

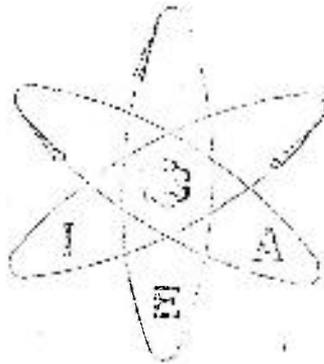
I A  
E

ANÁLISES POR ATIVAÇÃO LEVADAS A EFEITO DO  
O REATOR DE PISCINA DO INSTITUTO DE ENERGIA  
ATÔMICA - PARTE I

W. Lima, A. Abrão e C. Pagano

Publicação IEA - Nº 19  
1959

2106



34444-1

ANÁLISES POR ATIVAÇÃO LEVADAS A EFEITO COM  
O REATOR DE PISCINA DO INSTITUTO DE ENERGIA  
ATÔMICA — PARTE I

*F. W. LIMA, A. ABRÃO e C. PAGANO*

Publicação I E A — N.º  
1959

19

SECRETARIA DE ENERGIA ATÔMICA

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA  
Caixa Postal 11049 (Pinhe-  
CIDADE UNIVERSITÁRIA "ARMANDO DE SALLES OLIVEIRA"  
SÃO PAULO — SP

## CONSELHO NACIONAL DE PESQUISAS

Presidente — Prof. Dr. João Christovão Cardoso

Vice-Presidente — Prof. Dr. Athos da Silveira Ramos

## UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

Reitor — Prof. Dr. Gabriel Sylvestre Teixeira de Carvalho

Vice-Reitor — Prof. Dr. Francisco João Humberto Maffei

## INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA

### DIRETOR

Prof. Dr. Marcello Damy de Souza Santos

### CONSELHO TÉCNICO-CIENTÍFICO

Representantes do Conselho Nacional de Pesquisas

Prof. Dr. Luiz Cintra do Prado

Prof. Dr. Paulus Aulus Pompéia

Representantes da Universidade de São Paulo

Prof. Dr. Francisco João Humberto Maffei

Prof. Dr. José Moura Gonçalves

### CONSELHO DE PESQUISAS

Prof. Dr. Marcello Damy de Souza Santos

— Chefe da Divisão de Física Nuclear

— Prof. Eng. Paulo Saraiva de Toledo

— Chefe da Divisão de Física de Reatores

Prof. Dr. Fausto Walter Lima

— Chefe da Divisão de Radioquímica

Prof. Dr. Rômulo Ribeiro Pieroni

— Chefe da Divisão de Radiobiologia

ANÁLISES POR ATIVAÇÃO LEVADAS A EFEITO COM O REATOR  
DE PISCINA DO INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA -PARTE I<sup>x</sup>

F. W. Lima, A. Abrão e C. Pagano

PUBLICAÇÃO I.E.A. - Nº 19

1959

(x) Publicado nos Anais da Associação Brasileira de Química - XVIII,  
pag. 211, 1959.

[Contribuição do Instituto de Energia Atômica, C. P. 11049  
(Pinheiros) São Paulo]

ANALISES POR ATIVAÇÃO LEVADAS A EFEITO COM O  
REATOR DE PISCINA DO INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA  
— PARTE I

*Fausto W. Lima, Alcídio Abrão e Constância Pagano*

Introdução

O processo de análise por ativação é um método para determinar os constituintes de uma amostra utilizando-se certas propriedades nucleares dos isótopos dos elementos a serem determinados na amostra. Em síntese, o método consiste em tornar-se radiativos os isótopos (ou um dos isótopos) do elemento a determinar e em seguida medir-se a atividade destes isótopos com um aparelho comum de detecção de substâncias radioativas, isto é, um contador Geiger, um cintilômetro para raios gama, etc., ligado a circuitos eletrônicos de registro, tais como "scalers" e "ratemeters".

Exige o método uma fonte de partículas bombardeadoras que tornem radioativos os isótopos do elemento em questão. As partículas mais úteis para esses bombardeios são quase sempre neutrons lentos, sejam eles oriundos de pequenas fontes de neutrons, como fontes de rádio-berílio, sejam eles oriundos de fontes extremamente fortes como os reatores nucleares. O processo é razoavelmente simples quando comparado com outros métodos análogos para substâncias em quantidades extremamente pequenas e se não se tem feito um uso mais amplo do mesmo é porque as fontes de neutrons intensas, isto é, reatores nucleares, não são em grande número, especialmente na América do Sul.

A disponibilidade de neutrons em um fluxo bastante alto no reator do Instituto de Energia Atômica e a necessidade de efetuar-se a determinação de constituintes em quantidade extremamente pequena em determinados materiais cuja composição era de interesse dentro dos programas das várias Divisões do Instituto de Energia Atômica, tais como sódio em grafite, háfnio em zircônio, urânio em minérios e nas resinas iônicas do sistema

de tratamento de água da piscina do reator, de ouro e de gálio em minérios, levou-nos a aplicar o método de análise por ativação nos problemas em questão. A associação do método de análise por ativação à detecção da atividade dos isótopos formados como consequência da reação nuclear com os neutrons lentos por intermédio de espectroscopia gama, a qual dispensa em muitos casos várias separações químicas, tornou extremamente interessante e bastante simples a solução dos problemas relacionados acima. A sensibilidade do método de análise por ativação para vários elementos, tem sido calculada e pode ser encontrada na referência<sup>5</sup>. Quantidades correspondentes a  $10^{-10}$  gramas de material podem ser determinados por esse método.

#### Princípios do método.

A amostra a ser analisada é colocada num fluxo homogêneo de neutrons por um período de tempo suficiente para produzir uma quantidade mensurável de radioisótopos do elemento a ser determinado. A taxa de formação do número de átomos radioativos  $N$  é dado pela equação conhecida.

$$dN/dt = f\sigma N - \lambda N \quad (1)$$

onde  $f$  é o fluxo de neutrons em número de partículas por  $\text{cm}^2$  por segundo;  $\sigma$  é a seção de choque isotópica para a reação nuclear que se processa, em  $\text{cm}^2$ ;  $N$  é o número de átomos expostos ao bombardeio;  $\lambda$  é a constante de desintegração radioativa dos isótopos formados;  $N$  é o número de átomos radioativos formados durante a irradiação. A integração da equação (1) entre os limites de tempo de 0 a  $t$  dá

$$N^* = \frac{f\sigma N}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (2)$$

A integração da equação (1), de forma a dar a equação (2), exige a aproximação de se fazer  $N$  constante, aproximação essa perfeitamente legítima pois o número de átomos que se tornam radioativos, comparados com o número de átomos totais, é extremamente fácil. A atividade, em desintegrações por segundo, dos

átomos  $N$  após o bombardeio durante o tempo  $t$  é dada pela expressão:

$$A = \lambda \cdot N = f \sigma N (1 - e^{-\lambda t}) \quad (3)$$

Examinando-se as equações (1), (2) e (3), verifica-se que o conhecimento de  $N$  na fórmula (2), bem como o conhecimento do fluxo  $f$  de neutrons usados, a secção de choque do isótopo que está sendo bombardeado, a constante de desintegração dos isótopos radioativos formados, e o tempo de bombardeio  $t$ , permite o cálculo de  $N$ , isto é, do número de isótopo do elemento cuja determinação se deseja fazer. A determinação de  $N$  pelo conhecimento dos parâmetros mencionados tornar-se-ia de difícil aplicabilidade; entretanto, para uma análise, pode-se adotar o método de usar-se um padrão com uma quantidade conhecida do elemento a ser dosado na amostra problema; ambas as amostras, a padrão e a problema, são bombardeadas nas mesmas condições, isto é, no mesmo fluxo de neutrons e pelo mesmo tempo. Dessa maneira ter-se-á para a amostra padrão relação análoga a (3).

$$A_p = f \sigma N_p (1 - e^{-\lambda t}) \quad (4)$$

Dividindo (3) por (4) tem-se

$$A/A_p = N/N_p \quad (5)$$

e portanto

$$N = (A/A_p) N_p$$

Como se conhece o número de átomos do isótopo em estudo na amostra padrão, isto é,  $N_p$  e como as atividades  $A$  e  $A_p$  são as grandezas que se medem, determina-se assim o valor de  $N$ , ou seja o número de átomos da substância problema e daí a sua massa.

### Método de análise por ativação com um "Padrão Interno".

Uma das dificuldades sérias nas análises por ativação quando se irradia a amostra e um padrão é que, em geral, não se pode duplicar as condições da amostra no padrão, no que diz respeito à densidade do material, estado físico, forma, tamanho, etc. Dessa maneira, as interferências que surgem, no que diz respeito à absorção de neutrons, por parte da amostra propriamente dita, na qual além de se ativar o material de interesse, ativam-se também os demais elementos que acompanham a amostra, não surgem na ativação do padrão.

Se fôsse possível adaptar-se o método de análise por ativação, por comparação com um padrão, de tal forma que o padrão fôsse introduzido numa outra porção da amostra e homogeneizado com a mesma dever-se-ia ter então uma maior reprodutibilidade especialmente no que diz respeito ao valor do fluxo de neutrons que está atingindo a amostra e o padrão.

Nêsse sentido foi imaginado por um de nós, (A. Abrão), efetuar-se a irradiação de duas massas idênticas da amostra, sendo que a uma delas se juntava uma certa quantidade conhecida do elemento a ser determinado. A determinação das atividades após a irradiação daria uma certa atividade  $A$ , para a massa  $X$  desconhecida do elemento em estudo e uma atividade  $A'$  para a massa  $(X + a)$ , sendo  $a$  a quantidade conhecida do elemento em estudo que se juntara à segunda amostra. Uma simples regra de três permite a determinação de  $X$ . Este método foi por nós denominado de "Método do Padrão Interno" e será ilustrado no caso de análises de sódio na água da piscina após o tratamento nas resinas purificadoras. Era de interesse o conhecimento da quantidade de sódio existente, em média, na água da piscina do reator para que se pudesse avaliar a atividade desta água, devido ao sódio-24, quando o reator estivesse em funcionamento, especialmente quando em funcionamento em alta potência. Além disso, desejava-se saber qual o grau de eficiência, no que diz respeito a remoção do sódio, das resinas purificadoras. Por essa razão efetuaram-se, então, análises pelo método do padrão interno e pelo método de comparação com um padrão externo; isto é, com uma quantidade de sódio irradiado ao mesmo tempo e

nas mesmas condições de geometria no que diz respeito ao fluxo de neutrons, mas contido num outro recipiente que não o da amostra problema.

### Parte experimental

#### 1. Determinação de sódio na água da Piscina.

Tomaram-se 250 ml de água da piscina e da água efluente das resinas. Esses 250 ml foram evaporados a seco, o resíduo foi retomado com água demineralizada e elevado a 1 ml. Este 1 ml foi transferido para tubos de plástico, os quais foram submetidos à irradiação no reator por tempos que variaram entre uma a quatro horas e em potências de 10 a 500 Kw, dando um fluxo entre  $10^{11}$  a  $10^{12}$  neutrons por segundo e por centímetro quadrado. As amostras, após irradiação, eram transferidas para outros tubos de plástico e levadas a um cintilômetro, contando-se então a radiação gama e fazendo-se uma curva de decaimento radioativo; pode-se, então, extrapolar, na curva de decaimento radioativo, a parte correspondente à atividade de meia-vida mais longa e subtrair esta da curva total, obtendo-se então a curva de decaimento do sódio-24. Um exemplo típico de várias análises efetuadas em amostras de 250 ml de água consta da Tabela I. A amostra n.º 1 corresponde à água da piscina. A amostra n.º 2 à água da piscina após ter passado pelas resinas repurificadoras e a amostra n.º 3 à água após passagem pelas resinas repurificadoras e à qual foram juntados 0,115 mg de sódio na forma de carbonato de sódio. Irradiou-se, além disto, um padrão de 0,115 mg de sódio, o qual foi usado para o cálculo da amostra n.º 1. A comparação da atividade da amostra n.º 1, isto é, 95 349 ipm com a atividade do padrão 109 681 ipm dá para a amostra n.º 1 0,100 mg de sódio, o que corresponde a 0,4 ppm. O cálculo da quantidade de sódio existente na amostra n.º 2 é feito estabelecendo-se a proporção em que 19 448 ipm correspondem à quantidade X de sódio, e a atividade da amostra n.º 3, isto é, 125 758 corresponde à quantidade (X + 0,115) de sódio, resultando para X o valor 0,0211 mg o que dá 0,084 ppm. O cálculo da amostra n.º 2, por comparação com o padrão externo, isto é, com o 0,115 mg de sódio irradiado em separado, dá o resultado 0,0205 mg ou

seja, 0,032 ppm, o que é um bom acôrdo entre a medida do padrão externo e o padrão interno.

TABELA I

Ânálises de sódio na água da piscina.

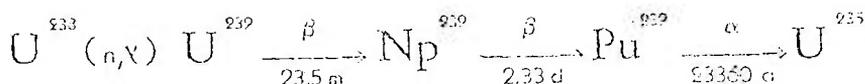
Amostra	Atividade ipm	Na(mg)	Na(ppm)
1	95 349	0,100	0,400
2	19 448	0,0205	0,0320
3	125 758	0,0211	0,0344
4	109 681	—	—

- 1 — água da piscina
- 2 — água da piscina na saída das resinas
- 3 — água da piscina na saída das resinas e à qual foram juntados 0,115 mg de Na.
- 4 — Padrão de carbonato de sódio (0,115 mg de Na).

Note-se que esta análise do sódio pode ser conduzida com muita simplicidade, e num tempo bastante curto, tempo êste dispendido apenas na transferência das amostras dos tubos de irradiação para os tubos de contagem e mais ainda o de contagem das amostras (cêrca de cinco a dez minutos por amostra). Mesmo o tempo de irradiação no reator não é grande pois vários resultados obtidos com tempo de irradiação de uma a cinco horas deram os mesmos erros experimentais, o que nos tem permitido irradiar amostras por tempos bastante curtos especialmente quando a potência do reator é elevada. Entre 100 Kw e 1 Mw tem sido possível a irradiação por tempo de cêrca de meia hora para as quantidades de sódio existentes nos 250 ml de água. Observe-se ainda a desnecessidade de qualquer processo ou operação química para as análises em questão.

## 2. Determinação do urânio.

A determinação de urânio é feita pela medida da quantidade de neptúncio-239 que se forma quando o urânio-238 é bombardeado por neutrons lentos, sendo as reações nucleares que interessam, para esta determinação, as seguintes:



Para a determinação da quantidade de urânio-238 existente determina-se a quantidade de neptúncio-239 formado, o qual emite partículas beta e radiações gama, sendo essas radiações gama facilmente detectadas por meio de um espectrômetro gama e as partículas beta por meio de contadores Geiger.

Sendo a quantidade de neptúncio-239 formada diretamente proporcional à quantidade de urânio-238 existente na amostra, a análise resume-se em irradiar-se um padrão de urânio e a amostra problema nas mesmas condições, relativamente ao fluxo de neutrons, e comparam-se as atividades correspondentes ao neptúncio-239 formado. As amostras e padrão foram irradiadas num fluxo de  $10^{12}$  neutrons por segundo e por centímetro quadrado e durante um tempo que variava entre quatro a seis horas. Após a irradiação o processamento químico começava após cerca de doze horas de retiradas as amostras do reator.

Em virtude dos elementos combustíveis serem manuseados nas mesmas máquinas que preparam a liga de urânio com alumínio, estes elementos ficam contaminados externamente com urânio e após algum tempo de permanência dentro da piscina o urânio é removido aos poucos pela água e vai sendo concentrado nas resinas do sistema de repurificação. Após a passagem de cerca de um milhão de litros de água, pela resina, quando a mesma então se manifesta exaurida, tomaram-se 47,3 gramas de resina catiônica a qual foi eluída com ácido nítrico. O material eluído foi extraído com éter num extrator contínuo e a parte solúvel na camada etérea foi analisada por ativação nas condições de trabalho do reator descritas acima. Paralelamente foram irradiadas 2,08 miligramas de  $U_2O_5$ .

Após irradiação, a amostra foi dissolvida em solução nítrica e elevada a 25 ml, das quais se tomou uma alíquota de 10 ml.

O processamento químico, das amostras e padrão irradiado, são os adotados por Mahlman e Leddicotte<sup>4</sup>. Em síntese, as amostras são dissolvidas por digestão, numa mistura de ácido nítrico concentrado, fluorídrico, perclórico e sulfúrico. Após a dissolução a amostra é concentrada até o aparecimento de fumaças brancas de ácido sulfúrico, resfriada e transferida para um tubo de plástico para centrifugação. A solução é centrifugada por cinco minutos, o sobrenadante é transferido para outro tubo, e o resíduo lavado com ácido nítrico, sendo a água de lavagem juntada ao sobrenadante e o resíduo desprezado. À solução junta-se lantânio o qual irá servir como carregador para o neptúnio formado. O lantânio é precipitado na forma de hidróxido, a mistura é centrifugada e o líquido sobrenadante é desprezado. O precipitado de hidróxido de lantânio é dissolvido em ácido fluorídrico, junta-se estrôncio para servir como carregador de produtos de fissão (scavenging carrier), precipitando-se então o fluorêto de lantânio com ácido fluorídrico. A mistura é centrifugada, o líquido sobrenadante é desprezado e o precipitado de fluorêto de lantânio é dissolvido numa mistura de ácido nítrico e bórico. O neptúnio é oxidado com permanganato de potássio, o fluorêto de lantânio é novamente precipitado com ácido fluorídrico, a mistura é centrifugada e o precipitado é desprezado. A re-precipitação <sup>do</sup> fluorêto de lantânio é repetida para a remoção dos produtos de fissão, a mistura é centrifugada, junta-se zircônio (scavenging carrier) e clorêto de hidroxilamina e mais carregador de lantânio, o qual é reprecipitado com ácido fluorídrico arrastando o neptúnio que fôra reduzido pela hidroxilamina. Centrifuga-se, despreza-se o sobrenadante, dissolve-se o precipitado com ácido nítrico e a solução é contada num cintilômetro de raios gama. O padrão de urânio sofreu o mesmo tratamento que a amostra em questão.

Após o processamento químico, conforme descrito, obteve-se para a contagem do neptúnio na resina,  $37,5 \times 10^3$  ipm e para o neptúlio no padrão,  $783 \times 10^3$  para os 2,08 miligramas de óxido de urânio, o que dá  $377 \times 10^6$  ipm, por grama de óxido de urânio.

Resulta daí  $9,95 \times 10^{-3}$  grammas de  $U_3O_8$  na amostra, ou seja,  $8,43 \times 10^{-3}$  grammas de urânio para os  $47,3 \times \frac{25}{10}$  grammas de resina. Como a quantidade total da resina era de 112 kg tem-se que a quantidade total de urânio acumulada na resina após o tratamento dos  $5,7 \times 10^6$  litros de água é de 0,5 grammas de urânio, o que dá uma concentração de 0,058 microgrammas por litro, ou seja, cerca de 24 miligramas pelo volume total da água da piscina.

### 3. Análise de mineral aurífero.

Um conglomerado aurífero da Mina de Conxvleiros, Jacobina, Bahia, foi analisado relativamente ao conteúdo de ouro e de urânio. A análise de urânio será descrita na parte II, aplicação do método de gama espectrometria à análise por ativação.

Para a análise de ouro, o minério, após irradiação, foi fundido com hidróxido de potássio, esfriado, lixiviado com água quente, acidulado com ácido clorídrico, passado para uma cápsula de porcelana, secado para eliminação de sílica, retomado com água e centrifugado. A sílica depositada no fundo do tubo de centrífuga não apresentava nenhuma atividade.

Tomou-se em seguida uma alíquota de 20 ml da solução clorídrica, cujo volume total era 50 ml, juntando-se 20 miligramas de ouro, na forma de cloreto, como carregador, a solução foi colocada numa cápsula de porcelana e à mesma juntou-se soda e água oxigenada para redução do ouro, deixando-se quinze minutos em banho-maria. Após isto a mistura foi acidulada com ácido clorídrico, centrifugada, lavada até eliminação completa de cloretos, digerida com 1 ml de ácido nítrico concentrado, a quente, e lavada com água. Em seguida a massa foi dissolvida com uma mistura de 2 ml de ácido clorídrico concentrado e 5 gotas de ácido nítrico concentrado e evaporado até cerca de 0,5 ml. O processo de redução era então repetido e no final dilua-se a 20 ml com ácido clorídrico normal, juntava-se 1 mg de ferro como "scavenging carrier", precipitava-se o hidróxido de ferro, centrifugava-se e desprozava-se o resíduo. O sobrenadante era acidulado com ácido clorídrico e o ouro metálico reprecipitado como previamente. Após lavagem era redissolvido com uma

mistura de água régia, diluído a cerca de 30 ml com ácido clorídrico normal e extraído com acetato de etila, lavando-se em seguida a fase acetato duas vezes com 5 ml de ácido clorídrico duplo normal. O acetato de etila era evaporado, juntava-se ácido clorídrico, reduzia-se o ouro com mistura de hidróxido de sódio com água oxigenada, deixava-se quinze minutos em banho-maria, juntava-se ácido clorídrico, centrifugava-se e preparava-se a parte sólida para contagem. Um padrão de clorêto de ouro, contendo 2,8 gamas de ouro foi também irradiado e processado da mesma maneira. As contagens do isótopo ouro-198 deram 995 ipm para o padrão e 525 ipm para 40 mg de mineral irradiado. A proporção entre padrão e mineral dá o resultado de 1,48 gamas de ouro por 40 mg de minério.

#### 4. Análise de sódio em grafite.

A utilização de grafites nacionais no projeto de reatores, de interêsse à Divisão de Física de Reatores do Instituto de Energia Atômica, exigia uma comparação do grau de pureza dessas grafites com as grafites denominadas nuclearmente puras. Foram então conduzidas análises comparativas, por radioativação, no que diz respeito ao sódio de grafite fornecida por firma comercial de São Paulo e de grafites nuclearmente puras, as quais constituem a coluna térmica do reator do Instituto de Energia Atômica.

Amostras de 0,1 gramas foram tiradas das grafites, com cuidado adequado, para evitar a contaminação da mesma por sódio, isto é, no caso da grafite nuclearmente pura a amostra foi tirada do centro da peça e não da superfície e da impura, a qual foi fornecida na forma pulverulenta, a amostra foi retirada também do centro de uma quantidade grande (cerca de 50 litros). As duas amostras, e mais um padrão de carbonato de sódio, foram irradiadas durante cerca de duas horas sendo a potência do reator de 100 Kw. Após remoção do reator e transferência para os tubos de contagem, a proporção das atividades deu os resultados da Tabela II.

TABELA II

	M a s s a		I P M		P P M	
	Grafite impura Padrão Na	0,66 g 0,17 mg	0,52 g 0,0017 mg	2465 13	505 547	583
Grafite pura Padrão do Na	0,50 g 0,17 mg	0,52 g 0,017 mg	209 20	58 996	769	3.4 2.46

## CONCLUSÕES E DISCUSSÃO

O exame das análises apresentadas mostra a viabilidade de determinações sem separações químicas em alguns casos, como o de sódio na água da piscina e nos grafites. Alguns outros, como o de ouro e urânio, não prescindem das separações; entretanto, na Parte II dos trabalhos de análises por ativação ver-se-á a possibilidade de estender a desnecessidade das separações para mais alguns casos.

Mesmo no caso em que não se pode abrir mão do processamento das amostras, a análise por ativação é ainda de inestimável valor em virtude de permitir o doseamento de quantidades extremamente pequenas.

Quanto à precisão do método esta depende, em geral, do problema que está sendo examinado no momento e se há ou não processamento químico das amostras. Em geral a precisão fica compreendida entre 10 e 15%.

## RESUMO

Descrevem-se, sumariamente, a importância do método de análises por ativação, os princípios em que este método se baseia e o chamado uso do "padrão interno" elaborado por um dos autores desse trabalho. Nesse método do "padrão interno" evita-se o inconveniente da falta de semelhança entre amostra e padrão no que diz respeito à absorção de neutrons, especialmente no caso do fenômeno de "sombra" (neutron shadowing).

Apresentam-se os resultados de análises por ativação de sódio na água da piscina do Reator do I.E.A., em grafites, de urânio e de ouro em minérios, sendo que as quantidades desses

elementos analisados nos materiais em questão são da ordem de partes por milhão.

Descrevem-se os processamentos químicos adotados para as análises relativas a esse elemento.

### SUMMARY

The principles and importance of the method of activation analyses are described. The use of an "internal standard" to avoid neutron shadowing is shown.

The results for the analyses of sodium in the water of the swimming pool of the IEA reactor and in graphite, of uranium and gold in ores are presented; the amounts of this element in the material analyzed are of the order of parts per million.

The chemical procedures used in each case are described.

### BIBLIOGRAFIA

- 1) G. W. Hevesy, and H. Levi, *Kgl. Danske Videnskab Math-fys. Medd.*, 4, 5 (1936); 15, 11 (1938).
- 2) G. T. Seaborg and J. J. Livingood, *J. Am. Chem. Soc.*, 60, 1784 (1938).
- 3) D. T. P. King and W. J. Henderson, *Phys. Rev.* 56, 1169 (1939).
- 4) H. M. Clark and R. T. Overman, *Atomic Energy Commission. MDDC 1329* (1947).
- 5) E. N. Jenkins and A. A. Smales, *Quart. Rev.* X, n.º 1, 1956.
- 6) H. A. Mahlman and G. W. Leddicotte, *Anal. Chem.*, 27, 823 (1955).

