

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR
INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR

RIO DE JANEIRO

METODOLOGIA E MONTAGEM EXPERIMENTAL
PARA A MEDIÇÃO DE RENDIMENTOS
DE PRODUTOS DE FISSÃO DE MEIA VIDA
CURTA NA FISSÃO DE ACTINÍDEOS
POR PARTÍCULAS CARREGADAS.

por

A. V. Bellido

IEN-65

JULHO 1995

Instituto de Engenharia Nuclear - CNEN
Caixa Postal 68550
CEP:21945-970 - Rio de Janeiro
RJ - BRASIL

METHODOLOGY AND EXPERIMENTAL SET-UP FOR MEASURING SHORT-LIVES
FISSION PRODUCTS YIELDS IN ACTINIDES INDUCED FISSION BY CHARGED
PARTICLES

by

A. V. Bellido

ABSTRACT

The theoretical principles and the laboratory set-up for the fission products yields measurements are described. The procedures for the experimental determinations are explain in detail.)

Keywords: Nuclear fission, Fission products yields, Helium jet transport system, Charged particles fission.

METODOLOGIA E MONTAGEM EXPERIMENTAL PARA A MEDIÇÃO DE RENDIMENTOS
DE PRODUTOS DE FISSÃO DE MEIA VIDA CURTA NA FISSÃO DE ACTINÍDEOS
POR PARTÍCULAS CARREGADAS.

por

A. V. Bellido

RESUMO

Descrevem-se os fundamentos teóricos assim como os equipamentos que compõem a montagem do laboratório para a medição de rendimentos de produtos de fissão. Explicam-se, com detalhe, os diferentes passos para a determinação experimental desses produtos.

Palavras Chave: Fissão nuclear, Rendimentos de produtos de fissão, Sistema de transporte por jato de hélio, Fissão por partículas carregadas.

SUMÁRIO

1. Introdução	1
2. O Projeto de Pesquisa	1
2.1. Determinação dos Produtos de Fissão	2
2.1.1. Cálculo dos Rendimentos Cumulativos	2
2.1.2. Cálculo dos Rendimentos Cumulativos da Cadeia	3
2.1.3. Distribuição da Carga Nuclear	4
3. Montagem Experimental	6
3.1. Ciclotron	6
3.2. Sistema de Transporte Rápido por Jato de Hélio	6
3.2.1. Sistema de Irradiação de Alvo	6
3.2.2. Sistema de condução gasosa	8
3.2.3. Sistema de coleta e troca de amostras	9
3.3. Sistema eletrônico de detecção e contagem	9
4. Experimentação	10
4.1. Irradiação do Alvo	10
4.2. Sistemática das irradiações e registro dos espectros	10
4.2.1. Ciclos de Contagem	10
4.3. Análise e resolução dos espectros	11
5. Cálculos	11
6. Referências	11
Figura 1 - Curva de distribuição de carga.	4
Figura 2 - Rendimentos cumulativos fracionários vs. $Z-Z_p$.	5
Figura 3 - Esquema do sistema de transporte rápido por jato de hélio.	7
Figura 4 - Câmara de irradiação na saída 1 do ciclotron.	8
Figura 5 - Diagrama em blocos do sistema de detecção e contagem.	9

**METODOLOGIA E MONTAGEM EXPERIMENTAL PARA A MEDIÇÃO DE RENDIMENTOS
DE PRODUTOS DE FISSÃO DE MEIA VIDA CURTA NA FISSÃO DE ACTINÍDEOS
POR PARTÍCULAS CARREGADAS.**

A. V. Bellido

Instituto de Engenharia Nuclear, Comissão Nacional de Energia Nuclear
C.P. 68.550, 21945-970 Rio de Janeiro, Brasil

1. Introdução

Desde a descoberta da fissão nuclear, por Hahn e Strassmann em 1939 [1], inúmeras pesquisas tem-se realizado tanto para conhecer a natureza e mecanismos deste tipo de reação nuclear quanto para aproveitar esses conhecimentos em aplicações tecnológicas, particularmente, em reatores nucleares que usam material fissionável como combustível.

Não obstante terem transcorrido mais de 50 anos desde aquela data, ainda existem muitos aspectos a serem esclarecidos, principalmente, quando novos conceitos de reatores - que usam diferentes combustíveis e neutrões de diferentes energias para o processo da fissão - requerem medidas precisas que permitam os cálculos do projeto ("design and control"), do " burn-up", do decaimento de calor, das blindagens, dosimetria, salvaguardas, etc.

Neste contexto foi concebido o presente trabalho de pesquisa que visa estudar a fissão de actinídeos por partículas carregadas e determinar, além dos rendimentos dos produtos de fissão, os esquemas de decaimento desses produtos, principalmente, os de meia vida curta, por serem os menos conhecidos em razão de se precisar de sistemas de medida mais apurados.

2. O Projeto de Pesquisa

Consiste em irradiar, no ciclotron CV-28 de Instituto de Engenharia Nuclear pertencente à Comissão Nacional de Energia Nuclear, amostras de isótopos correspondentes a elementos actinídeos - começando por urânio - com partículas carregadas tais como prótons, dêuterons, alfas e ^3He , de diferentes energias.

Os tempos de irradiação serão da ordem de segundos e a transferência dos produtos de fissão formados, da câmara de irradiação à estação de contagem, será realizada em curtíssimo período de tempo empregando-se um sistema de transporte a jato de hélio.

2.1. Determinação dos Produtos de Fissão

2.1.1. Cálculo dos Rendimentos Cumulativos

Atualmente, são dois os métodos usados para a determinação de rendimentos dos produtos de fissão (P.F.): um, por espectroscopia de massa e outro, por espectroscopia gama. Será usado o segundo método, que consiste em: medir direta e simultaneamente (sem separação química) a atividade dos diversos nuclídeos (P.F.) formados numa curta irradiação; registrar o espectro gama gerado num detetor HPGe ou Ge(Li) de alta resolução e; analisar, pacientemente, o complexo espectro com o auxílio de programas de computação.

A taxa de desintegração ou atividade de um nuclídeo, $A_{(t)}$, e seu rendimento cumulativo de fissão, Y , estão relacionados pela equação (1):

$$A_{(t)} = Y \cdot N_f \cdot F(T, t) \quad (1)$$

Onde:

N_f = número total de fissões, ou taxa de fissão, na amostra;
 T = tempo de irradiação;
 t = tempo decorrido após o fim da irradiação ("cooling time");
 $F(T, t)$ = representa a equação Bateman para o crescimento e/ou decaimento de cadeias de mais de dois membros, devendo-se considerar as constantes de decaimento, λ , para todos os membros da cadeia de massa, o "branching" isomérico e, em alguns casos, os rendimentos independentes, segundo sejam os esquemas de decaimento [2] [3] ou as relações genéticas para cada cadeia de massa.

Para a atividade A , tem-se que:

$$A = \frac{N \cdot f}{\epsilon \cdot a_\gamma} \quad (2)$$

Onde:

N = número de contagens no pico do raio gama medido;
 ϵ = eficiência do detetor para energia do pico medido;
 a_γ = abundância absoluta do raio gama medido;
 f = fator de correção para efeitos de coincidência, tempo morto, pile-up, auto absorção, etc.

O número total de fissões, N_f , pode ser determinado através de procedimentos tais como: contagem em câmara de fissão; medição de traços de fissão; espectrometria de massa numa amostra pré- e pós-irradiada ou; irradiação de uma quantidade conhecida de material físsil (N : número de átomos), com monitoração do fluxo de partículas que produzem a fissão (ϕ) e conhecimento, com boa exatidão, da seção de choque de fissão (σ). Isto é:

$$N_f = N \cdot \sigma \cdot \phi \quad (3)$$

Porém, geralmente, em lugar de se medir N_f costuma-se fazer a determinação relativa dos rendimentos tomando como referência os rendimentos de alguns P.F. Os nuclídeos de referência, ou monitores de fissão, devem ter bom rendimento de fissão o qual deve ser conhecido com a melhor precisão e exatidão, devem ter também um espectro de raios gama bem definido e, obviamente, corresponder ao mesmo ou, pelo menos, ao mais próximo sistema de fissão.

Blachot [4], aconselha usar os seguintes P.F. como padrões:
 ^{95}Zr , ^{97}Zr , ^{103}Ru , ^{131}I , ^{132}Te , ^{137}Cs , ^{140}Ba , ^{143}Ce e ^{147}Nd .

A equação (1), para o decaimento de um nuclídeo naquele imediatamente seguinte numa cadeia de massa, se escreve da seguinte maneira:

$$A_{(t)} = N_F \cdot Y(1 - e^{-\lambda T}) e^{-\lambda t} \quad (4)$$

Então ao se escolher, por exemplo, o ^{103}Ru como P.F. padrão interno, pode-se conhecer N_F medindo a atividade dele após uma irradiação de T e t conhecidos e usando o seu rendimento cumulativo, previamente, determinado e tabulado. Com este valor de N_F , será possível calcular, facilmente, os rendimentos dos demais P.F. resultantes da mesma fissão, aplicando a mesma equação (4).

Outro procedimento comparativo, denominado também de "valor R" usa monitor interno e dados de rendimentos, já conhecidos, de outro sistema de fissão próximo. Por exemplo, para encontrar o rendimento de um P.F. (x) na fissão do ^{239}Pu podem-se usar dados da fissão do sistema ^{235}U , aplicando-se as seguintes fórmulas:

$$(Y_x)_{^{239}\text{Pu}} = R \frac{(Y_{^{99}\text{Mo}})_{^{239}\text{Pu}}}{(Y_{^{99}\text{Mo}})_{^{235}\text{U}}} (Y_x)_{^{235}\text{U}} \quad (5)$$

$$R = \frac{(A_x)_{\text{Pu}}}{(A_{^{99}\text{Mo}})_{\text{Pu}}} \cdot \frac{(A_{^{99}\text{Mo}})_{\text{U}}}{(A_x)_{\text{U}}} \quad (6)$$

Os valores dos rendimentos do monitor interno ^{99}Mo nas fissões do ^{239}Pu e do ^{235}U são obtidos na literatura e as atividades de R se determinam experimentalmente [5, 6, 7].

2.1.2. Cálculo dos Rendimentos Cumulativos da Cadeia

Para se conhecer os rendimentos cumulativos de cadeia tem-se, primeiro, que converter os rendimentos cumulativos, determinados experimentalmente e calculados segundo descrito no parágrafo anterior, em rendimentos cumulativos fracionários (Y_{CF}) usando-se a sistemática para a distribuição de carga proposta por Wahl et al. [8, 9]:

$$Y_{CF} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_z} \int_{-\infty}^{z+0.5} \frac{e^{-(z-z_p)^2}}{2\sigma_z^2} dz \quad (7)$$

Onde:

- Z = número atômico;
- Z_p = carga mais provável (valor fracionário) para uma cadeia isobárica de massa (A) que corresponde ao pico da distribuição gaussiana de rendimentos fracionários, em função de Z ;
- σ = parâmetro de distribuição de carga que corresponde à FWHM da mesma distribuição gaussiana. Ver Fig.1.

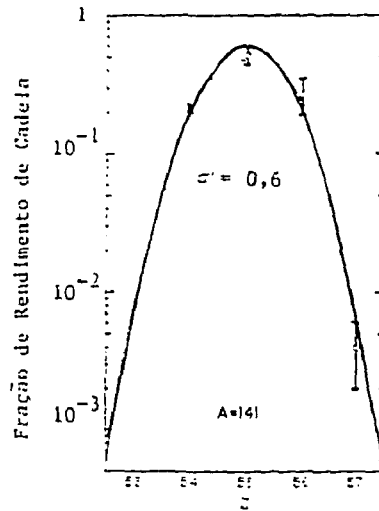


Fig. 1. Curva de distribuição de carga.

Para se achar os valores de Y_{CF} , usando a equação anterior, precisa-se conhecer σ e Z_p . O parâmetro de distribuição de carga, σ , pode ser avaliado construindo-se uma curva semelhante à da Fig. 1 no caso de haver, pelo menos, três rendimentos cumulativos fracionários determinados experimentalmente ou, caso contrário, poderá usar-se um valor que fora já empregado anteriormente num sistema de fissão o mais semelhante possível. O valor da carga mais provável, Z_p , pode ser avaliado considerando a hipótese ou postulado de distribuição de carga mais apropriado para o sistema segundo se descreve abaixo ou, quando possível, utilizando valores tabelados como os calculados por Nethaway [10,11] que mostrou que os valores de Z_p podem, empiricamente, relacionarem-se para sistemas diferentes.

Graficamente, também, é possível determinar os valores de Y_{CF} plotando alguns dados experimentais de Y_{CF} numa escala de probabilidade (equação 7) vs. $Z - Z_p$. Obtem-se assim, uma reta cuja inclinação corresponde a sigma a qual é constante para todas as cadeias de massa de um sistema de fissão [2, 3, 8]. Ver Fig. 2.

Finalmente, uma vez conhecidos os rendimentos cumulativos, Y , e os rendimentos cumulativos fracionários, Y_{CF} , os rendimentos cumulativos de cadeia (Y_A) são obtidos mediante a seguinte equação:

$$Y_A = \frac{Y}{Y_{CF}} \quad (8)$$

2.1.3. Distribuição da carga nuclear

Para explicar a distribuição da carga nuclear, ao longo de uma cadeia isobárica de massa, tem-se formulado três hipóteses:

a) A hipótese de "igual deslocamento de carga" (equal charge displacement = ECD) [12] estabelece que o deslocamento da carga mais provável, Z_p , a partir da carga mais estável, Z_A , é o mesmo para os fragmentos complementares. Esta hipótese, em geral, é válida para descrever a distribuição de carga em processos de fissão do ^{235}U por nêutrons térmicos,

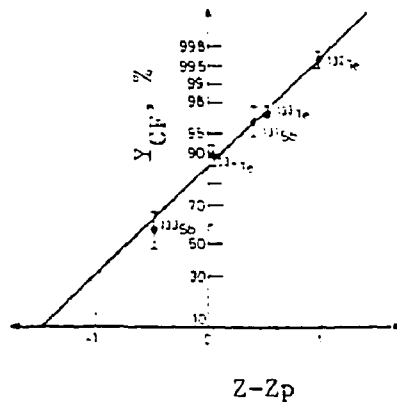


Fig. 2. Rendimentos cumulativos fracionários vs. $Z-Z_p$. [2]

foto-fissão do ^{238}U , fissão baixa e intermediária do ^{232}Th e fissão de alta energia do ^{238}U :

$$Z_p = \frac{Z_{A1} - Z_{A2} + Z_C}{2} \quad (9)$$

Onde:

Z_{A1} e Z_{A2} = cargas mais estáveis para as massas A_1 e A_2 ;
 Z_C = carga da espécie fissionável.

b) A hipótese da "distribuição sem mudança de carga" (unchange charge distribution = UCD) [13] postula que o valor de Z_p é aquele em que a relação n/p dos fragmentos é a mesma que a da espécie que se fissiona. Argumenta-se que esta divisão de carga se realiza em processos nos quais a fissão é muito rápida e, em geral, é aplicável à fissão de alta energia. O problema reside no fato de não se conhecer, para muitos sistemas, o número de nêutrons emitidos nos processos de pré- e pós-fissão e, muito menos, a maneira como esses nêutrons se dividem entre os produtos de fissão. Matematicamente, tem-se:

$$Z_p = \frac{Z_C}{A_C} \cdot (A + v_A) \quad (10)$$

Onde:

A_C = massa da espécie fissionável;
 A = massa do fragmento de fissão;
 v_A = número de nêutrons emitidos pelo fragmento de fissão.

c) A terceira hipótese é a da "energia potencial mínima" (minimum potential energy = MPE) [14] que propõe que a carga mais provável para uma cadeia isobárica de massa resultará de uma divisão na qual a energia cinética dos fragmentos que se separam é a máxima e a energia potencial, na forma de decaimento, é a mínima. Esta hipótese implica que o equilíbrio entre os

fragmentos nascentes já é alcançado antes de se produzir a cisão; porém, este modelo só têm encontrado aplicação em alguns casos particulares de fissão por partículas carregadas. Segundo McHugh Jr. et al. [15]:

$$Z_p(A_1) = \frac{Z_c(a_4 A_2^{-1} + a_3 A_2^{-1/3} - 0.5 Q^2 D^{-1})}{a_3 (A_1^{-1/3} + A_2^{-1/3}) + a_4 (A_2^{-1} + A_1^{-1}) - Q^2 D^{-1}} \quad (11)$$

Onde:

a_3 e a_4 = coeficientes dos termos em Z^2 e $(A - 2Z)^2$ na equação de massa;

Q = unidade de carga electrostática;

D = distância de separação efetiva entre os centros de carga dos fragmentos nascentes, antes da fissão.

Desde a década de 50, se realizam muitas pesquisas para estudar a fissão de diferentes lantanídeos por partículas carregadas e cujos relatórios, obviamente, serão importantes consultas. Dentre estes citam-se: fissão por prótons [16-22], fissão por dêuterons [16,17], fissão por partículas alfa [23,24], outros sistemas de fissão [24,25]. Trabalhos mais recentes encontram-se em publicações e "proceedings" de reuniões e simpósios organizados pela IAEA e em publicações dos centros nucleares de dados existentes no Mundo [26-34].

3. Montagem Experimental

Os equipamentos usados para a realização deste trabalho, basicamente, são:

1. ciclotron
2. sistema de transporte por jato de hélio
3. sistema eletrônico de detecção e contagem

3.1. Ciclotron

A máquina de irradiação é um acelerador isócrona de partículas de energia variável, modelo CV-28, adquirida da Cyclotron Corporation e se encontra instalada no prédio do Departamento de Física do IEN. Normalmente funciona produzindo os seguintes feixes de partículas com as respectivas energias garantidas: prótons (2 a 24 Mev); dêuterons (3 a 14 Mev); $^3\text{He}^{+2}$ (5 a 38 Mev) e; $^4\text{He}^{+2}$ (6 a 28 Mev).

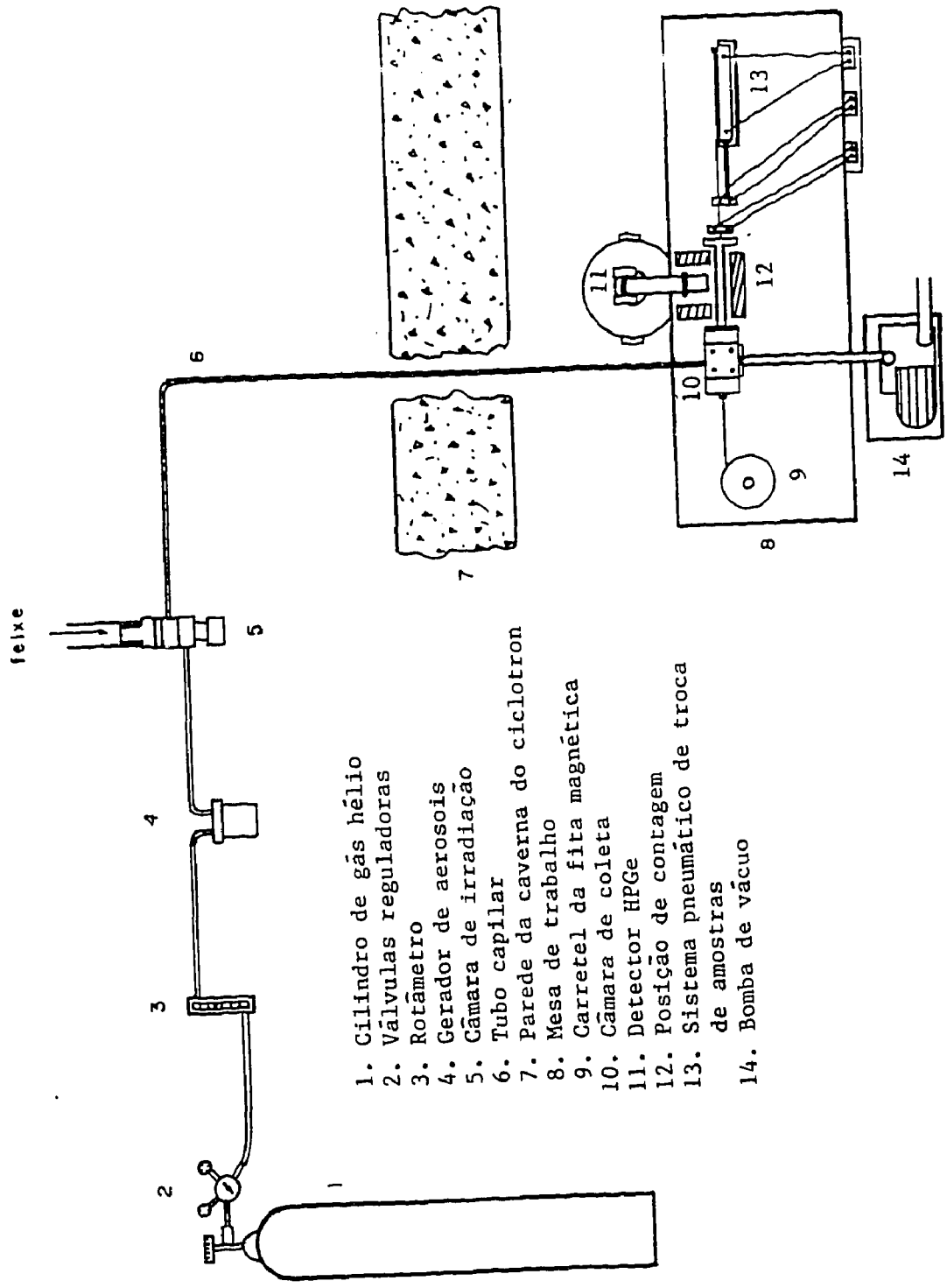
3.2. Sistema de Transporte Rápido por Jato de Hélio

Este sistema de transporte rápido, desde seu advento [35,36], é muito utilizado para o estudo de reações nucleares. Ele funciona arrastando ou levando, mediante uma corrente de gás hélio - com boa eficiência e em períodos curtíssimos de tempo - os produtos de uma reação nuclear formados num ambiente de alta radiação (máquinas de irradiação) até lugares distantes de baixo background, onde é feita a detecção e identificação.

O sistema montado no Departamento de Física do IEN, é baseado nos sistemas construídos na Universidade do Estado de Michigan [37] e na Universidade de Manchester [38]. Consta de três partes principais: sistema de irradiação do alvo; sistema de condução gasosa em tubos capilares e; sistema de coleta e troca de amostras. Ver Fig. 3.

3.2.1. Sistema de irradiação de alvo

O sistema de irradiação do alvo, é um arranjo de várias peças anulares modulares (para permitir seu intercâmbio) feitas em alumínio e que correspondem, a: 1. um colimador do feixe, que após encaixar no tubo da saída



- 1. Cilindro de gás hélio
- 2. Válvulas reguladoras
- 3. Rotâmetro
- 4. Gerador de aerossóis
- 5. Câmara de irradiação
- 6. Tubo capilar
- 7. Parede da caverna do ciclotron
- 8. Mesa de trabalho
- 9. Carretel da fita magnética
- 10. Câmara de coleta
- 11. Detector HPGe
- 12. Posição de contagem
- 13. Sistema pneumático de troca de amostras
- 14. Bomba de vácuo

Fig. 3. Esquema do sistema de transporte rápido por jato de hélio.

do ciclotron, tem seu diâmetro interno reduzido para 2,5 mm e que serve também de suporte da janela; 2. um porta alvo que consiste de um arcabouço dentro do qual se desloca, verticalmente, uma régua com cinco alvos exposto, de cada vez, um dos alvos ao feixe de partículas; 3. duas (normalmente) câmaras termalizadoras dos núcleos de recuo, através das quais chegam e saem os tubos capilares para a circulação do gás; 4. um anel isolante de teflon e; 5. um "faraday cup" para a medida da corrente integral do fluxo de partículas carregadas. Ver Fig. 4.

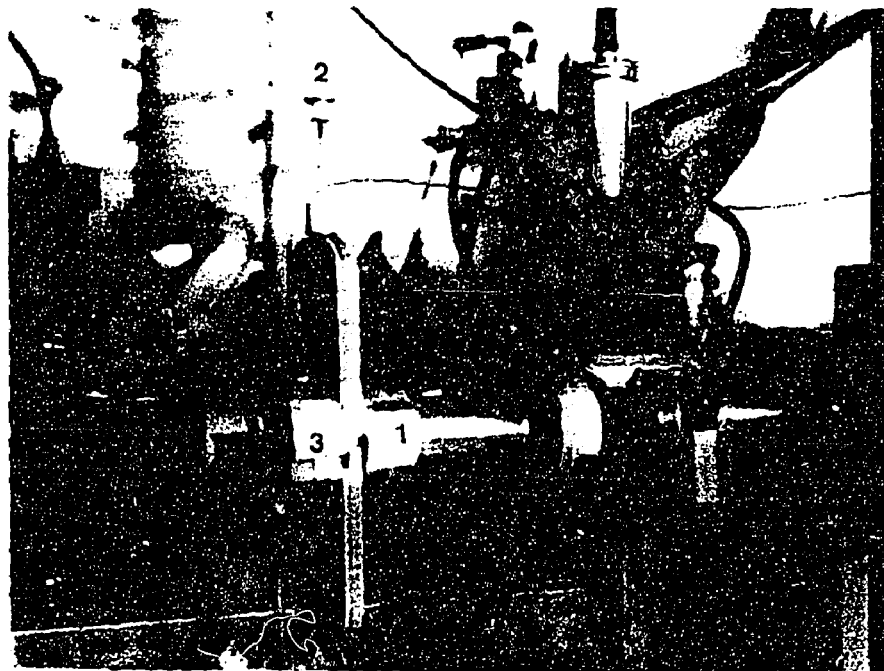


Fig. 4. Câmara de irradiação na saída 1 do ciclotron.

Nas câmaras termalizadoras os núcleos de recuo, produzidos numa reação nuclear, são freados até alcançar velocidades térmicas mediante colisões com os átomos de hélio. A presença de impurezas no gás hélio facilita o arraste dos produtos da reação já termalizados devido a fenômenos de adsorção em superfícies daí que, para aumentar a eficiência do transporte, se adicionam impurezas que podem ser nitrogênio, benzeno, etileno, vapor de água, sulfeto de di-metila ou, ainda melhor, aerossóis de substâncias tais como naftaleno, cloreto de potássio sólido, óleo de bomba de vácuo, etc. que vão formar "clusters" (cachos) e que são introduzidos na corrente gasosa através de geradores. Na pesquisa que se está descrevendo, usa-se o naftaleno.

3.2.2. Sistema de condução gasosa

No sistema de condução, o transporte dos núcleos de recuo é feito por gás hélio de "alta pureza" (99,995%) que circula em tubos capilares de polietileno de 1,5 mm. de diâmetro interno e de 15 m. de comprimento, para ir desde a caverna do ciclotron até o laboratório de contagem onde se encontra a mesa de trabalho contendo o sistema de coleta e troca de amostras. O gás hélio flui com velocidade laminar devido à aplicação de uma diferença de pressão nos tubos condutores, já que o gás entra a uma pressão de 1,5 kg/cm² e sai na extremidade final, dentro da câmara de coleta, onde a pressão é de

2 torr mantida mediante sucção com uma bomba de vácuo.

3.2.3. Sistema de coleta e troca de amostras

Na câmara de coleta, que constitui a primeira parte do sistema de coleta e troca de amostras, os produtos de fissão são depositados sobre uma fita magnética comum colocada a 2 cm da extremidade final do tubo condutor. Forma-se assim, sobre a fita, uma mancha de aprox. 5 mm que contém os P.F., com exceção dos gasosos. A taxa de arraste ou o volume de gás em circulação é de $37,5 \text{ cm}^3/\text{s}$ e o tempo de trânsito, entre os dois extremos do tubo condutor, é de 0,3 s.

Finalmente, a mancha ou depósito dos P.F. é transferida da câmara de coleta à posição de contagem por deslocamento da fita magnética efetuado por um servo-mecanismo acionado por pistões pneumáticos, movidos a ar comprimido, e controlado por computador. Em frente a posição de contagem encontra-se convenientemente posicionado o detector de radiação gama de alta resolução, que pode ser um Ga(Li) ou um HPGe. Uma descrição e funcionamento pormenorizado do sistema pode ser encontrado na tese de M.Sc. de S. C. Cabral [39].

Um problema a ser resolvido experimentalmente é o da eficiência de transporte dos P.F. no sistema descrito acima. Isto é, determinar: 1º, a porcentagem de transferência dos P.F. e; 2º, se nesta transferência existe variação em função de Z. Caso haja transporte preferencial de alguns P.F. deverão ser determinadas essas diferenças para a realização das devidas correções.

3.3. Sistema eletrônico de detecção e contagem

O sistema usado é mostrado esquematicamente no diagrama em blocos da Fig. 5. Este sistema consta de: um detector HPGe, Ortec da série GEM 25210 de 1,75 keV de resolução (FWHM) para o raio gama de 1332 keV do ^{60}Co e de uma razão pico/Compton de 62,4 para o mesmo pico do ^{60}Co ; um pré-amplificador Ortec Mod.572 e; uma placa multicanal Ortec ADCAM de 8 K de memória, acoplada a um microcomputador Nosapa AT 386 SX com disco rígido de 120 Mb e monitor Samsung VGA Graphic-Master.

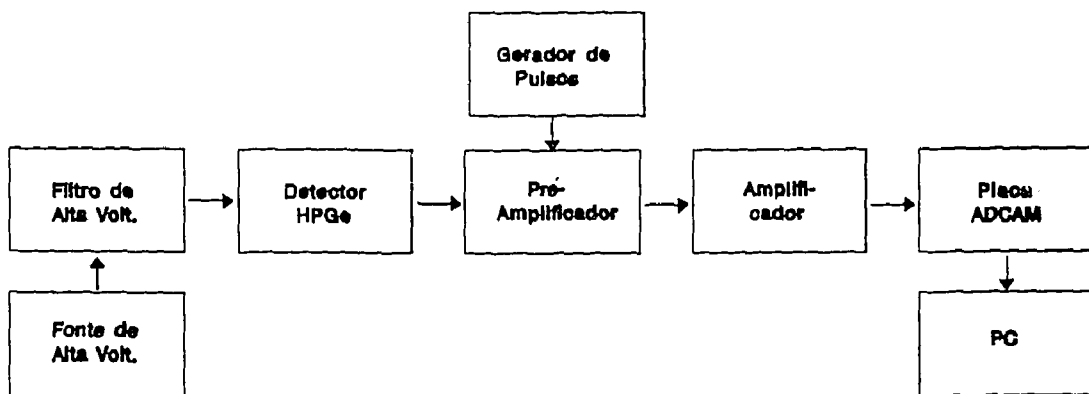


Fig. 5. Diagrama em blocos do sistema de detecção e contagem.

4. Experimentação

4.1. Irradiação do alvo

O estudo da fissão dos actínídeos por partículas carregadas foi iniciado com a pesquisa da fissão do ^{238}U por prótons de energias entre 10 e 24 MeV. Para o efeito, foram testados diferentes compostos de urânio depletado ou exaurido na forma de diversos alvos preparados para sua apropriada colocação na régua do porta alvos. Esta régua, como descrita anteriormente, possui até 5 orifícios circulares para receber o mesmo número de alvos, diretamente - em forma de plaquetas metálicas - ou de anéis de latão, quando se tratar de pó, pastilhas, depósitos em filmes finos, etc.

Os alvos usados foram: depósitos de nitrato de urânio e tetrafluoreto de urânio obtidos por evaporação em vácuo sobre folhas de alumínio ou de mylar; pastilhas de tetrafluoreto de urânio, em pó, obtidas por compressão em prensa hidráulica; pó de tetrafluoreto contido entre duas folhas de mylar; ^{238}U de 99,964 % de pureza, eletrodepositado sobre plaqueta de platina, contendo 1 mg U/cm². Os alvos que apresentaram melhores resultados foram os dois últimos.

4.2. Sistemática das irradiações e registro dos espectros

Quando da realização de testes com feixes de prótons de diferente corrente, encontrou-se que melhores resultados ofereciam os de baixa corrente. Feixes de prótons de 0,1 A de corrente proporcionavam depósitos de P.F., sobre a fita magnética, com uma atividade razoável para a contagem e análise dos espectros da radiação gama. Por outro lado, a atividade medida fora da câmara de coleta e suas vizinhanças, não excedia de 0,6 mR/h o que é importante de se ter em conta já que uma experiência leva cerca de 1 hora de irradiação e extrações contínuas.

4.2.1. Ciclos de contagem

Tendo-se em consideração que o interesse da pesquisa é a determinação dos rendimentos dos P.F. de meia vida curta e que, portanto, é necessário conseguir uma boa taxa de contagens nos depósitos dos P.F. para assegurar um razoável desvio estatístico, resolveu-se fazer as contagens das atividades - nos depósitos - em ciclos repetidos, da seguinte maneira: 1. a irradiação e a extração dos P.F. termalizados se realizam continuamente durante o tempo que dura a experiência; 2. após um determinado lapso de tempo, por exemplo de 1 minuto, o depósito ou mancha dos P.F. formado na câmara de coleta é transferido para a posição de contagem onde permanece por idêntico lapso de tempo; 3. estando o depósito, em frente do detector, se faz uma série de contagens por períodos de tempo, que na sua soma, vão constituir um ciclo; 4. para um ciclo de 1 minuto, as contagens se fazem, por exemplo, de 15 em 15 segundos, isto é, após terem transcorrido 15, 30, 45 e 60 seg.; 5. concluída a contagem do primeiro período, o espectro gama acumulado na placa multicanal (MC), é transferido para um arquivo em um disco virtual, criado na memória RAM do PC, afim de deixar livre a placa para o registro do espectro gama correspondente ao segundo período e, assim sucessivamente até se concluir o número pré-determinado de períodos e se preencher os arquivos criados e identificados como A, B, C, D, ...; 6. terminado este primeiro ciclo, por acionamento manual mediante um disparador de ar comprimido ou, de agora em diante, mediante comando do PC, se faz o deslocamento da fita magnética na qual, pelo mesmo lapso de tempo, estava-se formando um novo depósito dentro da câmara de coleta; 7. este novo depósito, agora em frente ao detector, começa a ser contado pelos mesmos 4 períodos de 15 seg. para o qual o programa manda voltar à placa MC o espectro gama do primeiro período sobre o qual será, agora, acumulado e somado o novo espectro e assim, por diante, com o 2o., 3o., 4o., ... períodos do segundo ciclo; 8. ciclo a ciclo vão se repetindo estas transferências placa MC = memória RAM do PC; 9. assim procede-se sucessivamente por 10, 20 ou mais ciclos até conseguir taxas totais de contagens que garantam uma boa estatística; 10. concluído o experimento, as taxas de contagem acumuladas nos arquivos A, B, C, D, ... da memória do PC são

gravadas no disco rígido e daí em disquetes afim de assegurar a sua conservação até o tratamento dos dados obtidos; 11. de maneira semelhante se procede no caso de ciclos com diferente espaço de tempo nos períodos.

A contagem e registro automático, tal como foram descritos, se realizam usando o programa Pulsar B - de autoria de L.T. Auler - que é uma modificação do programa Pulsar [40], ou usando o programa REAE (Rotina Especial para a Adquisição de Espectros) de autoria de L.F. Bellido [41]. A placa de automação e comando mediante o PC para o deslocamento da fita, levando o depósito de P.F. da câmara de coleta à posição de contagem, está sendo construída na Supervisão de Instrumentação e Controle do IEN.

4.3. Análise e resolução dos espectros

A identificação dos P.F. é feita através de seus respectivos raios gama e de suas meias vidas. Os espectros obtidos nas experiências são muito complexos e requerem uma minuciosa análise que está sendo realizada com ajuda do programa Quasar, de L. T. Auler [42], e do programa Gamanal do Ganaas, gentilmente cedido pela IAEA [43].

A análise e resolução dos espectros tem por finalidade a caracterização ou identificação dos raios-gama presentes e a caracterização é feita, como de hábito, pela determinação de suas energias no espectro, após calibração do mesmo com um espectro de raios gama bem conhecidos. Este espectro usado é o do ^{152}Eu , obtido com uma amostra padrão da IAEA colocada na mesma posição de contagem que o depósito dos P.F. coletado sobre a fita magnética.

Identificados os raios-gama pelas suas energias, o próximo passo é o cálculo das meias-vidas com que decairiam os nuclídeos emissores dessas radiações. Isto é feito acompanhando o decaimento das taxas de contagem dos raios gama nos espectros registrados em tempos sucessivos. Finalmente, conhecendo-se a energia e a meia-vida de decaimento pode-se, facilmente, encontrar o radionuclídeo ou P.F. formado na fissão do actínídeo irradiado, seja consultando tabelas ou seja mediante programas de computação.

5. Cálculos

Identificados os P.F. são calculados os seus rendimentos cumulativos, a partir das atividades medidas num determinado tempo e a seguir são calculados os rendimentos cumulativos fracionários e os rendimentos de cadeia, de acordo com o que já foi relatado anteriormente.

6. Referências

1. Hanh, O. and Strassmann, F. , *Naturwissenschaften*, 27 (1939) 11.
2. Dobrev, E. and Nenoff, N. , *J. Radioanal. Nucl. Chem., Art.*, 8111 (1984) 29.
3. Dickens, J. K. and McConnell, J. W., *Phys. Rev. C*, 23/1 (1981) 331.
4. Blachot, J., *Standards for Fission Yield Measurements*, *Proceed. Adv. Group Meet. on Nucl. Ref. Data*, IAEA-TECDOC-335 (1985).
5. Nair, A. G. C., Srivastava, A., Goswami, A. and Srivastava B. K., *J. Radioanal. Nucl. Chem., Art.* 91 (1985) 73.
6. Jain, H. C. and Ramaniah, M. V. *Radiochim. Acta*, 37 (1984) 63.
7. Chitamar, S. A., Jain, H. C. and Ramaniah, M. V., *Radiochim. Acta*, 42 (1987) 169.
8. Wahl, A. C., Ferguson, R. L., Nethaway, D. R., Troutner, D. E. and Wolfsberg, K., *Phys. Rev.* 126 (1962) 1112.
9. Wahl, A. C., Norris, A. E., Rouse, R. A. and William, I. C., *Proceed. 2nd. IAEA Symp. on Phys. and Chem. of Fission*, (1969) p. 813.
10. Nethaway, D. R. *Variation of Z_p in Fission with Changes in Excitation Energy and Compound Nucleus*, UCRL-51538 (1974).
11. Nethaway, D. R. *Tables of Values of Z_p , the Most Probable Charge in Fission*, UCRL-51640 (1974).
12. Glendenin, L. E., Coryell, C. D. and Edwards, R. E., *Radiochemical*

- Studies: The Fission Products, McGraw-Hill, N. Y. (1951).
13. Goeckerman, R. H. and Perlman, I., Phys. Rev. 108 (1949) 1274.
 14. Way, K. and Wigner, E. P., Phys. Rev. 73 (1948) 1318.
 15. McHugh, Jr., J. A. Rep. UCRL-10673 (1963).
 16. Freid, S. H., Anderson, J. L. and Choppin G. R., J. Inorg. Nucl. Chem., 30 (1968) 3155.
 17. Anderson, J. L., Freid, S. H. and Choppin, G. R., J. Inorg. Nucl. Chem. 30 (1968) 3167.
 18. Yaffe, L., Proceed. 2nd. Symp. on Phys. and Chem. of Fission, (1969) p. 701.
 19. Panontin, J. A. and Sugarman, N., J. Inorg. Nucl. Chem. 34 (1972) 1485.
 20. Sarkar, S. and Yaffe, L., Can. J. Chem. 54 (1976) 2349.
 21. Kudo, H., Muramatsu, H., Nakahara, H., Miyano, K. and Kohno, J., Phys. Rev. 25 (1982) 3011.
 22. Ohtsuki, T., Sueki, K., Hamajina Y., Hatsukawa, Y., Tsukada, K., Kobayashi, T., Nakahara, H., Nagame, Y. and Shinohara, N., Intern. Symp. on Adv. Nucl. Energ. Research - Near Future Chem. in Nucl. Energy Field, p.189.
 23. McHugh, J. A. and Michel, M. C., Phys. Rev. 172 (1968) 1160.
 24. Cuninghame, J. G., Goodall, J. A. B., Freeman, J. E., Newton G. W. A., Robinson, V. J., Durell, J. L., Foote, G. S., Grant, I. S. and Rathle, M., J. Phys., 6 (1980) 127.
 25. Freeman, J. E., Ahmed, A. K. A. R., Newton, G. W. A., Robinson, V. J., Gregory, K. and Grant, I. S., J. Inorg. Nucl. Chem. 38 (1976) 941.
 26. NEANDC Specialists' Meeting on Yields and Decay Data of Fission Product Nuclides, BNL-51778 (1983).
 27. Physics and Chemistry of Fission, Proceed. XVIIth. Intern. Symp. on Nucl. Phys., Gaussig, GDR, ZfK-732, (1988).
 28. Fission Yield Evaluation, Summary Report of a Specialists' Meeting, Studsvik, Sweden, IAEA-INDC(NDS)-208 (1987).
 29. Progress in Fission Product Nuclear Data, IAEA-INDC(NDS)-222 (1990).
 30. JNDC, Nuclear Data Library of Fission Products- Second Version, JAERI-1320 (1990).
 31. Nuclear Data for Neutron Emission in the Fission Process, Proceed. of a Consultant's Meeting organized by the IAEA, Vienna, Austria, IAEA - NDC(NDS)-251 (1990).
 32. Blachot, J., Brady, N. C., Filip, A., Mills, R. W., and Weaver, D. R., Status of Delayed Neutron Data - 1990, NEACRP-L-323, NEANDC-299"U" (1990).
 33. Mills, R. W., Review of Fission Product Yields and Delayed Neutron Data for the Actinides Np-237, Pu-242, Am-242, Am-243, Cm-243 and Cm-245, OECD/NEA data Bank, NEANDC-300-U (1990).
 34. Compilation and Evaluation of Fission Yield Nuclear Data, Summary Report of a Consultants' Meeting, Vienna, Austria, IAEA, INDC(NDS)-261 (1991).
 35. Friedman, A. M. and Murch, W. C., Nuc. Inst. and Methods, 17 (1962) 78.
 36. Macfarlane, R. D. and Griffin, R. D., Nuc. Inst. and Methods, 24 (1963) 461.
 37. Kosanke K. L., Edmiston M. D., Warner R. A., Firestone R.B., McHarris Wm. C. and Kelly W. H., Nuc. Inst. and Methods 124 (1975) 365.
 38. Griffiths F. and Gellately W., J. Phys. E: Sci. Instrum., 14 (1981) 29.
 39. Cabral S. C., Tese de Mestrado, COPPE-UFRJ (1983) p. 37.
 40. Nobrega J. A. W. e Auler L. T., PULSAR, Um software Interativo para Aquisição e Análise de Espectros em Computadores Pessoais, IEN - 21 (1990).
 41. L. F. Bellido, REAE: Rotina Especial para Aquisição de Espectros, IEN- Publicação Interna SUFIN (1994).
 42. Auler L. T. e Nobrega J. A. W., QUASAR, Um Programa Interativo para Análise de Espectros em Computadores Pessoais, IEN-27 (1991).
 43. GANAAS, Gamma Spectrum Analysis, Activity Calculations and Neutron Activation Analysis, Computer Manual Series, No. 3, IAEA (1991).

LEITORES INTERESSADOS NESTA PUBLICAÇÃO
FAVOR ENCAMINHAR SEUS PEDIDOS PARA
IEN-BIBLIOTECA

INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR
CAIXA POSTAL 68550
CEP 21945-970 - RIO DE JANEIRO
RJ - BRASIL