distribuição de probabilidade dessa expressão está dada por:

$$P(l) = \int_0^l e^{-N\sigma l} N\sigma dl = 1 - e^{-N\sigma l} \quad \text{F.5}$$

A distância média percorrida pela partícula até a primeira colisão, λ , está associada à probabilidade para a primeira colisão pela expressão:

$$\lambda = \int_0^{\infty} l p(l) dl = \int_0^{\infty} e^{-N\sigma l} N\sigma l dl = \frac{1}{N\sigma} \quad \text{F.6}$$

chamado caminho livre médio do processo para essa energia.

A distância percorrida pela partícula pode ser determinada pelo método de Monte Carlo, supondo um médio infinito e homogêneo, através da seguinte dedução:

$$\begin{aligned} r = P(l) &= 1 - e^{-\frac{l}{\lambda}} \\ l &= -\lambda \ln(1-r) \end{aligned} \quad \text{F.7}$$

Desde que r seja uniformemente distribuída no intervalo $0 \leq r \leq 1$. Condição cumprida pelos números aleatórios. Pode-se então determinar l pela expressão:

$$l = -\lambda \ln r \quad \text{F.8}$$

No nosso caso particular, foi considerada unicamente a secção de choque de captura do Cd, desconsiderando as reações de espalhamento.

A absorção ou transmissão da partícula pelo cádmio foi determinada no segundo "critério de seleção", que foi efetuado pela comparação do caminho livre médio, λ , com a espessura percorrida no cádmio. Isto é, se $\lambda \leq$ espessura, a partícula foi absorvida, entanto que se $\lambda >$ espessura, a partícula foi transmitida.

Foram somadas as partículas transmitidas em cada processo e dita soma foi dividida pelo número total de histórias, obtendo dessa maneira o fator de transmissão.

As considerações estatísticas foram baseadas no teorema de Bernoulli^[90].

A seguir é apresentado o programa elaborado neste cálculo.

```
REM PROGRAMA PARA CALCULO TRANSMISSAO NO CADMIO
REM PELO METODO MONTE CARLO
REM
REM Com entrada de energias e seccoes de choque
REM
REM 27/04/99 Nora-Mauro
REM
REM RPF = RAI0 DO PONTO DA FONTE
REM RF = RAI0 DA FONTE
REM FI = ANGULO QUE DEFINE A POSICAO DO PONTO NA FONTE
REM X0,Y0,Z0 = COORDENADAS CILINDRICAS NA FONTE
REM R = NUMERO ALEATORIO
REM W = DIRECAO NO EIXO Z
REM RO = PROJECAO NO PLANO u v
REM FII = ANGULO DA DIRECAO NO PLANO u v
REM DLX = DISTANCIA A PAREDE DE CADMIO 1
REM DLY = DISTANCIA A PAREDE DE CADMIO 2
REM DLZ = DISTANCIA A PAREDE DE CADMIO 3
REM AX = NEUTRONS QUE ATINGEM A PAREDE X
REM AY = NEUTRONS QUE ATINGEM A PAREDE Y
REM AZ = NEUTRONS QUE ATINGEM A PAREDE Z
REM AN = NEUTRONS ABSORVIDOS
REM TCD = ESPESSURA CADMIO
REM SIGMA.= SECCAO DE CHOQUE
REM M = DENSIDADE ATOMICA
REM PHI = FLUXO
REM ESP1,2,3 = ESPESSURA EFETIVA DO Cd DE CADA PAREDE
REM TRAS = FATOR DE TRANSMISSAO
REM TRAS2= SOMA DE NEUTRONS TRANSMITIDOS
REM M1 = NUMERO DE ATOMOS DO ALVO
REM SIGMA1= SECCAO DE CHOQUE DO ALVO
REM TX = TAXA DE REACAO DO ALVO
REM CAM = CAMINHO LIVRE MEDIO
REM ENEIN = ENREGIA MEDIA DO INTERVALO DE ENERGIAS
REM SIGIN = SECCAO DE CHOQUE DIFERENCIAL
  CLEAR
  CLS
  DIM ENEIN(100), SIGIN(100)
REM
  FD$ = "C:\LMN\BASIC\DATA\MCNORA.DAT"
  OUT$ = "C:\LMN\BASIC\DATA\MCNORA.OUT"
REM
  OPEN "I", #5, FD$
```

```

OPEN "O", #6, OUT$
INPUT #5, RF, DLX, DLY, DLZ, TCD
INPUT #5, PM, PHI
INPUT #5, NT
INPUT #5, NERG
FOR K = 1 TO NERG
INPUT #5, ENEIN(K), SIGIN(K)
NEXT K
REM
PRINT #6,
PRINT #6, USING "RAIO DA FONTE (cm).....= ##.##"; RF
PRINT #6, USING "DISTANCIA DO CENTRO A PAREDE X (cm)..= ####.##"; DLX
PRINT #6, USING "DISTANCIA DO CENTRO A PAREDE Y (cm)..= ####.##"; DLY
PRINT #6, USING "DISTANCIA DO CENTRO A PAREDE Z (cm)..= ####.##"; DLZ
PRINT #6, USING "DENSIDADE ATOMICA (atomos/cm3).....= #.#####"; PM
PRINT #6,
FOR K = 1 TO NERG
ENERG = ENEIN(K)
SIGMA = SIGIN(K)
Z0 = 0
TRS = 0
ES = 0
AX = 0
AY = 0
AZ = 0
AN = 0
PI = 3.141592654#
FOR I = 1 TO NT
REM
REM  CALCULO DAS COORDENADAS DO PONTO DA FONTE
REM
RANDOMIZE TIMER
R = RND(1)
REM  PRINT #6, USING "R1 FONTE.....= #####.##"; R
RPF = RF * SQR(R)
R = RND(1)
REM  PRINT #6, USING "R2 FONTE.....= #####.##"; R
FI = PI * (2 * R - 1)
X0 = RPF * COS(FI)
Y0 = RPF * SIN(FI)
REM  LPRINT "XZ=", X0; "YZ=", Y0; "ZZ=", Z0
REM
REM  CALCULO DA DIRECAO DA PARTICULA
REM
200 R = RND(1)
REM
REM  PRINT #6, USING "R3 DIRECAO.....= #####.#####"; R
W = 2 * R - 1
RO = SQR(1 - W * W)
R = RND(1)
REM  PRINT #6, USING "R4 DIRECAO.....= #####.#####"; R
FII = PI * (2 * R - 1)
U = RO * COS(FII)
V = RO * SIN(FII)
SIG = SIGMA * PM
REM
HW = DLZ / W
X1 = X0 + U * HW
Y1 = Y0 + V * HW

```

```

HX = ABS((DLX - X0) / U)
HY = ABS((DLY - Y0) / V)
HZ = ABS(DLZ / W)
IF HX <= HY AND HX <= HZ THEN ESP = TCD / U: AX = AX + 1
IF HY <= HX AND HY <= HZ THEN ESP = TCD / V: AY = AY + 1
IF HZ <= HX AND HZ <= HY THEN ESP = TCD / W: AZ = AZ + 1
REM
ES = ES + ABS(ESP)
REM
R = RND(1)
IF R >= .999999 GOTO 200
CAM = -(1 / SIG) * LOG(R)
REM
IF CAM <= ABS(ESP) THEN AN = AN + 1
IF CAM > ABS(ESP) THEN TRS = TRS + 1
REM
NEXT I
TRAS2 = TRS / NT
TXR = M1 * SIGM1 * PHI * TRAS2
ESEF = ES / NT
REM
PRINT #6, "*****";
PRINT #6,
PRINT #6, USING "ENERGIA (eV)..... = #.#####^"; ENERG
PRINT #6, USING "SECCAO DE CHOQUE DO Cd (b)..... = ####.#"; SIGMA
PRINT #6,
PRINT #6, USING "NUMERO DE HISTORIAS..... = #####"; NT
PRINT #6, USING "NEUTRONS QUE ATINGEM A PAREDE X..... = #####"; AX
PRINT #6, USING "NEUTRONS QUE ATINGEM A PAREDE Y..... = #####"; AY
PRINT #6, USING "NEUTRONS QUE ATINGEM A PAREDE Z..... = #####"; AZ
PRINT #6, USING "CAMIHO LIVRE MEDIO (1/cm)..... = ####.#"; SIG
PRINT #6, USING "NEUTRONS ABSORVIDOS..... = #####"; AN
PRINT #6, USING "NEUTRONS TRASMITIDOS..... = #####"; TRS
PRINT #6, USING "FATOR DE TRANSMISSAO..... = #.#####"; TRAS2
PRINT #6,
CLOSE #5
CLOSE #6
STOP
END
LPRINT "RAIO DA FONTE.....="; RF
LPRINT "DISTANCIA DA FONTE A PAREDE 1.....="; DLX
LPRINT "DISTANCIA DETECTOR FONTE...2.....="; DLY
LPRINT "COMPRIMENTO DA FONTE.....3.....="; DLZ
LPRINT "SECCAO DE CHOQUE DO Cd.....="; SIGMA
LPRINT "DENSIDADE ATOMICA.....="; PM
LPRINT "NUMERO DE HISTORIAS.....="; NP
LPRINT "FATOR DE TRANSMISSAO.....="; TRAS2
LPRINT "TAXA DE REACAO.....="; TXR
LPRINT PIRNT; "ESP. EFETIVA..... = "; ESEF
NEXT IH
STOP
END

```

Tabela de símbolos

$\phi(E)$	taxa de fluência de nêutrons (nêutrons/cm ² .s.eV)
E	energia do nêutron
T_n	temperatura do nêutron
T	Temperatura do meio
T_0	temperatura de referência (293 Kelvins)
T_m	temperatura do moderador
k	constante de Boltzmann
u	letargia = $\ln(E_0/E)$
θ	fator de proporcionalidade relacionada à intensidade do fluxo
$\phi(u)$	densidade de fluxo epitérmico por unidade de letargia
α	caracteriza a inclinação na distribuição de nêutrons
A	número de massa
E_0	energia de excitação do nível fundamental
Γ_x	larguras parciais de decaimento
$\Delta t, \tau$	vida média do estado
\hbar	constante de Planck/ 2π
ΔE	largura do nível, normalmente representado por Γ
σ_{nx}	probabilidade de ocorrência do processo (n,x)
σ_c	probabilidade de formação do núcleo composto
Γ_x/Γ	probabilidade de decaimento para o canal de saída x
σ_{com}^ℓ	probabilidade do núcleo composto possuir ℓ como número quântico angular orbital
λ	comprimento de onda de Broglie (associada à velocidade do nêutron)
ℓ	número quântico do movimento angular orbital
$\sigma(E)$	probabilidade da ocorrência de uma determinada reação para a energia E
E_R	energia da ressonância
g	$\frac{2J+1}{2(2I+1)}$
J	spin do núcleo composto
I	spin do núcleo alvo
$\Gamma_n, \Gamma_\gamma,$ Γ	largura dos níveis, denominados também parâmetros de ressonância para os canais de saída de nêutrons, gama e total, respectivamente
E_1	radiação de dipolo elétrico
$\rho(J)$	densidade dos níveis com spin J
$\rho(0)$	densidade dos níveis com spin 0
σ	parâmetro que caracteriza a distribuição de spin
A	número de nucleons
U	energia de ligação efetiva
B_n	energia de ligação do último nêutron
$P(N)$	energia de emparelhamento dos nêutrons
$P(Z)$	energia de emparelhamento dos prótons
a	parâmetro de densidade de níveis
N_γ	multiplicidade gama
R	taxa de reações produzidas por um feixe colimado de nêutrons
N_0	número de átomos alvo, por unidade de volume

σ	secção de choque
R_{th}	taxa de reação para nêutrons térmicos
R^{epi}	taxa de reação para nêutrons térmicos
ϕ_{th}	fluxo térmico médio
σ_{th}	secção de choque térmica
ϕ_{epi}	fluxo epitérmico por unidade de letargia (fluxo epitérmico/ $\ln E$)
I_0	Integral de Ressonância
$\bar{\sigma}$	secção de choque média
$\bar{\sigma}_a$	secção de choque média de ativação
$\sigma_a(E_T)$	secção de choque média de ativação para a energia térmica E_T
σ_0	secção de choque térmica;
\bar{v}	velocidade média de nêutrons
v_T	velocidade de nêutrons à temperatura T
$g(T)$	corrige a secção de choque efetiva Maxwelliana para a influência da temperatura T
I'	Integral de Ressonância reduzida
$\Delta I'$	fração filtrada pelo cádmio
$\hat{\sigma}$	secção de choque efetiva Maxwelliana
r	fração de nêutrons epitérmicos
s	afastamento da secção de choque à lei $1/v$ na região epitérmica
A	atividade do elemento ativado durante a irradiação
N_0	número de átomos alvo
f_i	fator de correção que considera o tempo de irradiação
f_e	fator de correção que considera o tempo de espera
E_{Cd}	corte efetivo de cádmio
R_{Cd}	razão de cádmio
E_c	energia de corte do cádmio
f	fração de nêutrons epitérmicos na densidade total n
Δ	função de junção
s	fator de Westcott integrado entre μkT e E_{Cd}
s_0	$= s \left(\frac{T_0}{T} \right)^{1/2}$
k_s	relaciona a razão de cádmio com a fração de nêutrons intermediários
ϕ_0	fluxo térmico convencional
A_s	atividade saturada da folha irradiada sem a cobertura de cádmio
A_{Cd}	atividade saturada da folha irradiada com a cobertura de cádmio
F	fator de correção para perturbação da densidade de fluxo térmico causada pela presença da folha (apêndice B)
$\frac{R'}{R'-1}$	razão da densidade de nêutrons total e a de subcádmio (densidade de nêutrons compreendida até o corte em E_{Cd})
R'	razão de cádmio para um absorvedor ideal
s'	fator de Westcott integrado apenas entre μkT e E_{Cd} ,
g	corrige a secção de choque efetiva Maxwelliana para a influência da temperatura;
F_{Cd}	fator de correção para a razão de cádmio:
G_T	fator de correção para perturbação de fluxo em uma folha de espessura t

	devido aos nêutrons ressonantes
$f(\delta)$	fator que considera a transmissão através do cádmio dos nêutrons ressonantes
W	é função da integral de ressonância abaixo da energia de corte do cádmio
ξ	$=2/(A+2/3)$, com A= massa molecular da água
Σ_a	secção de choque macroscópica de absorção
Σ_s	secção de choque macroscópica de espalhamento
G_{epi}	fator de correção pela depressão da densidade de fluxo na folha e o de autoabsorção
N_0	número de átomos do núcleo alvo (estável)
N_1	número de átomos do núcleo produto
λ_1	constante de decaimento do núcleo produto
σ_0	secção de choque de absorção do núcleo alvo
N_2	número de átomos radioativos formados durante a irradiação dos átomos N_1
λ_2	constante de desintegração do radionuclídeo formado da reação dos átomos N_1
A_2	atividade do produto da irradiação dos átomos N_1
λ_1'	$=(\lambda_1 + \sigma_1 \phi)$
σ_{act}	secção de choque de ativação
$\varepsilon_\gamma(E)$	eficiência de detecção para a energia gama E
S	área sob o pico de absorção total para a energia gama considerada
A	atividade da fonte padrão com a correspondente correção por decaimento (expressão D.3)
I_γ	probabilidade de emissão gama por decaimento
t_m	tempo de medida
f_{geo}	fator geométrico
D_p	distância da superfície do detector à fonte padrão
D_{FD}	distância da superfície do detector à fonte de atividade desconhecida
f_t	fator de tempo morto
f_A	fator de atenuação (correção devido ao envoltório da fonte) $e^{\mu p x}$ para absorvedores externos à fonte
R_f	radio do fio
$\varepsilon_T(E)$	eficiência total para a energia E;
S_p	contagens líquidas do fotopico de energia E;
S_T	contagens líquidas do espectro total.
$\mu(E)$	coeficiente de atenuação, dependente da energia para o lucite
x	espessura em $g.cm^{-2}$ do disco de lucite
$q_{0,i}(\alpha)$	representa a Integral de Ressonância reduzida do monitor i para um espectro de nêutrons $1/E^{(1+\alpha)}$
$Q_{0,i}$	$= I_{0,i}/\sigma_{0,i}$
$A_{sp,i}$	atividade específica do monitor i
$\overline{E}_{r,i}$	energia efetiva da ressonância do monitor i
$F_{cd,i}$	fator de transmissão dos nêutrons epitérmicos no cádmio do monitor i
A_1	atividade do radionuclídeo alvo ao início da irradiação
A_2^0	atividade do radionuclídeo produto, no estado fundamental, no final da irradiação

λ_{2m}	constante de decaimento do radionuclídeo produto no estado metaestável
A_2	atividade do radionuclídeo produto no estado fundamental no instante do início da medida
t_i	tempo de irradiação
t_e	tempo de espera desde o final da irradiação até o início da medida
p	probabilidade da transição do estado metaestável para o fundamental
a	parâmetro que pode assumir os valores 1 ou 0, dependendo se o tipo de decaimento do estado metaestável contribui ou não medida da atividade
$A_{2\text{ c/Cd}}$	atividade do radionuclídeo produto no estado fundamental irradiado com cobertura de cádmio ao início da medida
$A_{1\text{ c/Cd}}$	atividade do radionuclídeo alvo irradiado com cobertura de cádmio
ϕ_{epi}	fluxo epitérmico na posição de irradiação
E_1 e E_2	limites de integração da Integral de Ressonância, 0,5 eV e 1E+6 eV
BG	contagens do BG da fonte
σ_γ	incerteza da probabilidade de emissão gama por decaimento
σ_λ	incerteza associada à constante de decaimento
σ_τ	incerteza no tempo morto
σ_{geo}	incerteza correspondente ao fator geométrico
σ_{fa}	incerteza do fator de atenuação
σ_A	incerteza na atividade
σ_{et}	incerteza nos fatores de correção dos esquemas de decaimento
σ_S	incerteza na área do fotopico
V_{cij}	matriz de covariância das incertezas
ρ_{cij}	correlações parciais entre as incertezas
e_{ij} , e_{ij}	incertezas parciais
A	matriz [n x m]
x	probabilidade de formação do estado isomérico
$n(v)$	densidade de nêutrons
n_{th}	densidade de nêutrons térmicos
n_{m}	densidade de nêutrons maxwelliana
n_i	densidade de nêutrons epitérmicos
v_0	velocidade das partículas à temperatura de referência (T_0)
$\rho_{\text{m}}(v)$	função de distribuição da densidade dos nêutrons Maxwelliana
$\rho_i(v)$	função de distribuição da densidade dos nêutrons epitérmicos
ϕ	fluxo na ausência da folha
ϕ_s	fluxo na superfície da folha
$\bar{\phi}$	fluxo médio
H	depressão do fluxo
G	auto-blindagem
λ_{tr}	caminho livre médio de transporte
N_β	contagens beta
N_γ	contagens gama
N_c	contagens de coincidência
ϵ_β	eficiência de detecção beta
ϵ_γ	eficiência de detecção gama
$\epsilon_{\gamma r}$	eficiência para o gama correspondente ao r-ésimo grupo beta
a_r	abundância do r-ésimo grupo beta

$\varepsilon_{\beta r}$	eficiência para o r-ésimo grupo beta;
α_r	coeficiente de conversão interna total para o r-ésimo grupo beta
ε_{cr}	eficiência de contagens para coincidências gama-gama
ε_{ec}	eficiência do detector beta para elétrons de conversão
$\varepsilon_{\beta\gamma}$	eficiência do detector beta para radiação gama
k_r	constante para uma dada eficiência beta
$\varepsilon_{\beta t}$	eficiência de detecção do traçador
$\varepsilon_{\beta x}$	eficiência de detecção do radionuclídeo de interesse
A_x^0	atividade do beta emissor
C_i	contagens do canal i
S_B	área sob o espectro de contagens de fundo
F_k	fator que leva em consideração o número de canais do pico de absorção total e o número de canais da região do fundo

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 – MUGHABGHAB, S. F.; DIVADEENAM, M.; HOLDEN, N. E. *Neutron Cross Sections* - Vol.1 Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections, Part A Z=1-60. New York, N.Y., Academic Press, 1981.
- 2 – MUGHABGHAB, S. F.; DIVADEENAM, M.; HOLDEN, N.E. *Neutron Cross Sections* - Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections Part B, A = 61-100. New York, N.Y., Academic Press, Orlando, Fl.: 1984.
- 3 – HOLDEN, N. E. Thermal Neutron Cross Sections and Resonance Integrals for the 1994 Handbook of Chemistry and Physics. In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON NUCLEAR DATA FOR SCIENCE AND TECHNOLOGY, Gatlinburg, Tenn., May 9-13, 1994. **Proceedings...** La Grange Park, Ill.: American Nuclear Society 1994. p. 742.
- 4 – NAKAGAWA, T.; ASAMI, T.; YOSHIDA, T. (Eds.). **Curves and Tables of Neutron Cross Sections** -Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3-. Tokio: Japan Atomic Energy Research Inst., 1990. (JAERI-M-90-099, NEANDC(J)- 153/U, INDC(JPN)-140/L).
- 5 – NAKAJIMA, Y. **Evaluation of Resolved Resonance Parameters of Fission Product Nuclides with Atomic Numbers Z = 46-51 for Jendl 3.2.** Tokio: Japan Atomic Energy Research Inst. 1996. (JAERI-Data/Code 96-027).
- 6 – DIAS, M. S. ; GERALDO, L. P.; KOSKINAS, M. F. Measurement of the Average Cross Section in U-235 Fission Neutron Spectrum for Threshold Reactions in ^{95,98}Mo, ¹²⁷I and ³²P. In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON NUCLEAR DATA FOR SCIENCE AND TECHNOLOGY, Gatlinburg, Tenn., May 9-13, 1994. **Proceedings...** La Grange Park, Ill.: American Nuclear Society 1994. p. 257.
- 7 – MAIDANA, N. L.; DIAS, M. S.; GERALDO, L. P. Measurements of U-235 Fission Neutron Spectrum Averaged Cross Sections for Threshold Reactions, **Radiochim. Acta**, v. 64, p. 7-9, 1994.
- 8 – SMITH, D. **Covariance Matrices and Applications to the Field of Nuclear Data.** Argonne Ill.: Argonne National Laboratory, 1988. (ANL/NDM-104)
- 9 – TAGESEN, S., et.al. Evaluation of Fast Neutron Cross Section and Covariance Matrices of ⁵²Cr. In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON NUCLEAR DATA FOR SCIENCE AND TECHNOLOGY, Gatlinburg, Tenn., May 9-13, 1994. **Proceedings...** La Grange Park, Ill.: American Nuclear Society 1994. p. 620.

- 10 – GERALDO, L. P.; SMITH, D. L. Covariance Analysis and Fitting of Germanium Gamma-Ray Detector Efficiency Calibration Data. **Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.** v. a290, p. 499-508. 1990.
- 11 – WASSON, O. A. Neutron Cross Section Measurement of ^{10}B and ^{11}B . In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON NUCLEAR DATA FOR SCIENCE AND TECHNOLOGY, Gatlinburg, Tenn., May 9-13, 1994. **Proceedings...** La Grange Park, Ill.: American Nuclear Society 1994. p. 33.
- 12 – HARADA, H. Measurement of the Thermal Neutron Cross Section of the $^{90}\text{Sr}(n,\gamma)^{91}\text{Sr}$ Reaction, **J. Nucl. Sci. Technol.** v. 31, p. 173-179, 1994.
- 13 – MUIR, D. W.; WILSON, W. B. Validation of the Large Activation Cross-Section Library In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON NUCLEAR DATA FOR SCIENCE AND TECHNOLOGY, Gatlinburg, Tenn., May 9-13, 1994. **Proceedings...** La Grange Park, Ill.: American Nuclear Society 1994. p. 772.
- 14 – KOPECKY, J. **Atlas of Neutron Capture Cross Sections.** Juko Research. 1977. (INDC(NDS)-362).
- 15 – KATOH, H. et.al. Measurement of Neutron Capture Cross Section of Radioactive Waste Nuclide. Progress of Researches by Common Utilization of JAERI Nuclear Facilities. 1994. Tokyo Univ. (Japan) Research Center of Nuclear Science and Technol. 1996. (UTRCN-G- -24).
- 16 – MATSUMOTO, T. Calculations of Gamma Ray Incineration of ^{90}Sr and ^{137}Cs . **Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.** v. A268, p. 234-243. 1988.
- 17 – TAKAHASHI, H.; MIZOO, N.; STEINBERG, M. Use of the Linear Accelerator for Incinerating the Fission Products of ^{137}Cs and ^{90}Sr . Upton, N.Y.: Brookhaven National Lab, p. 1, 1980. (BNL-28779)
- 18 – HUIZENGA, J. R. AND VANDENBOSCH, R. Interpretation of Isomeric Cross-Section Ratios for (n,γ) and (γ,n) Reactions. **Phys. Rev.** v. 120, n. 4. 1960.
- 19 – SEHGAL, M. L. Isomeric Cross-Section Ratios in (n,γ) Reactions. **Phys. Rev.** v. 128, n. 2, p. 761-767. 1962.
- 20 – WISSHAK, K., et al. The Isomeric Ratio in Thermal and Fast Neutron Capture of Americium -241. **Nucl. Sci. Eng.** v. 81, p 396-417, 1982.

- 21 – ISHIKAWA, H. **A Study of Reactor-Neutron Induced Reactions: Double Neutron Capture Process and the Systematics of the (n,2n) Reaction.** Tokyo: Japan Atomic Energy Research Inst. 1980. (JAERI 1266).
- 22 – BISHOP, C. T.; VONACH, H. K.; HUIZENGA, J. R. Isomeric Ratios for Some (n, γ) Reactions. **Nucl. Physics** v. 60, p. 241-249. 1962.
- 23 – HARBOUR, R. M. et al. Thermal-Neutron Capture Cross Section and Capture Resonance Integral of Americium-241. **Nucl.Sci. Eng.** v. 50, p. 364, 1973.
- 24 – SEKINE, T.; et.al. Measurement of Thermal Neutron Cross Section and Resonance Integral of the Reaction $^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{138}\text{Cs}$. **J. of Nucl. Sci. Technol.** v. 30, n. 11, p. 1099-1106, 1993.
- 25 – STUPEGIA, D. C. The Thermal Neutron Cross Section of the Reaction $^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{138}\text{Cs}$. **J. Nucl. Energy**, v. A12, p. 16, 1960.
- 26 – HARADA, H.; et.al. Measurement of the Neutron Capture Cross Section of the Fission Product ^{137}Cs . In: SYMPOSIUM ON NUCLEAR DATA, 1990. **Proceedings...**Tokio: Japan Atomic Energy Research Inst. 1991. p. 199. (NEANDC(J)-160/U. INDC(JPN)-148/L, JAERI-M91-032).
- 27 – LINCKE, H.J. Production of ^{58}Co in a nuclear reactor under particular considerations of interfering nuclear reactions. **J. Radioanal. Nucl. Chem.**, v. 87, n. 5. p. 311-315, 1984.
- 28 – INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Handbook on Nuclear Activation Cross Sections.** Vienna, 1974. (Technical Report Series 156).
- 29 – KALEBIN, S. M. Total Neutron Cross Section and Neutron Resonance Parameters of ^{241}Am in the Energy Range 0.004-30 eV. **Sov. At. Energy** v. 40, n.4, p. 303-307, 1976.
- 30 – SHINOHARA, Y. et al. Radiochemical Determination of Neutron Capture Cross Section of ^{241}Am . **J. Nucl. Sci. Technol.** v. 34, n. 7, p. 613-621, 1997.
- 31 – REILLY, D., ENSSLIN, N., SMITH, H. Jr., KREINER, S. **Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials.** Washington D.C. United States Nuclear Regulatory Commission. 1991. (NUREG/CR-5550).

- 32 – KNOLL, G.F. ***Radiation Detection and Measurement***. 2nd. Ed. New York, N.Y.: Wiley. 1989.
- 33 – HARRISON, K.G., HARVEY, J.R., BOOT, S.J. The Calibration of Neutron Instruments and Dosimeters at the Intermediate Energies. ***Nucl. Instr. Meth.***, v. 148 p. 511-520, 1978.
- 34 – INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. ***Neutron Fluence Measurements***. Vienna, 1970. (Technical Report Series 107).
- 35 – INTERNATIONAL Organization for Standardization. **Neutron reference radiations for calibrating neutron measuring devices used for radiation protection purposes and for determining their response as a function of neutron energy**. 1990. (ISSO 8529).
- 36 – BECKURTZ, K. H.; WIRTZ, K. ***Neutron Physics***. New York, N. Y.: Springer, 1964.
- 37 – LAMARSH, J. R. ***Introduction to Nuclear Reactor Theory***. Reading, Mass.: Addison-Wesley. 1965.
- 38 – THOMAS, D. J. SOOCHALK, N. Determination of the ³He Number Density for the Proportional Counter Used in the Bonner Sphere System. Teddington: National Physical Lab. 1988, (NPL Report RS(EXT)104).
- 39 – De CORTE, et al. The Accuracy and Precision of the Experimental α -Determination in the $1/E^{1+\alpha}$ Epithermal Reactor-Neutron Spectrum. ***J. Radional. Nucl. Chem.*** v62, n. 1-2. p. 209-255, 1981.
- 40 – CURTISS, L. F. ***Introduction to Neutron Physics***. Princeton, N.J D. Van Nostrand. 1958.
- 41 – GIBSON, W. M. ***The Physic of Nuclear Reactions***. Oxford: Pergamon Press. 1980.
- 42 – HODGSON, P. E. ***Nuclear Reactions and Nuclear Structure***. Oxford.: Clarenton. 1971.
- 43 – BLATT, J.M.; WEISSKOPF, V.F. ***Theoretical Nuclear Physics***. New York, N.Y.: Willey, 1952
- 44 – EVANS, R. D. ***The Atomic Nucleus***. New York, N. Y.: McGraw-Hill. 1955.

- 45 – GILBERT, A, CAMERION, A. G.W. A Composite Nuclear-Level Density Formula with Shell Corrections. **Can. J. Phys.** v. 43, p. 1446-1496. 1965.
- 46 – FIRESTONE, R. B. **Table of Isotopes**. 8. Ed., New York, N.Y.: Wiley, 1996.
- 47 – NUCLEAR data sheets, v. 23, n. 1, 1978.
- 48 – BAERG, A. P. Absolute measurement of radioactivity. **Metrologia**, v. 3, n. 4, p. 105-108, 1967.
- 49 – MERRIT, J.S.; GIBSON, F.H. **Standardization of ^{137}Cs by the $4\pi(\text{PC})\text{-}\gamma$ efficiency-tracing method with ^{134}Cs traces**. Chalk River, Ont.: Atomic Energy of Canada, 1978. (AECL-6203).
- 50 – INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIATION UNITS AND MEASUREMENTS. **Particle Counting in Radioactivity Measurements**. 1 nov. 1994. (REPORT 52).
- 51 – NUCLEAR data sheets, v. 21, n. 4, 1977.
- 52 – NAKAGAWA, T. **Curves and Tables of Neutron Cross Sections of Fission Product Nuclei in Jendl-3**. Tokio: Japan Atomic Energy Research Inst. 1992. (JAERI M 92-077. INDC(JPN)-1612/L).
- 53 – SHINOHARA, N.; et.al. Radiochemical determination of the neutron capture cross sections of ^{241}Am irradiated in the JMRT reactor. **INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON NUCLEAR DATA**. JAERI, Tokai. Japan. 1996. **proceedings...**, Japan Atomic Energy Research Inst. Tokyo. 1997. (JAERI-Conf-97-004).
- 54 – WESTCOTT, C. H. Effective Cross Section Values for Well-Moderated Thermal Reactor Spectra. 3rd Edition Chalk River, Ont.: Atomic Energy of Canada. 1960. (CRRP-960).
- 55 – ALFASSI, Z.B. **Activation Analysis VII**. Boca Raton, FL.: CRC. 1990
- 56 – WALKER, W. H., WESTCOTT, C. H., and ALEXANDER, T. K. Measurement of Radiative Capture Resonance Integrals in a Thermal Reactor Spectrum, and Thermal Cross Section of Pu-241. **Can. J. Phys.** v. 38, 1960.

- 57 – WESTCOTT, C. H.; WALKER, W. H. and ALEXANDER, T. K. Effective Cross Sections and Cadmium Ratios for the Neutron Spectra of the Thermal Reactors. Chalk River, Ont.: Atomic Energy of Canada. 1958. (AECL-612).
- 58 - ZIJP, W. L.; BAARD, J. H. **Nuclear Data Guide for Reactor Neutron Metrology. Nucl. Sci Technol.** Luxemburgo. , Commission of the European Communities, 1981. (EUR 7164 EN).
- 59 – BOTHE, W. Zur Methodik der Neutronensonden. **Z. Phys.** v. 120, p. 437, 1943.
- 60 – AXTON, E.J. Absolute Measurement of the Neutron Flux Density in the A.E.R.E. Reactor "Glep". **Nucl. ci. Technol. A/B, Reactor Sci. Technol.** v. 17, p. 125-135, 1963.
- 61 – BAUMANN, N. P. **Resonance Integrals and Self-shielding Factors for Detector Foils.** Aiken, S. C.: El. Du Pont de Nemours, Jan 1963. (DP-817).
- 62 – ROE, G. M. The **Absorption of Neutrons in Doppler Broadened Resonance's.** Schenectady, N. Y.: Knolls Atomic Power Lab., 1954. (KAPL-1241).
- 63 – BAUMANN, N. P. & SROUD, M. B. Self Shielding of Detector Foils in Reactor Fluxes. **Nucleonics**, v. 23, n. 8, p. 98-100, 1965.
- 64 – WILLIE, H.A., JOHNSON, E.P., LOWENTAL, G.C. A procedure for stirring aliquots of radioactive solutions when making thin 4π counting sources. **Int. J. Appl. Radiat. Isot.**, v. 21, p. 497, 1970.
- 65 – NUCLEAR data tables, Section A, v. 7, 1969/1970.
- 66 – DIAS, M. S. Comunicação Pessoal, 1999
- 67 –SCHIMA, F. J.; HOPPE, D. D. Tables for Cascade Summing Corrections in Gamma Ray Spectrometry. **Int. J. Appl. Radiat. Isot.** v. 38, n. 8, p. 1109-1114. 1983.
- 68 – DIAS, M. S. Comunicação Pessoal, 1999.
- 69 – DIAS, M. S. Comunicação Pessoal, 1999.

- 70 – WILLIAMN, A.; CAMPION, P. J. On the relative distribution of the pulses in the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence technique. **International J. Appl. Radiat. Isot.**, v. 16, p. 555-560, 1965.
- 71 – KOSKINAS, M. F. Comunicação Pessoal, 1999.
- 72 – INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **X-ray and Gamma-ray standards for detector calibration**. IAEA, Vienna, 1991. (IAEA-TECDOC-619).
- 73 – GERALDO, L. P.; SMITH, D.L. **Least square methods and covariance matrix applied to the efficiency calibration of a Ge(Li) detector**. São Paulo, S.P.: Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, 1989. (IPEN-PUB-243).
- 74 – ATALLA, L.T. **Interpretação Quantitativa de Resultados Experimentais**, São Paulo, S.P.: Instituto de Energia Atômica, 1978. (IEA inf. 60).
- 75 – JOVANOVIĆ, S. et al. Epithermal Neutron Flux Characterization of the TRIGA MARK II Reactor, Ljubljana, Yugoslavia, for Use in NAA. **Jr Radional. Nucl. Chem.** v. 120, n. 2, p. 343-349, 1989.
- 76 – DIAS, M. S. Comunicação Pessoal, 1999.
- 77 – TRAMONTANO, R.; VANIN, V. R. Mixing activity-calibrated and uncalibrated gamma-ray sources in efficiency calibration. **Appl. Rad. Isot.**, v. 51, p. 323-328. 1999.
- 78 – MANNHART, W. A small guide to generating covariances of experimental data. Braunschweig (Germany, F. R.). Physikalisch Technische Bundesanstalt, 1981. (PTB-FMRB-84).
- 79 – WESTON, L. W., TODD, J. H. Neutron Absorption Cross Section of Americium-241. **Nucl. Sci. Eng** v. 61, p. 356-365, 1976.
- 80 - BAK, M. A. et al. Formation of Cm^{242} and Cm^{244} by Irradiation of Am^{241} in a Reactor. **Soviet Atomic Energy**, v. 24, p. 247-251, 1968.
- 81 – HOLDEN, N. Temperature Dependence of the g-factor of the Actinide Nuclides. 1991. (ENDF/B-V. BNL-45256-R. CONF-91 052/8).

- 82 – CAMPION, P. J. The Standardization of Radioisotopes by Beta-Gamma Coincidence Method Using High Efficiency Detectors. **Int. J. Appl. Radiat. Isot.**, v. 4, p 232-248, 1959.
- 83 – BAERG, A. P. Measurement of radioactive desintegration rate by the coincidence method. **Metrologia**, v. 2, n. 1, p 23-32, 1966.
- 84 – HOUTHERMANS, H.; MIGUEL, M.; BAERG, A. P. The efficiency extrapolation method in covariance counting. **Nucl. Instr. Meth.**, v. 112, p. 143-150, 1973.
- 85 – SHAGIA, M. Some Practical Application of Tracing and Extrapolation Methods in Absolute Standardization. **Isotopenpraxis**, v. 17, n. 5, p 211-213, 1980.
- 86 – COX, D. R., ISHAM, V. A. Bivariate Point Process Connected with Electronic Counters. *Proc. R. Soc. London, Sec. A, Math Physics* v. 356, 149. 1977.
- 87 – KOSKINAS, M,F. Desenvolvimento de um sistema de coincidência para a medida absoluta da atividade de Radionuclídeos Empregando detectores de barreira de superfície. Tese de doutorado. 1988. Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
- 88 – DIAS, M. S. Comunicação Pessoal, 1999.
- 89 – KIKUCHI, Y. **Evaluation of Neutron Nuclear Data for ^{241}Am and ^{243}Am .** Tokio: Japan Atomic Energy Research Inst. 1982. (JAERI-M-82-096. NEANDC(J) 86/U)
- 90 – CASHWELL, E. D., EVERETT, C. J. **A practical Manual on the Monte Carlo Method for Random Walk Problems.** New York, N.Y. Pergamon. 1959.