UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA E QUÍMICA DE SÃO CARLOS

"DETECÇÃO DE NÊUTRONS TÉRMICOS COM
TÉCNICA PIROELÉTRICA"

Silvério Crestana

Tese apresentada ao Instituto de Física
e Química de São Carlos, para obtenção
do título de Doutor em Ciências (Física
Aplicada)

Orientador:

Prof. Dr. Sergio Mascarenhas Oliveira

SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO - IFQSC
FÍSICA

Departamento de Física e Ciência dos Materiais

São Carlos - 1991

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA E QUÍMICA DE SÃO CARLOS

MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA TESE DE DOUTORADO DE SILVERIO CRESTANA APRESENTADA AO INSTITUTO DE FÍSICA E QUÍMICA DE SÃO CARLOS, DA UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO, EM 11/12/1991

COMISSÃO JULGADORA:

Prof. Dr. Sergio Mascarenhas Oliveira

Prof. Dr. Luiz Paulo Geraldo

Prof. Dr. Aparecido Augusto de Carvalho

Prof. Dr. Oswaldo Baffa Filho

Prof. Dr. José Antonio Eiras

Ofereço

À Denise que tanto tem me motivado
e apoiado. Pelo seu carinho, e
pelo feliz encontro que tivemos na
Itália...

Dedico

Aos meus pais

Alberto e Ligia.

E a toda a nossa família.

Homenagem

Nesta oportunidade, gostaria de homenagear o Professor Sérgio Mascarenhas. Amigo, orientador, pessoa humana e cientista, que com sua inteligência , seu talento, sua experiência, ânimo e dinamismo vem a décadas edificando escolas, criando laboratórios, ensinando ciência, formando pessoas e equipes. Sua marca é muito forte e é difícil descrevê-la em poucas linhas, mas gostaria de dizer que o seu exemplo e sua força, tem impulsionado muitos jovens, que como eu, aprenderam que além da ciência, o Sérgio Mascarenhas tem muito a ensinar.

Agradecimentos

Primeiramente, gostaria de agradecer ao Prof. Sérgio Mascarenhas, a quem muito devo, desde os tempos de graduação no Instituto de Física e Química de São Carlos. Sou grato pelo seu exemplo de pessoa e pela orientação. Muitas foram as vezes que suas palavras, seu entusiasmo e incentivo, encorajaram-me para desafios que antes não ousava enfrentá-los. Sou muito grato pelos seus ensinamentos e amizade.

Agradeço também ao Prof. Luis Paulo Geraldo do IPEN, que coorientou nosso trabalho. Sou grato pelo seu apoio desde os primeiros momentos que procurei o IPEN. Suas idéias, seu acompanhamento e orientação foram decisivos para os resultados de nosso trabalho. Muito obrigado pelo apoio e pela amizade.

Aos professores e colegas Aparecido de Carvalho, Washington L. de Barros Melo, Mauro H. de Paula e Robert Lee Zimmerman que em diversas ocasiões foram determinantes para esclarecer dúvidas, apoiar e oferecer sugestões valiosas.

Aos professores Reynaldo Pugliesi e Armando Miragem, pelo apoio, ajuda nas experiências e amizade. Ao Prof. Saxena, Dr. José Mistnik, ao sr. Joel e tantos outros pesquisadores do reator IEA-R1 que nos apoiaram.

Aos professores e amigos do Laboratório de Biofísica de São Carlos e do Departamento de Física, Prof. Otaciro, Profa. Rosemary, Prof. José Nelson, Prof. W. Bagnato, Prof. Roberto Faria, Prof. Rene Ayres, Prof. B. Gross, Prof. E. Castelano. Meu muito obrigado ao Sanches, à Sueli, à Bel, à Wladerez, à Sandra, à Rosemary, à Loreni, ao Roberto e a tantos outros que sempre me apoiaram e me ensinaram muitas coisas.

Ao secretário de Ciência, Tecnologia e Desenvolvimento Econômico do Estado de São Paulo, Dr. Luiz Carlos Delben Leite, ao Chefe de Gabinete, Dr. Paulo de Tarso Artêncio Muzy nosso agradecimento pela confiança depositada em nosso trabalho, pela amizade e apoio.

Aos pesquisadores da COPESP e do IPEN pela colaboração e amizade. Meu muito obrigado ao Contra-almirante Othon L. Pinheiros e aos responsáveis pelos departamentos e divisões da COPESP. Também, nosso agradecimento ao superintendente do IPEN, Professor Spero P. Morato.

Agradeço aos colegas da nossa secção de Licenciamento e Meio Ambiente: Badu, Rosane, Leslie, Orlando, Gioconda, Nelson, Custódio, Manoel e Sandra pela amizade, apoio e excelente convivência. Ao Pedro, ao Mai e ao Jair pela amizade e camaradagem.

Ao Silvío, meu irmão e muitos de nossos colegas como o Baffa, o Oswaldo, o Chain, o Juca, o Valim que sempre me motivaram com seus exemplos, ânimo, espírito de equipe, amizade e compromisso de luta por um país melhor.

Ao Tinho, pela excelente convivência e apoio durante este período em São Paulo.

Ao Sérgio Roberto e amigos da SAPRA pelo incentivo e apoio.

Aos amigos da Secretaria de Ciência, Tecnologia e Desenvolvimento Econômico.

Ao Ambrósio e Bruno pela ajuda nos desenhos e projeto do chopper de cádmio. Ao Valentim da Embrapa e ao Ladislau Rabello pela ajuda nos desenhos da tese.

Ao Palmeira pelos fins de semana que lhe roubei, pelo

excelente trabalho de datilografia e amizade.

Finalmente, gostaria de agradecer àquelas pessoas que estão mais próximos de nós, da família, e que muitas vezes não temos podido corresponder ao seu apoio.

Meu muito obrigado a todos!

AS PESQUISAS DESTA TESE FORAM PATROCINADAS POR:

CNPq - CONSELHO NACIONAL DE DESENVOLVIMENTO CIENTÍFICO E
TECNOLÓGICO

COPESP - COORDENADORIA DE PROJETOS ESPECIAIS. MINISTÉRIO DA
MARINHA

CNEN - COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR

IPEN - INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

EMBRAPA - EMPRESA BRASILEIRA DE PESQUISA AGROPECUÁRIA

DFCM - DEPARTAMENTO DE FÍSICA E CIÊNCIAS DOS MATERIAIS
IFQSC - USP

SCTDE - SECRETARIA DE CIÊNCIA, TECNOLOGIA E DESENVOLVIMENTO
ECONÔMICO DO ESTADO DE SÃO PAULO

RESUMO

Apresentamos nesta tese, uma nova técnica de detecção de nêutrons térmicos usando cerâmica piroelétrica. O sistema detector é constituído basicamente de uma cerâmica de PZT (lead zirconate titanate) acoplada à uma pastilha de urânio. A energia liberada na fissão do urânio dá origem a um sinal elétrico no transdutor que é amplificado por um sistema lock-in. O feixe de nêutrons que incide na pastilha de urânio foi modulada com um chopper de cádmio. Fluxos de nêutrons térmicos da ordem de 10^3 a 10^6 n/cm²s foram detectados usando pastilhas de U₃O₈ enriquecida em 20% no isótopo U²³⁵.

Esta técnica de detecção de nêutrons térmicos também poderá ser de grande importância para outras áreas de tecnologia nuclear, tais como: medida de enriquecimento de U²³⁵ em amostras de urânio; medidas da energia liberada na fissão nuclear e estudos de parâmetros térmicos de combustíveis nucleares, como por exemplo, a difusividade térmica. Além de fissão, outras reações podem ser estudadas com a presente técnica.

ABSTRACT

In this thesis a new technique for thermal neutron detection using pyroelectric ceramics is described. The detector system is basically constituted of a PZT (lead zirconate titanate) ceramic attached to an uranium disk. The energy released in the uranium fission gives rise to an electrical signal in the transducer which is amplified by a lock-in system. The neutron beam impinging on the uranium disk was modulated with a cadmium chopper. Thermal neutron fluxes within the interval 10^3 to 10^6 n/cm²s have been detected using a U₃O₈ pellet with 20% enrichment in U²³⁵.

This technique of thermal neutron detection may also be an important tool for other areas of the nuclear technology, such as: measurements of U²³⁵ enrichment in uranium samples, measurements of the energy released in nuclear fission, study of thermal parameters of nuclear fuels, for example thermal diffusivity, etc. Besides fission other nuclear reactions may eventually be also studied with the present technique.

ÍNDICE

Capítulo I

Apresentação	1
---------------------	---

Capítulo II

Piezoeletricidade e piroeletricidade

2.1 - Efeito fotoacústico	4
2.2 - Piezoeletricidade	5
2.3 - Princípios físicos	6
2.4 - Cerâmicas piezoelétricas	7
2.5 - Detectores piroelétricos	10
2.6 - Aspectos teóricos do detector piroelétrico para nêutrons térmicos	12
2.6.1 - Transdutor piroelétrico termicamente espesso e transparente à nêutrons	19
2.6.2 - Amostra de urânio semi transparente à nêutrons e termicamente espessa	20

Capítulo III

Fundamentos teóricos do processo de fissão com nêutrons

3.1 - Interação de nêutrons com a matéria	25
3.2 - Secção de choque macroscópica	26
3.3 - O mecanismo da fissão - Modelo da gota líquida	28
3.4 - Elementos físseis e férteis	33
3.5 - Produtos de fissão	34
3.6 - Energia liberada na fissão do U^{235} com nêutrons térmicos	36

3.7 - Número de átomos de urânio por unidade de volume e auto-absorção do material combustível	37
3.8 - Métodos de detecção de nêutrons	40
3.8.1 - Câmaras de fissão	40
3.8.2 - Self-powered neutron detectors (SPND)	42
3.8.3 - Técnicas de ativação	46

Capítulo IV

Aspectos experimentais

4.1 - Fonte de nêutrons e chopper de cádmio	48
4.2 - Detectores piroelétricos para nêutrons térmicos	51
4.3 - Pastilhas de urânio, lítio e boro.	53
4.4 - Câmara de vácuo	56
4.5 - Câmara desenvolvida por A. de Carvalho	57
4.6 - Amplificador lock-in	58
4.7 - Teste com laser	59
4.8 - Detector piroelétrico pulsado para nêutrons térmicos	61

Capítulo V

Resultados experimentais e discussão

5.1 - Resultados obtidos com sistema de detecção de nêutrons usando técnica piroelétrica	64
5.2 - Medidas com o PZT da EDO W. Corporation	71
5.3 - Sinal característico da tensão no piroelétrico	71
5.4 - Variação da resposta do detector com a intensidade do fluxo de nêutrons	74

5.5 - Variação da resposta do detector com a frequência de modulação do feixe de nêutrons	77
5.6 - Relação entre a fase do sinal piroelétrico em função da frequência de modulação	80
5.7 - Variação do enriquecimento isotópico	85
5.8 - Variação com a área da amostra de urânio	88
5.9 - Detector piroelétrico feito com pastilhas de boro e de lítio	89
5.10 - Resposta do detector piroelétrico pulsado	91

Capítulo VI

Conclusões

6.1 - Conclusões finais	93
6.2 - Principais característica e vantagens	94
6.3 - Aplicações e trabalhos futuros	94
6.4 - Síntese das conclusões	95

Referências Bibliográficas	97
----------------------------	----

Apêndices

1 - Desenho técnico da câmara de vácuo	103
2 - Desenho técnico do chopper	104
3 - Certificado de análise do padrão de urânio	111
4 - Certificado da metrologia do fluxo de nêutrons	112
5 - Neutronografia do detector	113

CAPÍTULO I

APRESENTAÇÃO

Nesta tese é apresentada uma nova técnica de detecção de nêutrons térmicos. Esta técnica é baseada no efeito piroelétrico, e consiste em detectar o calor liberado na fissão nuclear de uma amostra de urânio, usando um transdutor piroelétrico cerâmico.

Este trabalho dá continuidade às pesquisas em dosimetria anteriormente desenvolvidas no Grupo de Biofísica e Dosimetria do IFQSC-USP, de São Carlos, sob a orientação do Professor Sérgio Mascarenhas. Destacam-se as pesquisas com dosimetria de eletretos^(1,2) para radiação alfa⁽³⁾, beta⁽⁴⁾, gama⁽⁵⁾, raios - $x^{(3,5)}$ e nêutrons⁽⁶⁾, com ressonância paramagnética eletrônica⁽⁷⁾ e dosimetria com fotoacústica^(8,9,10), piezoeletricidade e piroeletricidade⁽¹¹⁾.

Com a colaboração do Professor Luis Paulo Geraldo e outros pesquisadores do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN - SP, utilizamos o reator IEA-RI onde desenvolvemos e testamos o detector aqui apresentado.

Como será visto nos capítulos seguintes, a técnica é bastante simples e permitiu um grande número de investigações dentro do objetivo de utilizar cerâmicas piroelétricas para detectar nêutrons térmicos.

Nesta breve apresentação, descrevemos sucintamente o conteúdo de cada capítulo.

No capítulo II fazemos uma rápida revisão sobre os trabalhos encontrados na literatura sobre os efeitos

piroelétrico e piezoelétrico e suas aplicações. Destacam-se os trabalhos de Rosencwaig-Gersho^(12,13), de Mandelis^(14,15,16), e Coufal^(17,18) além dos autores brasileiros como Mascarenhas^(8,11), Vargas⁽¹⁹⁾ e Miranda⁽¹⁹⁾, que juntamente com suas equipes constituem uma forte tradição brasileira nestas pesquisas. Destacamos neste capítulo os fundamentos teóricos da técnica piroelétrica para detecção de nêutrons. Em analogia com os estudos feitos para luz⁽¹⁵⁾, desenvolvemos as relações que fornecem o sinal piroelétrico em função da frequência de modulação do feixe de nêutrons, do coeficiente de absorção de nêutrons pela amostra de urânio, do fluxo de nêutrons e de outros parâmetros térmicos. Evidenciou-se neste estudo a possibilidade de aplicação da técnica piroelétrica não só para detecção de nêutrons, mas também para medir enriquecimento isotópico de urânio e parâmetros térmicos de combustíveis nucleares como a difusividade térmica.

No capítulo III são apresentados os fundamentos do processo da fissão nuclear e de algumas técnicas de detecção de nêutrons. Mostramos como pode-se estimar a energia nuclear liberada em uma amostra de urânio, quais os parâmetros envolvidos e a viabilidade de medir o calor de fissão com a técnica piroelétrica usada, que tem sensibilidade para medir energia de até 10^{-10}W/cm^2 .

No capítulo IV, descrevemos a bancada experimental, o canal de irradiação do reator IEA-RI, as características do feixe de nêutrons, o sistema de modulação do feixe, os detectores usados, os procedimentos de preparação das amostras, e os equipamentos eletrônicos usados nas medidas.

Apresentamos também, duas outras experiências: em

uma, substitui-se a reação (n,f) com o urânio, pela reação (n, α) do boro ou do lítio, com nêutrons térmicos. E na outra, substituímos o sistema de amplificação síncrono por um pré-amplificador. O objetivo destas experiências foi o de mostrar as possibilidades de futuros desenvolvimentos destas técnicas.

No capítulo V, fazemos uma abordagem dos resultados experimentais. Mostramos o sinal piroelétrico característico da resposta do detector, a relação sinal-ruído, a variação do sinal com o fluxo de nêutrons, com o enriquecimento das amostras, e com a frequência de modulação do feixe de nêutrons. A análise destes resultados, mostrou o bom desempenho do detector para monitoração de fluxos de nêutrons acima de 10^3 n/cm²s, usando uma amostra com 20% de U²³⁵ e frequência de 3 Hz. Destaca-se ainda, os resultados que confirmaram a possibilidade de aplicação desta técnica para medir enriquecimento isotópico e outros parâmetros como a espessura de camadas finas e a difusividade térmica de amostras de urânio.

No capítulo VI - Conclusões, apresentamos um resumo da tese, enfocando os principais resultados, as vantagens, as aplicações e as sugestões de trabalhos futuros.

CAPÍTULO II

PIEZOELETRICIDADE E PIROELETRICIDADE

2.1 - EFEITO FOTOACÚSTICO

A descoberta do efeito fotoacústico, por Alexandre Graham Bell em 1880⁽²⁰⁾, foi baseado na observação de que um sólido, quando iluminado pela luz modulada do sol, produzia efeitos sonoros, dentro de uma câmara fechada que continha a amostra sólida. Os efeitos sonoros dependiam da intensidade da luz do sol e das características físicas da amostra.

Apesar deste efeito também ter sido observado em líquidos e gases⁽²¹⁾, seu estudo foi deixado de lado por quase um século, destacando-se apenas uma pequena utilização, a partir da década de 1930, na detecção de poluentes em gases⁽²²⁾. Posteriormente, na década de 70, com a utilização do laser, esta técnica recebeu um novo impulso, principalmente com os trabalhos de Rosencwaig e Gersho⁽¹²⁾ onde o desenvolvimento de um modelo teórico explicava a maioria dos resultados experimentais. De lá para cá, o grande número de trabalhos nas diferentes áreas de aplicações pode ser visto no livros publicados^(13,14) e nos trabalhos de revisão^(19,23). Hoje em dia, esta técnica é mais genericamente denominada de espectroscopia fototérmica, pois a detecção do sinal pode ser feita com detectores piroelétricos⁽¹⁵⁾ e piezoelétricos⁽²⁴⁾ que serão discutidos adiante. Resumidamente, podemos dizer que pelo

fato de ocorrer uma variação de temperatura na amostra, como instância anterior ao surgimento de efeitos sonoros, a fotoacústica, a piezoeletricidade e a piroeletricidade estão baseadas em fenômenos comuns. Adiante, veremos onde ocorrem diferenciações mais significativas entre estes processos.

Para maiores detalhes sobre mecanismos e modelos teóricos de geração do sinal fotoacústico, sugerimos o trabalho de revisão efetuado por Norberto Cella⁽²⁵⁾, além do trabalho de revisão sobre efeitos fototérmicos de Vargas e Miranda⁽¹⁹⁾.

2.2 - PIEZOELETRICIDADE

A piezoeletricidade descreve o fenômeno da geração de cargas elétricas em um material como resposta a um esforço mecânico aplicado. A mudança nas dimensões do material, é proporcional a um campo elétrico aplicado. A exigência para uma interação piezoelétrica ocorrer é a existência de polaridade em certos eixos do material^(26,27).

O efeito piezoelétrico já era conhecido desde o século XIX, mas a utilização prática como transdutor só apareceu no decorrer da Primeira Guerra Mundial, quando cristais de quartzo foram úteis na localização de submarinos. A partir daí outros materiais cristalinos foram usados, tais como sal de Rochelle, sulfato de lítio^(28,29) e outros cristais sintéticos.

A cerâmica piezoelétrica foi descoberta simultaneamente nos EUA, URSS e Japão, quando a escassez e alto custo do cristal de quartzo fez com que esses países iniciassem estudos com outros materiais, principalmente misturas de óxido

de bário e óxido de titânio. Foi a partir daí que o notável desenvolvimento das cerâmicas policristalinas pode ser alcançado, sendo uma das áreas mais pesquisadas atualmente. A característica básica desses materiais é a ferroeletricidade. O processo de polarização faz com que esse material policristalino ferroelétrico se torne piezoelétrico.

Esta descoberta abriu um novo campo de pesquisa em cerâmicas piezoelétricas e suas aplicações. Destes estudos surgiram os "niobatos" e os "titanatos zirconatos", sendo que o titanato zirconato de chumbo (PZT) é a cerâmica com melhores propriedades: característica piezoelétrica forte e estável.

2.3 - PRINCÍPIOS FÍSICOS

Das 32 classes cristalográficas existentes, o efeito piezoelétrico ocorre em 20 classes de cristais que não possuem centro de simetria. Deste grupo, faz parte um subgrupo de 10 classes cristalográficas que possuem um único eixo polar, isto é, um momento de dipolo elétrico. Estes cristais^(29,30) podem gerar além das cargas piezoelétricas, devido ao tensionamento mecânico (stress), outras cargas elétricas devido ao aquecimento não uniforme, produzindo uma mudança na magnitude do dipolo pela diferença de temperatura. Este efeito é conhecido como piroeletricidade. Pode-se notar que todos os cristais piezoelétricos podem gerar cargas elétricas sob um aquecimento não uniforme.

Os cristais piezoelétricos sob condições livres, embora possuam dipolos internos, estão arrançados em posições que ocorrem compensações e assim não existe momento de dipolo

na rede cristalina. Porém, se o cristal é submetido à um esforço (tensão mecânica) em uma dessas direções, alguns dipolos são induzidos dando origem a uma rede de momentos de dipolos.

Analogamente ao ferromagnetismo, define-se cristais ferroelétricos. Nestes, a orientação dos momentos de dipolos elétricos espontâneos, pode ser modificada com a aplicação de um campo elétrico suficientemente forte. De forma geral, os materiais ferroelétricos possuem alta constante dielétrica e dependendo da composição, têm um alto ponto de Curie, que é uma temperatura limiar onde todo ferroelétrico apresenta piezoeletricidade e piroeletricidade.

2.4 - CERÂMICAS PIEZOELÉTRICAS E PIROELÉTRICAS

Cerâmicas piezoelétricas são materiais constituídos por um conjunto de retículos cristalinos ferroelétricos, que estão aleatoriamente orientados. Estes cristalitos, geralmente surgem de uma reação de estado sólido entre vários óxidos, que depois de receberem um tratamento térmico em altas temperaturas, tornam a cerâmica isotrópica, mas não piezoelétrica porque possuem domínios com orientação e estrutura aleatória. Estes domínios constituem regiões dentro de cada cristalito onde os dipolos elétricos possuem orientação comum. O material cerâmico para ser piezoelétrico, deve receber um tratamento de polarização, que consiste em aplicar um campo elétrico superior ao campo coercitivo em uma dada direção previamente escolhida. Dessa forma, o eixo polar dos cristalitos são reorientados na direção do campo elétrico

externo, como pode ser observado na figura 1.

Depois da cerâmica ser retirada do campo elétrico de polarização, os dipolos não podem retornar facilmente às suas posições originais, e a cerâmica possuirá assim, uma polarização preferencial permanente, como é o caso de um monocristal piroelétrico. Além disso, ela deverá apresentar uma resposta linear, tanto para um campo elétrico aplicado, quanto para solicitações mecânicas, desde que tais grandezas tenham magnitudes inferiores às necessárias para quebrar a orientação dos domínios.

Nos materiais cerâmicos assim produzidos, não é possível entretanto, conseguir um alinhamento completo do dipolo elétrico, como no caso de um monocristal. A eficiência do tratamento de polarização para alinhamento dos dipolos é indicada pelo valor de polarização.

Não Polarizada **Domínio Vetorial** **Polarizada**

Fig. 1 - Alinhamento dos domínios através do tratamento de polarização.

Atualmente o material cerâmico mais adequado e mais utilizado como material piroelétrico ou piezoelétrico, é o titanato zirconato de chumbo - PZT. Existem várias versões comerciais que se destinam a campos específicos de aplicação. Isto não ocorre por acaso, acontece porque o PZT possui um forte efeito piezoelétrico e alto ponto de Curie. Além dessa, muitas outras propriedades podem ser obtidas através de pequenas alterações na composição básica desta cerâmica, que é representada por $(\text{PbTiO}_3)_{0,45}(\text{PbZrO}_3)_{0,55}$.

Atualmente, as pesquisas em cerâmicas evoluíram bastante, e já existem novos materiais denominados compósitos

piezoelétricos, que formam uma nova família de materiais piezoelétricos. Esses materiais são constituídos por uma fase mista entre cerâmica piezoelétrica e polímeros, nos quais o papel da cerâmica é produzir o efeito piezoelétrico enquanto a fase polimérica reduz a densidade e permissividade, e aumenta o coeficiente de elasticidade.

Mais recentemente Coufal^(17,18) e Mandelis^(15,31,32) usaram filmes finos piroelétricos de difluorito de polivinilideno (PVDF ou PVF₂) para detectar absorção óptica, relaxação não radiativa, e processos de conversão de energia em materiais condensados.

2.5 - DETECTORES PIROELÉTRICOS

Para materiais piroelétricos submetidos à um campo térmico, podemos definir o coeficiente piroelétricos p como sendo a derivada parcial da polarização em relação à temperatura.

$$p = \frac{\partial P}{\partial T} \text{ Cm}^{-2}\text{k}^{-1} \quad (1)$$

Para sensores piroelétricos típicos como o PZT, o titanato de bário, o niobato de lítio e o sulfato de triglicina, os valores de p , em temperatura ambiente, variam de 10^{-3} a $10^{-4} \text{ Cm}^{-2}\text{k}^{-1}$.

Este efeito piroelétrico, pode ser usado para construir detectores de radiação muito sensíveis, capazes de medir níveis de potência de até 10^{-10} W (Roundy and Byer⁽³³⁾ - 1973). Muitos trabalhos descrevem as aplicações destes

dispositivos para: detectores infravermelhos (Astheimer and Swarz⁽³⁴⁾ - 1968; Beerman⁽³⁵⁾ - 1967; Putley⁽³⁶⁾ - 1970), detectores de fluxo de partículas neutras (Berkner et all⁽³⁷⁾ - 1968; M.W. Geis et all⁽³⁸⁾ - 1975), dosímetro de radiação - X (S. Mascarenhas et all⁽⁸⁾ - 1984; M.H. Paula et all⁽⁹⁾ - 1984; A. A. Carvalho⁽¹⁰⁾ - 1985), detector de radiação γ (Strakouskaya et al - 1976)⁽³⁹⁾, para detector de feixe de prótons (Cruvinel et all⁽⁴⁰⁾ - 1991), e recentemente desenvolvemos uma nova técnica para detecção de nêutrons térmicos com cerâmica PZT (S. B. Crestana et all⁽¹¹⁾ - 1991).

Como os detectores piroelétricos apresentam resposta proporcional à taxa de variação da temperatura, diferentemente de outros detectores térmicos que apresentam resposta proporcional à temperatura, detectores piroelétricos são mais rápidos que os termistores ou termopares.

Estes detectores também se destacam pelo baixo custo, estabilidade, alta sensibilidade, área sensível grande e simplicidade mecânica.

O desempenho do detector piroelétrico é muito próximo ao de um detector térmico ideal, sendo a mínima potência detectável, limitada pelos ruídos de temperatura.

Podemos representar um detector piroelétrico por um circuito como representado na figura 2 e constituído simplesmente por uma fonte de corrente i em paralelo com uma capacitância C e um resistência R , o sinal observado neste caso é produzido pela carga ΔQ gerada pela variação da temperatura do piroelétrico.

Fig. 2 - Circuito equivalente de um detector piroelétrico

2.6 - ASPECTOS TEÓRICOS DO DETECTOR PIROELÉTRICO PARA NEUTRONS TÉRMICOS

Baseado na teoria de Rosencwaig e Gersho⁽¹²⁾ e mais recentemente na teoria proposta por Mandelis e Zver⁽¹⁵⁾ para espectroscopia fototérmica de sólidos, apresentaremos a seguir os conceitos básicos envolvidos no processo de detecção de nêutrons térmicos pelo detector piroelétrico.

Uma amostra sólida de urânio (U_3O_8 ou UO_2) de espessura L_s é irradiada por um feixe Φ_0 de nêutrons térmicos modulado por um chopper com frequência angular ω_0 .

O urânio tem coeficiente de absorção β_s que varia com o grau de enriquecimento do isótopo físsil U^{235} , e está acoplado a um transdutor piroelétrico de zirconato titanato de chumbo (PZT_4) com coeficiente piroelétrico p . Como a interação de nêutrons térmicos com o PZT é desprezível devido a baixa secção de choque, o seu coeficiente de absorção é $\beta_p = 0$.

O sistema amostra-transdutor está fixado no suporte de alumínio, figura 3, que apresenta uma baixa secção de choque (1,72 b), para reações com nêutrons térmicos.

A interação dos nêutrons com o urânio - U^{235} , produz

fissão nuclear liberando energia E , na forma de calor que se difunde para o piroelétrico variando assim, a sua temperatura. Este aumento da temperatura produz uma diferença de potencial entre a superfície anterior e posterior do transdutor devido ao efeito piroelétrico. Esta tensão $V(\omega, \beta_s)$ gera um sinal elétrico, que é medido no circuito externo como mostra a figura 3.

Fig. 3 - Sistema neutronpiroelétrico. Vista esquemática dos principais parâmetros envolvidos.

A carga acumulada em um transdutor piroelétrico, devido à mudança de temperatura ΔT é dada por:

$$Q = p\Delta T \quad (2)$$

A cerâmica piroelétrica usada tem espessura L_p , e

está exposta a um campo de temperatura $T(x)$ que varia senoidalmente, de acordo com a modulação do feixe de nêutrons, logo a carga média induzida pelo efeito piroelétrico é:

$$\begin{aligned} \langle Q \rangle &= p \langle \Delta T \rangle = (p / L_p) \operatorname{Re} \left(\int_{\substack{\text{esp.} \\ \text{mat.} \\ \text{piroelét.}}} T(x) e^{i\omega_0 t} dx \right) = \\ &= (p / L_p) \operatorname{Re} \left[\left(\int_{\text{esp.}} T(x) dx \right) e^{i\omega_0 t} \right] \end{aligned} \quad (3)$$

A tensão média no piroelétrico é dada por:

$$V = \langle Q \rangle / C \quad (4)$$

onde C é a capacitância por unidade de área do transdutor. Para duas placas paralelas carregadas, de espessura L_p e constante dielétrica K , a equação (4) torna-se:

$$V(\omega_0) = \left[\frac{p L_p \theta_p(\omega_0)}{K \varepsilon_0} \right] \exp(i\omega_0 t) \quad (5)$$

onde

$$\theta_p(\omega_0) \equiv \frac{1}{L_p} \int_{\text{esp. } L_p} T_p(\omega_0, x) dx \quad (6)$$

e ε_0 é a constante de permissividade do vácuo ($8,85418 \times 10^{-12}$ C/Vm). $T_p(\omega_0, x)$ é o campo de temperatura no volume do transdutor piroelétrico, gerado pelo processo de condução do

calor de fissão da amostra de urânio para o piroelétrico.

Para a geometria da figura 3, a temperatura $T_p(\omega_0, x)$ pode ser encontrada com a solução das equações de transporte térmico unidimensional. Considerando o coeficiente de absorção β_s , e supondo que: $\beta_p = 0$, que o espalhamento de nêutrons é desprezível, e que também é desprezível a perda de calor na interface da amostra/transdutor e nas laterais da amostra, as equações de difusão de calor têm a forma

No ar

$$\frac{d^2}{dx^2} T_g(\omega_0, x) - \left(\frac{i\omega_0}{\alpha_g} \right) T_g(\omega_0, x) = 0 ; \quad x \geq 0 \quad (7a)$$

Na amostra de urânio:

$$\begin{aligned} \frac{d^2}{dx^2} T_s(\omega_0, x) - \left(\frac{i\omega_0}{\alpha_s} \right) T_s(\omega_0, x) = \\ = - (\Phi_0 \beta_s / 2k_s) \exp(\beta_s x); \quad -L_s \leq x \leq 0 \end{aligned} \quad (7b)$$

No transdutor piroelétrico

$$\frac{d^2}{dx^2} T_p(\omega_0, x) - \left(\frac{i\omega_0}{\alpha_p} \right) T_p(\omega_0, x) = 0 \quad (7c)$$

$$-L_p \ll x \ll L_s$$

Considerando que o transdutor piroelétrico seja termicamente espesso, não haverá difusão de calor para o suporte de alumínio, pois todo o calor será absorvido no sensor piroelétrico.

Nas equações (7a) - (7c) foi suposta uma dependência harmônica de todas as temperaturas:

$$T_j(\omega_0, x; t) = T_j(\omega_0, x) e^{i\omega_0 t}; \quad j = (g, s, p) \quad (8)$$

Os seguintes parâmetros também foram definidos:

α_j - a difusividade térmica de $j = (g, s, p)$

k_j - a condutividade térmica de $j = (g, s, p)$

E - energia liberada em cada reação (n,f)

Φ_0 - é a fluxo de nêutrons térmicos incidente na amostra

As equações (7a) - (7c) estão acopladas pelas condições de contorno onde a temperatura e o fluxo de calor apresentam continuidade em todas as interfaces:

$$T_g(0) = T_s(0) \quad \text{fronteira amostra/ar} \quad (9a)$$

$$k_g \frac{dT_g}{dx} = k_s \frac{dT_s}{dx} \bigg|_{x=0} \quad \text{fronteira amostra/ar} \quad (9b)$$

$$T_s(-L_s) = T_p(-L_s) \quad \text{fronteira amostra/transdutor} \quad (9c)$$

$$k_s \frac{dT_s}{dx} = k_p \frac{dT_p}{dx} \bigg|_{x=-L_s} \quad \text{fronteira amostra/transdutor} \quad (9d)$$

As soluções completas e complexas para as equações (7) são:

Para o ar:

$$T_g(\omega_0, x) = C_1 \exp(-\sigma_g x) \quad (10a)$$

Para o urânio:

$$T_s(\omega_0, x) = \left(\frac{\Phi_0 E \beta_s}{2k_s(\sigma_s^2 - \beta_s^2)} \right) \exp(\beta_s x) + \\ + C_2 \exp(\sigma_s x) + C_3 \exp(-\sigma_s x) \quad (10b)$$

Para o sensor piroelétrico

$$T_p(\omega_0, x) = C_4 \exp(\sigma_p x) \quad (10c)$$

onde

$$\sigma_j = -(1 + i) a_j \quad \text{e} \quad a_j = (\omega_0 / 2 \alpha_j)^{1/2} \quad (11)$$

Lembrando que a quantidade de interesse é a função para o campo de temperatura $T_p(\omega_0, x)$, equação (10c).

Podemos interpretar as equações (10a) - (10c) relacionando-as com os campos de temperatura ilustrados na figura 4, onde as constantes C_2 e C_4 referem-se ao calor transferido no sentido urânio - PZT e C_1 e C_3 referem-se ao calor refletido ou difundido em sentido contrário. Observe que, como o transdutor piroelétrico é termicamente espesso, e também porque não há geração de calor no transdutor, não há reflexão na fronteira transdutor / suporte de alumínio, e a temperatura

do transdutor na fronteira $-(L_s + L_p)$ é a mesma do suporte.

Fig. 4 - Campo de temperatura no sistema neutronpiroelétrico

O valor complexo $V(\omega_0)$ pode ser interpretado mais facilmente, escrevendo seus componentes em notação de coordenadas polares, introduzindo fatores de amplitude e fase:

$$V(\omega_0) = |V(\omega_0)| \exp \left\{ i \left[\omega_0 t - \phi(\omega_0) \right] \right\} \quad (12)$$

Em analogia ao modelo de classificação adotado por Rosencwaig e Gersho⁽¹²⁾, faremos algumas aproximações

considerando os valores relativos de tres grandezas pertinentes à amostra e ao transdutor, que são:

- (i) espessura de L_s ou L_p
- (ii) comprimento de absorção óptica (nêutrons no caso) μ_{β_s} definido como

$$\mu_{\beta_s} \equiv \beta_s^{-1} \quad (13)$$

- (iii) comprimento de difusão térmica μ_s ou μ_p definidos pela equação (11):

$$\mu_j \equiv a_j^{-1} = (2\alpha_j / \omega_0)^{1/2} \quad (14)$$

Com este modelo, podemos classificar o transdutor piroelétrico como transparente à nêutrons ($\beta_p = 0$) e termicamente espesso ($L_p \gg \mu_p$), e a amostra de urânio como semitransparente à nêutrons ($\mu_{\beta_s} > L_s$) e termicamente espessa ($\mu_s \ll L_s$).

2.6.1 - TRANSDUTOR PIROELÉTRICO TERMICAMENTE ESPESSO E TRANSPARENTE À NEUTRONS

Define-se:

$$b_{mn} \equiv \frac{k_m a_n}{k_n a_n}; \quad r_j \equiv \frac{\beta_j}{\sigma_j} \quad (15)$$

Para o caso do transdutor termicamente espesso e transparente a nêutrons, temos $\exp(-\sigma_p L_p)$ e $b_{bp} = 0$, pois não há difusão de calor até na fronteira do transdutor com o

suporte e a equação para temperatura no piroelétrico, proposta por Mandelis⁽²⁰⁾ é:

$$V(\omega_0, \beta) = \frac{p\Phi_0 E}{2k\epsilon} \left(\frac{\beta_s}{k_s(\beta_s^2 - \sigma_s^2)\sigma_p} \right) \cdot$$

$$\left[\frac{2(b_{sg}r_s + 1) - \left[(r_s + 1)(b_{sg} + 1)e^{\sigma_s L_s} + (r_s - 1)(b_{sg} - 1)e^{-\sigma_s L_s} \right] e^{-\beta_s L_s}}{(b_{sg} + 1)(b_{ps} + 1)e^{\sigma_s L_s} + (b_{sg} - 1)(b_{ps} - 1)e^{-\sigma_s L_s}} \right] \quad (16)$$

A equação (16) demonstra explicitamente que o sinal piroelétrico depende dos parâmetros térmicos e da interação de nêutrons com a amostra de urânio. Esta dependência complexa, pode ser melhor interpretada considerando casos especiais de amostra de urânio.

2.6.2 - AMOSTRA DE URÂNIO SEMI TRANSPARENTE A NEUTRONS E TERMICAMENTE ESPESSA

À medida em que se aumenta o enriquecimento do isótopo U^{235} na amostra de urânio, β_s aumenta tornando-a cada vez mais opaca a nêutrons. A amostra é termicamente espessa, logo o comprimento de difusão térmica é bem menor que a espessura da amostra. Assim, se acompanharmos o campo de temperatura gerado pela fissão dos núcleos U^{235} que estão mais distantes que μ_s do sensor, observamos que ele não contribuirá para variação de temperatura do piroelétrico. Observe a figura 5.

Fig. 5 - Efeito da auto-absorção de nêutrons na amostra e fatia útil para geração de calor na amostra de urânio.

Desta forma, devemos fazer duas correções: uma na espessura da amostra, pois a espessura da amostra que está contribuindo para aquecer o sensor piroelétrico é ℓ_s e não L_s . A segunda é em relação ao fluxo de nêutrons, pois a camada de urânio que não contribui para aquecer o piroelétrico, está atenuando o feixe, de modo que o fluxo de nêutrons em $-(L_s - \ell_s)$ é:

$$\Phi'_0 = \Phi_0 \exp\left[-\beta_s (L_s - \ell_s)\right] \quad (17)$$

Em decorrência da situação descrita anteriormente, a

fronteira urânio/ar (b_{sg}) deixa de ter importância para o campo da temperatura no piroelétrico. A fronteira urânio/ar é substituída pela fronteira em $-(L_s - \ell_s)$, logo:

$$b_{sg} \equiv b_{ss} \equiv 1 \quad (18)$$

Substituindo (18) na equação (16) temos:

$$\begin{aligned} V(\omega_0, \beta) &= \frac{p\Phi'_0 E}{2\varepsilon} \left(\frac{\beta_s}{k_s(\beta_s^2 - \sigma_s^2)\sigma_p} \right) \left[\frac{(r_s + 1)e^{-\sigma_s \ell_s} - (r_s + 1)e^{-\beta_s \ell_s}}{b_{ps} + 1} \right] = \\ &= \frac{p\Phi'_0 E}{2\varepsilon} \left(\frac{\beta_s}{k_s(\beta_s^2 - \sigma_s^2)\sigma_p} \right) \left[\frac{r_s + 1}{b_{ps} + 1} \left(e^{-\sigma_s \ell_s} - e^{-\beta_s \ell_s} \right) \right] \end{aligned} \quad (19)$$

onde observa-se:

onda térmica sendo atenuada: $e^{-\sigma_s \ell_s}$

onda neutrônica sendo atenuada: $e^{-\beta_s \ell_s}$

Fazendo:

$$\frac{\beta_s}{k_s(\beta_s^2 - \sigma_s^2)} = \frac{\beta_s}{k_s \sigma_s^2 (r_s^2 - 1)} = \frac{\beta_s}{k_s \sigma_s^2 (r_s - 1)(r_s + 1)} \quad (20)$$

a equação (19) fica simplificada à:

$$V(\omega_0, \beta) = \frac{p\Phi'_0 E}{2\varepsilon} \left(\frac{\beta_s}{k_s \sigma_s^2 (r_s - 1) \sigma_p} \right) \frac{e^{-\sigma_s \ell_s} - e^{-\beta_s \ell_s}}{(b_{ps} + 1)} \quad (21)$$

Se considerarmos que a fatia útil seja termicamente espessa (considerando também baixas frequências de modulação), ($\mu_s < \ell_s$ e $\mu_s \ll \mu_{\beta s}$) pode-se fazer aproximações na equação (21):

$$\exp \left(-\sigma_s \ell_s \right) \cong 0 \quad (22)$$

Para o caso em que a absorção térmica é maior que a absorção "óptica", ou seja, a amostra é pouco enriquecida (β_s é pequeno)

$$|r_s| \ll 1; \quad e^{-\sigma_s \ell_s} \ll e^{-\beta_s \ell_s}; \quad b_{ps} \gg 1 \quad (22)$$

teremos:

$$\begin{aligned} V(\omega_0, \beta) &= \frac{p\Phi'_0 E}{2\varepsilon} \left(\frac{r_s}{k_s \sigma_s^2 (-1) \sigma_p} \frac{-e^{-\beta_s \ell_s}}{(b_{ps} + 1)} \right) = \\ &= \frac{p\Phi'_0 E}{2\varepsilon} \frac{\beta_s}{k_s \sigma_s^2 \sigma_p} \frac{e^{-\beta_s \ell_s}}{(b_{ps} + 1)} \end{aligned} \quad (24)$$

Substituindo Φ'_0 , equação (17) na equação (24), teremos:

$$V(\omega_0, \beta) = \frac{p\Phi_0 E}{2\varepsilon} \frac{\beta_s}{k_s \sigma_s^2 \sigma_p} \frac{e^{-\beta_s L_s}}{(b_{ps} + 1)} \quad (25)$$

Nesta equação, a dependência do sinal com a frequência é de $\omega^{3/2}$.

Para o caso em que $r \gg 1$; $\beta_s/\sigma_s \gg 1$, quando a amostra é bastante enriquecida, temos:

$$V(\omega_0, \beta) = \left(\frac{p\Phi'_0 E}{2\varepsilon} \right) \left[\left(\frac{r_s}{k_s \sigma_s (r_s - 1) \sigma_p} \right) \left(\frac{e^{-\sigma_s \ell_s} - e^{-\beta_s \ell_s}}{b_{ps} + 1} \right) \right] \quad (26)$$

$$V(\omega_0, \beta) = \left(\frac{p\Phi'_0 E}{2\varepsilon} \right) \frac{e^{-\sigma_s \ell_s}}{k_s \sigma_s \sigma_p (b_{ps} + 1)} \quad (27)$$

Neste caso, a dependência do sinal é com o inverso da frequência.

CAPÍTULO III

FUNDAMENTOS TEÓRICOS DO PROCESSO DA FISSÃO COM NÊUTRONS

3.1 - INTERAÇÃO DE NEUTRONS COM A MATÉRIA⁽⁴¹⁾

Para compreensão de fenômenos que ocorrem nas reações de combustíveis nucleares, é importante compreender como se dá a interação de nêutrons com núcleos atômicos.

Como os nêutrons são eletricamente neutros, eles não são afetados pelos elétrons dos átomos ou pela carga positiva do núcleo. Como consequência os nêutrons passam através da nuvem eletrônica e interagem diretamente com o núcleo. Dos vários tipos de interação dos nêutrons com os núcleos tem-se:

a) ESPALHAMENTO: O nêutron incide em um núcleo e é espalhado por este em uma direção qualquer. Se a energia cinética total do sistema (núcleo mais nêutron) é conservada, o espalhamento é elástico.

Pode ocorrer que, como resultado do espalhamento, o núcleo seja deixado em um estado de energia mais elevado (estado excitado), e neste caso, haverá uma diminuição de energia cinética total do sistema e o espalhamento é dito inelástico. O núcleo excitado neste caso decai por emissão de um raio gama.

Em ambos os casos, porém, a composição isotópica do núcleo não é alterada.

O espalhamento elástico é simbolizado por (n,n) e o inelástico por (n,n') . No espalhamento o nêutron que emerge não

deve ser necessariamente o mesmo que incidiu no núcleo.

b) ABSORÇÃO: O nêutron incide num núcleo e é absorvido por êle, mudando a composição isotópica do material. O resultado da absorção nem sempre é o mesmo. Pode ser seguida pela emissão de outras partículas nucleares como próton - (n,p) , alfa - (n,α) , dois ou três nêutrons - $(n,2n)$ e $(n,3n)$, ou ainda pela emissão de radiação gama, (n,γ) , pelo núcleo composto (núcleo inicial + nêutron incidente).

A reação (n,γ) é denominada captura radioativa e ocorre com mais frequência que as reações (n,p) , (n,α) , $(n,2n)$ e $(n,3n)$, as duas últimas só ocorrendo com nêutrons altamente energéticos (≥ 15 MeV).

Um outro tipo importante de reação por absorção de nêutrons é a reação de fissão, representada por (n,f) . O núcleo composto, normalmente de alto número atômico, se divide em dois grandes fragmentos emitindo em média 2 a 3 nêutrons simultaneamente, bem como radiação gama e outros produtos. Nesta reação há considerável liberação de energia (≈ 200 MeV).

3.2 - SECÇÃO DE CHOQUE MACROSCÓPICA

Consideremos um feixe de nêutrons monoenergéticos de intensidade Φ_0 nêutrons/cm².s que atinge um alvo de área A cm² e densidade nuclear N núcleos/cm³, como representado na figura 7:

Fig. 7 - Nêutrons atingindo um alvo de área A.

O número de núcleos no elemento de volume $A dx$ é $N A dx$. Quando o feixe de nêutrons atravessa o alvo, alguns dos nêutrons interagem com os núcleos e são portanto removidos do feixe (por absorção ou espalhamento).

A fração de nêutrons removidos do feixe após a passagem por dx é igual à razão entre a soma das áreas efetivas (secções de choque) dos núcleos, $\sigma N A dx$, pela área total do alvo $A^{(42)}$.

Portanto, se na camada entre x e $x + dx$ a intensidade do feixe é reduzida de Φ para $\Phi - d\Phi$, temos:

$$d\Phi/\Phi = \sigma (N.A.dx)/A = \sigma N dx \quad (29)$$

ao integrarmos a equação temos:

$$\Phi = \Phi_0 \exp(-\sigma N x) \quad (30)$$

A intensidade decresce exponencialmente com a

distância, no interior do alvo.

O produto $N\sigma$, que é igual à secção de choque total de todos os núcleos presentes em um volume unitário, é denominada secção de choque macroscópica Σ , e fornece a probabilidade, por unidade de comprimento, com que o nêutron sofre qualquer tipo de interação. Sua unidade é cm^{-1} . Sendo,

$$\Sigma = N\sigma \quad (31)$$

A equação (30) pode ser escrita como:

$$\Phi = \Phi_0 \exp(-\Sigma x) \quad (32)$$

Temos também :

$$\Sigma_f = \sigma_f N = \text{secção de choque de fissão}$$

$$\Sigma_s = N \sigma = \text{secção de choque de espalhamento}$$

$$\Sigma_\gamma = N\sigma_\gamma = \text{secção de choque de captura, etc.}$$

O valor $\ell = 1/\Sigma$, que fornece o valor médio da distância percorrida pelo nêutron dentro do alvo sem sofrer interação, é denominada livre caminho médio.

$$\text{Assim: } \ell_s = 1/\Sigma_s; \quad \ell_f = 1/\Sigma_f; \quad \ell_\gamma = 1/\Sigma_\gamma; \text{ etc.}$$

Para uma mistura de elementos 1,2,3..., ou um composto, a secção de choque macroscópica é igual a soma das secções macroscópicas dos diferentes elementos presentes:

$$\Sigma = N_1\sigma_1 + N_2\sigma_2 + N_3\sigma_3 + \dots \quad (33)$$

onde $N_1, N_2, N_3, \dots$ são números de núcleos dos diferentes elementos por cm^3 da mistura ou composto.

3.3 - O MECANISMO DA FISSÃO - MODELO DA GOTA LÍQUIDA

O primeiro modelo que surgiu para descrever teoricamente o mecanismo da fissão foi o modelo da gota líquida

(LDM - Liquid Drop Model), introduzida por Bohr e Wheeler em 1938⁽⁴⁴⁾. Este modelo, apesar de sua simplicidade, explicava muito bem grande parte dos dados experimentais até então existentes.

O LDM descreve o núcleo como uma gota esférica, com uma distribuição uniforme de carga. A explicação da fissão segundo este modelo, baseia-se na idéia que quando se adiciona energia à gota esta pode atingir um modo de vibração no qual o núcleo (gota) se alonga. Durante a alongação, a área superficial total cresce enquanto o volume permanece aproximadamente constante. Portanto, a energia volumétrica não muda apreciavelmente enquanto a energia superficial aumenta. Ainda, durante a alongação, a distância entre as cargas aumenta, diminuindo assim a energia coulombiana do sistema. Quando a deformação é pequena, o aumento na energia superficial é maior que a diminuição na energia coulombiana. Consequentemente, há um aumento na energia potencial total do sistema. Contudo, existe um limite para este aumento visto que, com o crescimento da alongação a gota pode tomar a forma de um "haltere", separando-se em duas metades e nesta condição, a ligação entre as duas partes não aumenta sensivelmente a área superficial. Por outro lado, como estas duas partes do "haltere" se movem separadamente, a energia coulombiana continua a diminuir, diminuindo, portanto, a energia potencial do sistema. Com uma alongação adicional, a ligação eventualmente se rompe, produzindo dois fragmentos. Em uma forma mais realista, a distância entre as duas partes se torna maior que o alcance das forças nucleares. A repulsão coulombiana eletrostática continua atuando sobre os dois

fragmentos, de forma que a energia cinética final pode atingir valores tão altos como 100-200 MeV, dependendo da distribuição de cargas entre os fragmentos.

A energia de ligação por núcleon diminui com o aumento do número de massa (A), para núcleos com $A > 50$. Portanto, uma configuração mais estável é obtida quando o núcleo pesado se divide em dois núcleos mais leves. Com essas considerações poder-se-ia esperar que todos os núcleos pesados sofressem fissão espontaneamente. Ainda que essas fissões espontâneas sejam possíveis para todos os núcleos de $A > 50$, elas raramente ocorrem devido à existência da barreira coulombiana.

Para aumentar a probabilidade de ocorrência da fissão, deve-se fornecer energia ao núcleo através de reações com nêutrons, partículas carregadas ou ftons. Vejamos como o processo de fissão ocorre.

Consideremos um núcleo X^A excitado, cujo estado inicial pode ser suposto como sendo uma esfera de raio R , como mostra a figura 8(a). No final do processo, dois núcleos ${}_{Z_1}^{Y^{A_1}}$ e ${}_{Z_2}^{W^{A_2}}$ são formados, possuindo raios R_1 e R_2 , respectivamente, como esquematizado na figura 8(c). Os detalhes de como o núcleo passa do estágio (a) para o (c) não são completamente conhecidos, mas é razoável supor que isto envolve uma sequência de estados intermediários, em forma de halteres como esquematizado na figura 8(b).

Fig. 8 - Estágios da fissão. Modelo da gota líquida

Consideremos a energia potencial do núcleo fissionando, em função da distância r , entre os dois lóbulos que se separam, figura 9. Esta é igual a energia total do sistema em qualquer ponto menos a energia cinética. Quando $r = 0$, em (a), a energia total do sistema é $M_A c^2$, onde M_A é a massa de repouso do núcleo inicial, e a energia cinética é zero.

Fig. 9 - Energia potencial do núcleo fissionando em função de r , distância entre os lóbulos que os separam.

A energia que deve ser fornecida ao núcleo para este ser fissionado é igual a altura da barreira de fissão e é conhecida como energia crítica, E_{crit} , ou limiar e pode ser estimada por:

$$E_{crit} = E_q - Q \quad (34)$$

onde:

Q = Calor da reação de fissão

E_q = Energia de repulsão coulombiana calculada no ponto onde os fragmentos se separam.

O mais importante método de fornecer energia crítica para fissionar um núcleo é pela reação com absorção de um nêutron.

Quando o nêutron é absorvido pelo núcleo, o núcleo composto assim formado possui uma energia de excitação igual a soma da energia cinética do nêutron incidente com a energia de ligação no núcleo composto. Se esta energia de excitação for superior ao valor da E_{crit} do núcleo composto, a fissão poderá ocorrer mesmo que o nêutron tenha energia cinética nula.

Na tabela 1 são apresentados os valores de E_{crit} e de Energia de ligação para alguns núcleos de importância na tecnologia nuclear.

Tabela 1 - Energias críticas para fissão (em Mev)

Núcleo Fissionado (núcleo composto)	E_{crit}	Energia de ligação do nêutron
Th ²³²	5,9	-
Th ²³³	6,5	5,1
U ²³³	5,5	-
U ²³⁴	4,6	6,6
U ²³⁵	5,75	-
U ²³⁶	5,3	6,4
U ²³⁸	5,85	-
U ²³⁹	5,5	4,9
Pu ²³⁹	5,5	-
Pu ²⁴⁰	4,0	6,4

3.4 -ELEMENTOS FÍSSEIS E FÉRTEIS

Os elementos físséis de importância para a geração de energia nuclear são: U²³⁵, U²³³ e Pu²³⁹. Destes, só o U²³⁵ é encontrado naturalmente e está presente em uma quantidade de 0,72% por átomo no urânio natural.

O isótopo U^{233} pode ser produzido a partir do Th^{232} , através da seguinte reação^(45,46):

O Pu^{239} pode ser produzido através da absorção de nêutrons pelo U^{238} :

Isótopos como o U^{238} e Th^{232} , que não são físséis, mas que podem produzir isótopos físséis, são conhecidos como elementos férteis.

3.5 - PRODUTOS DE FISSÃO

Foi visto que na fissão o núcleo se divide em dois núcleos menores denominados fragmentos de fissão, e simultaneamente, são emitidos 2,4 nêutrons imediatos por fissão em média, além de outros produtos. Portanto, no processo de fissão há variação no número de nêutrons emitidos.

A figura 10 fornece a distribuição em massa dos fragmentos de fissão do U^{235} formados à partir de reações com nêutrons térmicos e com nêutrons de 14 MeV.

Logo após serem formados, os fragmentos de fissão possuem um número excessivo de nêutrons, e por esta razão decaem por emissão de uma ou mais partículas.

O isótopo Te^{135} , por exemplo, que é produzido diretamente da fissão, possui a seguinte cadeia de decaimento:

Fig. 10 - Produtos de fissão em função do número de massa.
Reação do U^{235} com neutrons térmicos e neutrons de 14 Mev.

3.6 - ENERGIA LIBERADA NA FISSÃO DO U^{235} COM NÊUTRONS TÉRMICOS

A taxa de geração de calor na fissão é igual à taxa de reação R , vezes a energia liberada em cada reação. Assim, se tivermos um fluxo de neutrons monoenergéticos, Φ_0 incidindo em um material com N_{ff} nucleos físseis, a taxa de reação é:

$$R = \Sigma \Phi_0 \quad (35)$$

onde Σ é a sessão de choque macroscópica (cm^{-1}). Neste caso R tem unidade de reações / s.cm^3 .

Cada reação de fissão libera uma energia E (≈ 200 MeV) de forma que a potência gerada na reação é dada por^(47, 48, 49):

$$P = \Sigma \Phi_0 E = \sigma N_{ff} \Phi_0 E \quad (36)$$

Assim, conhecendo-se o fluxo de nêutrons e o número de nucleos físseis N_{ff} do material, pode-se calcular a potência liberada, e depois determinar E .

Para o nosso detector, é importante distinguir entre a energia total liberada no processo de fissão e a energia que pode ser recuperada, e, portanto, disponível para produzir calor.

As energias total e recuperável, bem como a forma em que surgem, são resumidas na tabela 2.

Tabela 2 - Energias emitidas e recuperável na fissão do U^{235}

FORMA	ENERGIA EMITIDA (MeV)	ENERGIA RECUPERÁVEL (MeV)
Fragmentos de fissão	168	168
Decaimento dos produtos de fissão: raios γ	7	7
partículas β^-	8	8
Neutrinos	12	irrecuperável
Raios γ instantâneos	7	7
Nêutrons de fissão	5	5
Raios γ devido a captura radiativa	—	3-12
TOTAL	207	198-207

O último valor relacionado na tabela 2 não é devido a fissão mas contribui para a geração de calor e por isso é considerado. Porém para o caso do detector, é apenas 168 MeV mais 8 MeV (β^-).

Normalmente se utiliza o valor de 200 MeV para energia recuperável por fissão.

3.7 - NÚMERO DE ÁTOMOS DE URÂNIO POR UNIDADE DE VOLUME E AUTO-ABSORÇÃO DO MATERIAL COMBUSTÍVEL.

Vamos chamar a densidade de núcleos físséis ($U - 235$) por cm^3 de N_{ff} . Este valor depende, é claro, do grau de enriquecimento e da densidade do material combustível. Lembrando que combustível é definido como todos os isótopos do

urânio, enquanto que material combustível, é definido como a substância química UO_2 , U_3O_8 , $\text{UO}_2\text{SO}_4^{(51)}$, etc.

Para calcular N_{ff} , deve-se tomar cuidado, porque o enriquecimento é uma razão de massa e não de volume. Se a densidade e o enriquecimento do combustível são conhecidos, N_{ff} pode ser calculado como^(50,51):

$$N_{ff} = \frac{Av}{M_{ff}} \rho_{ff} \cdot i \quad (37)$$

onde

Av = número de Avogadro, $6,02 \cdot 10^{23}$ moléculas/mol

M_{ff} = massa molecular do material usado (g). Por

exemplo: $\text{U}_3\text{O}_8 = 833$ g .

ρ_{ff} = densidade do combustível físsil usado (g/cm^3)

i = números de átomos de combustível por molécula de combustível. Por exemplo: U_3O_8 , $i = 3$.

Normalmente, a densidade ρ_{ff} não é conhecida, mas relacionando-se a densidade ρ_f do combustível com a densidade do material combustível ρ_{fm} que é conhecida, tem-se:

$$\rho_{ff} = r\rho_f = r f \rho_{fm} \quad (38)$$

onde:

r = enriquecimento ou razão de massa do U^{235} para o combustível total.

f = fração de massa de urânio na substância química usada, que é dada por:

$$f = \frac{\frac{r}{r+(1-r)(M_{ff}/M_{nf})} M_{ff} + \frac{(1-r)}{r(M_{nf}/M_{ff})+(1-r)} M_{nf}}{\frac{r}{r+(1-r)(M_{ff}/M_{nf})} M_{ff} + \frac{(1-r)}{r(M_{nf}/M_{ff})+(1-r)} M_{ff} + \text{MO}_2} \quad (39)$$

onde M_{nf} e MO_2 são massas moleculares do combustível não físsil (como U^{238}) e dos elementos não combustíveis que acompanham o combustível (como O_2 no UO_2). Para o caso onde $M_{ff} \approx M_{nf}$ a equação anterior pode ser simplificada para:

$$f = \frac{r M_{ff} + (1 - r) M_{nf}}{r M_{ff} + (1 - r) M_{nf} + MO_2} \quad (40)$$

Assim, substituindo (40) em (38) e depois em (37) tem-se o número de átomos de urânio por unidade de volume N_{ff} .

Para calcular a auto absorção (f_a) em um material combustível, como por exemplo em uma pastilha de U_3O_8 , vamos considerar duas situações:

- a - a pastilha é fina ou o coeficiente de atenuação $\beta = N_{ff}\sigma$ é pequeno.

$$f_a = \exp \left(-\beta \frac{L_s}{2} \right) \approx 1 - \frac{\beta L_s}{2} \quad (41)$$

onde L_s é a espessura da amostra fina.

- b - a pastilha é espessa ou $\beta = N_{ff}\sigma$ é grande, então:

$$f_a = \frac{\int_0^{L_s} e^{-\beta x} dx}{L_s} = \frac{\left. \frac{e^{-\beta x}}{-\beta} \right|_0^{L_s}}{L_s} \quad (42)$$

$$\therefore f_a = \frac{1 - e^{-\beta L_s}}{\beta L_s} \quad (43)$$

Portanto no cálculo de geração e difusão de calor nas superfícies de amostras espessas, deve-se fazer a correção

devido a auto-absorção. A importância deste fator será mostrada nos resultados experimentais de nosso detector quando se usa amostras com alto grau de enriquecimento em U^{235} .

3.8 - MÉTODOS DE DETECÇÃO DE NÊUTRONS⁽⁵²⁾

A detecção de nêutrons torna-se possível com a utilização dos vários mecanismos que ocorrem na interação dos nêutrons com a matéria.

Em cada um desses processos é que se baseiam os métodos de detecção. Os mais importantes são os seguintes:

1) Transmutações induzidas por nêutrons em que as radiações produzidas tornam possível a detecção, por exemplo:

Reações (n, α) , (n, p) , (n, γ) e $(n, \text{fissão})$.

2) Espalhamento elástico de nêutrons em que a partícula de recuo tem carga e é capaz de ser detectada. O mais importante exemplo desse processo é o espalhamento elástico de um nêutron por um próton $H^1(n, n) H^1$.

3) Transmutações induzidas por nêutrons que resultam em núcleos radioativos. A análise do decaimento do núcleo radioativo fornece informações sobre o fluxo de nêutrons que induziu a radioatividade.

Resumidamente, apresentaremos alguns exemplos de detectores de nêutrons, com suas principais características e aplicações. A descrição de outros detectores que infelizmente não serão discutidos aqui, podem ser encontrados no trabalho de A. Almeida⁽⁶⁾ e nas referências anteriormente citadas, como os contadores proporcionais He-3, BFe, as câmaras de ionização (boro) ou cintiladores plásticos.

3.81 - CÂMARAS DE FISSÃO

Câmaras de fissão são contadores a gás que detectam os fragmentos produzidos na fissão. Como estes fragmentos são partículas de massas carregadas com $Z \approx + 20e^-$ e energia cinética 60 - 100 MeV há um pequeno alcance no gás, produzindo intensa ionização, não sendo portanto necessário a multiplicação gasosa. Assim, a câmara de fissão opera na região de ionização.

Em muitos tipos de contadores de fissão, a superfície interior do detector é recoberta com um isótopo físsil (Figura 11) utilizando métodos apropriados como: eletrodeposição, pintura, etc. Quando ocorre fissão, um dos fragmentos de fissão FF_1 é emitido em direção ao centro do contador onde é detectado e o outro FF_2 é absorvido na própria amostra ou na parede do contador. A taxa de contagem do contador de fissão é proporcional à taxa de fissão, que por sua vez é proporcional ao fluxo de nêutrons⁽⁴⁵⁾.

Fig. 11 - Detalhe de um contador de fissão.

Para medidas relativas, a espessura do material físsil no contador não é muito crítica desde que ela seja menor que o alcance dos fragmentos de fissão. Entretanto, para medidas absolutas, todos os fragmentos de fissão de cada reação devem ser registrados. Para isto ocorrer, a espessura do depósito deve ser muito menor que o alcance dos fragmentos no material.

Contadores de fissão podem ser usados para detecção tanto de nêutrons rápidos como térmicos. Se a parede do contador é revestida com U^{235} , essencialmente, só nêutrons térmicos são detectados porque a seção de choque de fissão do U^{235} para nêutrons térmicos é da ordem de 500 vezes maior que para nêutrons rápidos. Se, por outro lado o revestimento for de U^{238} ou Th^{232} , somente nêutrons rápidos com energia cinética maior que 1 MeV serão detectados, porque a fissão daqueles isótopos tem um limiar de reação da ordem daquela energia.

Contadores de fissão em geral são usados para detecção de fluxos e não energia dos nêutrons. Eles podem ser usados entretanto, para diferenciar fluxos de nêutrons térmicos e nêutrons rápidos, usando uma combinação de U^{235} e U^{238} no cátodo do contador.

3.82 - SELF-POWERED NEUTRON DETECTORS (SPND)

Como o próprio nome sugere, estes detectores são auto-energizáveis, não necessitando alimentação externa. Uma corrente é gerada pela interação dos elementos do detector com o fluxo de nêutrons e com a radiação gama do núcleo do reator.

Estes detectores podem se adequar a fluxos de

LIBRARY

nêutrons térmicos, epitérmicos e rápidos^(53,54,58).

O SPND tem os seguintes componentes (veja figura 12):

1) Um emissor, que é um eletrodo central na configuração coaxial e também um condutor de eletricidade capaz de emitir elétrons quando bombardeado por nêutrons. Ele também deve ter uma alta secção de choque para nêutrons de modo a produzir uma apreciável corrente.

2) Um isolante, de material dielétrico capaz de resistir ao intenso campo de radiação encontrado nos reatores.

3) Um revestimento (carcaça) que também é um condutor de eletricidade com baixa secção de choque para nêutrons térmicos de modo a não criar uma alta corrente elétrica que irá perturbar o detector.

O emissor é conectado ao condutor central com um cabo coaxial e é mantido a um potencial positivo com respeito à carcaça.

Num campo de nêutrons, os nêutrons atravessam a carcaça e o isolante, e interagem preferencialmente com o emissor. Estas interações conduzem às reações (n, γ, e) ou (n, β) produzindo elétrons.

Estes elétrons, se tiverem energia suficiente, podem sair do emissor e atravessar para o isolante. A emissão de elétrons no emissor, cria cargas positivas, e se o circuito for fechado por um instrumento de medida, uma corrente elétrica flui para neutralizar as cargas positivas no emissor. Portanto, o detector funciona como um gerador de corrente. A corrente gerada é proporcional ao fluxo de nêutrons na posição de irradiação.

RESPOSTA DO SELF-POWERED DETECTOR

Fig 12 - Esquema de um detector de nêutrons tipo SPND⁽⁵⁵⁾.

Estes detectores podem ser classificados segundo seus tempos de respostas, em detectores de resposta pronta e detectores de resposta atrasada.

Nos detectores de resposta atrasada, a corrente de elétrons é produzida pelo decaimento β que segue a captura de

nêutrons no emissor, conforme esquematizado na figura 13.

Fig. 13 - Esquema de detector SPND com resposta atrasada

Os detectores de resposta rápida fazem uso dos raios γ resultante da captura radiativa (n, γ) no emissor, para gerar corrente. O fluxo de raios γ emergente do emissor, interage com o material do detector originando fotoelétrons, e elétrons Compton⁽⁵⁶⁾, que compõem o fluxo de elétrons em direção ao coletor, como é mostrado na figura 14.

Fig. 14 - Esquema de detector SPND, de resposta rápida.

3.8.3 - TÉCNICAS DE ATIVAÇÃO⁽⁵⁷⁾

Como já vimos anteriormente, as transmutações induzidas por nêutrons podem dar origem a nuclídeos produtos radioativos.

As medidas relativas da atividade desses radioisótopos formados podem ser utilizadas como medidas de fluxos de nêutrons que induziram a radioatividade.

Esse método de medida de fluxo consiste na exposição de uma folha de material estável a um fluxo de nêutrons por um certo período de tempo, (por exemplo, colocando-se uma folha de ouro em uma região do núcleo de um reator).

Após a irradiação, a atividade absoluta induzida na folha, é medida em um espectrômetro gama permitindo assim o cálculo do fluxo de nêutrons incidente.

As vantagens desse método referem-se à possibilidade de escolha de materiais de secção de choque maior ou menor,

tornando possível realizar medidas de fluxo com intensidades variáveis; possibilidades de se usar folhas muito finas de metal ou pastilhas de pequenos tamanhos, evitando-se problemas de absorção de nêutrons no próprio detector. É de grande facilidade experimental, além de que o fluxo de nêutrons pode ser determinado independentemente de outras reações. Esta técnica é muito adequada para reações limiares.

Este método foi usado por nós, para monitoração do fluxo de nêutrons na posição onde realizamos medidas com detector piroelétrico. Veja apêndice 4.

CAPÍTULO IV

ASPECTOS EXPERIMENTAIS

4.1 - FONTE DE NÊUTRONS E CHOPPER DE CÁDMIO

A bancada experimental foi montada no primeiro andar do reator IEA-RI do IPEN. Este reator de pesquisa tipo piscina, opera com potência de até 2 MW.

Utilizamos o canal de irradiação nº 8, que atualmente é o beam-hole de maior fluxo de nêutrons térmicos (aproximadamente 10^6 n/cm²s). O diagrama da figura nº 15 ilustra com detalhes, o sistema de blindagem, colimação e demais componentes deste canal de irradiação.

O fluxo de nêutrons térmicos na posição H da figura nº 15, onde o colimador tem uma secção de 4 cm de diâmetro, foi medido com a técnica de ativação de folhas de ouro, e encontrou-se um valor de $8,6 \times 10^5$ n/cm².s, supondo um espectro térmico tipo maxwelliano (razão de cádmio = 150, veja apêndice). A energia média dos nêutrons é de 3,5 meV, com uma variação de 0 a 5 meV.

Na saída do canal (posição G) instalamos um diafragma de cádmio que permite interromper o feixe de neutrons térmicos, antes deste ser modulado pelo chopper mecânico. Este chopper, foi construído na forma de hélice com folha de Cd (1 mm de espessura), é movido por um motor de 9 volts controlado externamente através de um Variac. Os desenhos técnicos do chopper, do diafragma e colimadores estão no apêndice 2.

Figura 15- Diagrama esquemático do sistema de colimação do BH-8 do reator IEA-R1.

O sistema foto-diodo (figura 16), monitora a rotação da hélice gerando um sinal de referência, com onda de forma quadrada, de 1,5 V de amplitude.

Fig 16 - Esquema elétrico do sistema foto-diodo que gera o sinal de referência.

Para posicionamento do detector na frente do feixe de nêutrons, há um carrinho que corre sobre trilhos. Este carrinho, foi construído com um cubo de espuma de nylon (20 cm de lado) numa base sobre rodas, de modo que as vibrações geradas pelo chopper e outras fontes de ruídos, não atinjam o detector. O posicionamento do detector frente ao feixe de nêutrons, foi confirmado com uma neutrongrafia deste feixe após sua passagem pelo chopper, veja apêndice 5 e figura 15.

A montagem e desmontagem do colimador secundário, do chopper e do carrinho, é fácil e muito prática o que permite uma rápida mudança para diferentes tipos de arranjos, uma vez que o canal é utilizado para outros experimentos.

Estas montagens são sempre feitas com o reator desligado e com monitoração da proteção radiológica. Cabe destacar aqui o grande apoio que sempre recebemos do Dr. Reinaldo Pugliesi da divisão de Física Nuclear do IPEN. O Dr. Reinaldo é o responsável pelo canal, onde são desenvolvidas pesquisas de radiografias com nêutrons, produção de feixes de nêutrons filtrados e medidas de secções de choque de ativação. Veja diagrama em bloco, figura 15 e figura 22.

4.2 - DETECTORES PIROELÉTRICOS PARA NEUTRONS TÉRMICOS

Inicialmente construímos dez detectores iguais aos da figura 17, e um detector igual ao da figura 18. Posteriormente, utilizamos o detector desenvolvido por A. de Carvalho⁽¹⁰⁾ apresentado na figura 20.

Fig. 17 - Detector cilíndrico: 1- conector BNC; 2- corpo do detector (Al); 3- isolante; 4- PZT; 5- urânio; 6- eletrodo de medida (positivo).

Fig. 18 - Detector cilíndrico grande: 1- conector BNC; 2- corpo do detector (Al); 3- isolante; 4- pastilha de PZT; 5- pastilha de urânio; 6- janela; 7- tampa de alumínio.

O detector é composto por uma cerâmica PZT, em forma de disco, assentada em um cilindro de alumínio, conforme figura 17. As duas faces do PZT são recobertas com fina camada de prata, isoladas na extremidade. Uma destas faces ou eletrodos, é conectada eletricamente ao corpo de alumínio e a outra, é ligada ao polo positivo do conector externo BNC. A tabela 3 fornece as principais características das cerâmicas piroelétricas usadas.

A fixação do PZT no corpo de alumínio é feita por encaixe e cola de silicone. A ligação do eletrodo negativo com

o corpo do detector é feita com pintura de prata condutora.

Tabela 3 - Características dos transdutores piroelétricos usados

MATERIAL	FABRICANTE	DIÂMETRO	ESPESSURA
PZT	THORTON INPEC ELETRÔNICA S.A. VALINHOS, SP, BR.	22 mm	0,9 mm
PZT	THORTON INPEC ELETRÔNICA S.A. VALINHOS, SP, BR.	22 mm	2,05 mm
PZT	UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS, SP, BR.	17 mm	1,1 mm
PZT ₄	VALPEY-FISHER CORPORATION	QUADRADA 2.2 cm ²	3,0 mm
PZT ₄	EDO-WESTERN CORPORATION USA	QUADRADA 4 cm ²	3,0 mm

4.3 - PASTILHAS DE URÂNIO, LÍTIO E BORO

Utilizamos amostras de U_3O_8 , UO_2 , H_3BO_3 e Li_2CO_3 na forma natural e amostras de U_3O_8 enriquecidas no isótopo U^{235} . Com uma prensa hidráulica e uma matriz de aço, fizemos pastilhas de diferentes espessuras e diâmetros, todas com a mesma pressão de 15.000 libras por polegada quadrada. Na tabela 4 são apresentadas as características principais de cada pastilha. As pastilhas de U_3O_8 enriquecidas à 5% e 10%, foram feitas à partir de uma amostra padrão de urânio (veja apêndice

3) enriquecida à 19,811% em peso atômico no isótopo U^{235} . Para obter amostras com enriquecimentos menores, foram feitas misturas com urânio natural em pó e com material enriquecido nas porcentagens requeridas.

As pastilhas assim construídas, foram acopladas em uma das faces do PZT, com adesivo Super Bonder da Loctite, ou graxa de vácuo, tipo Apieson-L, fabricada pela Associated Electrical Industries Ltd (made in England). A graxa tem a vantagem de ser facilmente removida, além de propiciar um melhor contato térmico.

Fig. 19 - Acoplamento da pastilha de urânio, boro ou lítio com PZT que recebe o calor liberado na reação nuclear destes núcleos com nêutrons térmicos.

Tabela 4 - Principais características das pastilhas de urânio, lítio e boro utilizadas no detector piroelétrico.

IDENTIFICAÇÃO	MATERIAL	PORCENTAGEM ISOTÓPICA	MASSA g	DIÂMETRO mm	ESPESSURA mm
A	UO_2	0,72% U^{235}	1,539	20	
B	UO_2	0,72% U^{235}	2,864	20	
C	UO_2	0,72% U^{235}	1,522	20	
E	UO_2	0,72% U^{235}	0,991	14	1,35
F	UO_2	0,72% U^{235}	1,969	14	2,50
G	U_3O_8	0,72% U^{235}	0,953	14	1,28
H	U_3O_8	0,72% U^{235}	1,917	14	2,54
I	U_3O_8	0,72% U^{235}	0,902	14	1,06
J	U_3O_8	0,72% U^{235}	1,922	14	2,05
L ₁	Li_2CO_3	7,5% Li^6	0,971	14	4,08
L ₂	Li_2CO_3	7,5% Li^6	0,489	14	2,12
IV	H_3BO_3	20% B^{10}	0,605	14	3,86
V	H_3BO_3	20% B^{10}	0,994	14	4,57
VI	H_3BO_3	20% B^{10}	0,507	14	2,38
3%	U_3O_8	3,009% U^{235}	1,056	14	1,28
5%	U_3O_8	5,445% U^{235}	1,330	14	1,33
10%	U_3O_8	10,313% U^{235}	1,336	14	1,60
20%-1	U_3O_8	19,811% U^{235}	1,694	14	1,94
20%-3	U_3O_8	19,811% U^{235}	1,447	14	1,84

4.4 - CÂMARA DE VÁCUO

Para manter uma atmosfera de baixa pressão, onde ondas elásticas de ruídos acústicos não interferissem no sensor, construímos uma câmara selada que mantém um pequeno vácuo por um período de tempo suficientemente longo para realização das medidas experimentais. A câmara foi construída com alumínio que é um material praticamente transparente a nêutrons. A figura 20 mostra o esquema da câmara e no apêndice 1 é mostrado em detalhes o desenho técnico.

Fig. 20 - Esquema da câmara selada com detector piroelétrico.

4.6 - AMPLIFICADOR LOCK-IN

Como o sinal gerado pelo detector é pequeno, a medida precisa ser feita de forma síncrona, ou seja, o sinal gerado pelo PZT é comparado em fase com o sinal de referência do chopper. Assim, pode-se discriminar o sinal, com sua frequência característica, do ruído que não tem a mesma modulação.

Para realização dessas medidas, utilizamos o amplificador lock-in, modelo 186A da Synchro-Het.

A sensibilidade dos amplificadores varia de 1V até 10 nV. O ajuste da fase do sinal não é automático e portanto, deve ser cuidadosamente ajustado para cada frequência de modulação.

Tanto as ligações entre o detector e o lock-in como entre o chopper e o lock-in são feitas com cabos coaxiais devidamente aterrados. O sinal lido no lock-in, é registrado num registrador X-Y, modelo 70004B, da Hewlett-Packard, H.P. O arranjo completo do experimento, é mostrado na figura 22.

Fig. 22 - Diagrama do aparato experimental. O sinal piroelétrico é proporcional ao fluxo de nêutrons e varia com a frequência de modulação do chopper.

4.7 - TESTE COM LASER

Com o objetivo de testar a sensibilidade do detector e o acoplamento térmico entre as pastilhas de urânio e do PZT, fizemos medidas da energia transferida para o PZT por um feixe de raio laser de helio-neônio de aproximadamente 2mW.

Para o chopper não criar interferência, através do movimento de ar produzido pela hélice, mantivemos as distâncias adequadas entre o laser - chopper - detector, conforme pode ser visto na figura 23.

Fig. 23 - Arranjo experimental para teste com laser dos detectores.

Nestas condições, o laser incide sobre o PZT, pintado de preto para aumentar a absorção, depois de passar pelo chopper. O sinal observado foi da ordem de $5 \mu\text{V}$.

Desligando-se o laser e mantendo as mesmas condições, observa-se apenas um ruído de 150nV , indicando que não há sinal.

Mantendo as mesmas distâncias, porém fazendo um pequeno desvio lateral do laser de tal forma que ele incida no detector sem ser modulado pelo chopper, observa-se apenas um ruído de 150nV (não caracterizando nenhum sinal). Isso mostra

que o feixe de luz modulada é que produzia o sinal.

Fizemos outros testes, colocando atenuadores para diminuir a potência do feixe, medindo-se o sinal do PZT. Os sinais chegaram a ser da ordem de 200 - 500 nV, com um ruído de 100nV - 150nV.

4.8 - DETECTOR PIROELÉTRICO PULSADO PARA NEUTRONS TÉRMICOS

Como aplicação da técnica piroelétrica na detecção de nêutrons, construímos um monitor pulsado bastante simples, composto por uma blindagem de cádmio com janela (que permite expor o detector ao fluxo de neutrons momentaneamente), um pré amplificador de alta impedância com ganho um, e um voltímetro ou um registrador X-Y para leitura do sinal.

Este sistema de detecção mostrado na figura 24 ainda está em fase de desenvolvimento, mas já apresenta duas grandes vantagens em relação ao descrito anteriormente: dispensa a leitura síncrona, e pode ser portátil. Pode-se usar um voltímetro digital e um pequeno pré- amplificador como o do esquema da figura 25. As principais medidas com este detector serão mostradas no próximo capítulo.

Fig. 24 - Sistema de detecção piroelétrica pulsada para neutrons térmicos. A janela de cádmio permite abertura para produzir um pulso de nêutrons

Fig. 25 - Pré-amplificador de alta impedância e ganho um, usado no detector piroelétrico pulsado.

CAPÍTULO V

RESULTADOS EXPERIMENTAIS E DISCUSSÃO

5.1 - RESULTADOS OBTIDOS COM O SISTEMA DE DETECÇÃO DE NÊUTRONS TÉRMICOS USANDO TÉCNICA PIROELÉTRICA.

Nos primeiros testes do nosso sistema detector encontramos muitas dificuldades para obtenção do sinal esperado, tais como:

- 1 - O sinal era pequeno, comparado com o ruído.
- 2 - A intensidade do sinal decaía com o passar do tempo.
- 3 - Não havia reprodutibilidade na resposta para diversas medidas de um mesmo fluxo.

A primeira dificuldade foi contornada com a diminuição da frequência de giro do chopper. Inicialmente o chopper tinha uma frequência de rotação fixa de aproximadamente 58 Hz. Esta frequência além de ser alta é muito próxima da frequência de 60 Hz da rede (há muito ruído). Depois fizemos um novo projeto de um chopper com frequência de rotação que pode variar de 2,0 a 20,8 Hz.

A intensidade do sinal aumentou consideravelmente, atingindo valores próximos de $100\mu\text{V}$. A relação sinal / ruído ficou bastante vantajosa. Mas ainda observava-se um decaimento da resposta.

Testamos diversas cerâmicas da Thorton Inpec, de Valinhos, SP, para investigar o porque da perda de resposta depois de algum tempo de medida.

O comportamento nem sempre se repetia, algumas vezes a resposta decaia rapidamente, e outras vezes ficava mais estável, com uma pequena diminuição da intensidade do sinal com o passar do tempo.

Fizemos testes do detector dentro da câmara de vácuo e mudamos os procedimentos de aterramento e isolamento dos cabos, variamos a espessura dos detectores usados, testamos detectores de outros fabricantes (Universidade Federal de São Carlos e Valpey-Fisher Corporation) mas infelizmente não conseguimos resolver o problema.

Observamos também, que após o decaimento do sinal se aterrássemos o eletrodo de medida por alguns instantes e novamente expuséssemos o detector ao fluxo de nêutrons, a resposta voltava ao valor inicial conforme pode ser observado na figura 26. Com o passar do tempo a intensidade da resposta ia diminuindo novamente.

Irradiando o detector sem a pastilha de urânio, não se observou nenhum sinal, e da mesma forma, substituindo a pastilha de urânio por uma semelhante de chumbo ou alumínio não se observou nenhum sinal no piroelétrico. Isto indica portanto, que o efeito observado era devido à fissão nuclear do urânio.

Em algumas situações, a perda da resposta era menor, como pode ser visto na figura 27, onde o decaimento foi de apenas 4,0% em 40 minutos de medida. Nestas condições, embora um pouco instável, pudemos registrar o início da operação do reator IEA-R1. No início da mesma o reator estava desligado e o sinal no detector era zero. Depois quando o reator ficou crítico, o sinal passou para 10 μV , como pode ser visto na figura 28.

Fig. 26 - Nesta medida do sinal (μV) em função do tempo (min), pode-se observar um rápido decaimento da resposta ($\approx 60\%$) em apenas 7 minutos. Depois de curto-circuitar os eletrodos do detector por alguns instantes ele volta a responder com o mesmo sinal inicial.

Figura 27 - Resposta do detector durante um período de 40 minutos. Observa-se uma flutuação de 2,5 μ V e um decaimento no sinal de 2,0 μ V.

Fig. 28 - Neste exemplo, o detector piroelétrico monitorou o início da operação do reator do Ipen - IEA-R1. Em 1 o sinal é apenas ruído de fundo, pois o reator estava desligado, em 2 o reator estava crítico, em 3 fechamos o feixe com o diafragma de cádmio e em 4 abrimos novamente.

O decaimento da intensidade do sinal de tensão no detector piroelétrico, pode ser da seguinte forma: a irradiação de nêutrons provoca o surgimento de cargas superficiais nos eletrodos do sensor. Estas cargas, tem sinal contrário às cargas geradas pelo efeito piroelétrico, de tal forma que com o passar do tempo, a carga total vai diminuindo, provocando assim, a perda da resposta do detector. É interessante

ressaltar, que este fenômeno de geração de cargas superficiais, não ocorre quando tiramos a pastilha de urânio e irradiamos somente a cerâmica piroelétrica.

Observamos também, que este fenômeno, estava associado à interação do feixe de nêutrons com o detector, mais pastilha de urânio, pois na irradiação com laser, não observamos decaimento da resposta, como se pode verificar na figura 29. Nesta figura, está registrado o sinal piroelétrico gerado na irradiação de laser He-Ne sobre a pastilha de urânio, que absorve energia e transfere o calor para o sensor piroelétrico. Pode-se observar que a resposta é constante com o tempo.

Apesar desta característica de decaimento da resposta apresentada pelas cerâmicas PZT produzidas pela Thorton não serem relevantes para a detecção de forma pulsada, eles merecem estudos adicionais a fim de viabilizar a sua utilização na forma síncrona.

Fig. 29 - Resposta do detector piroelétrico à irradiação com laser He-Ne(2 mW).

5.2 - MEDIDAS COM O PZT DA EDO-WESTERN CORPORATION

Depois de inúmeras tentativas para resolver o problema da estabilidade da resposta do detector piroelétrico de nêutrons térmicos, passamos a testar o mesmo PZT utilizado por A. de Carvalho⁽¹⁰⁾ para detecção de raios-x. Provavelmente por ter outra constituição química, ou por diferir em algumas propriedades físicas específicas, o sinal da resposta obtido com esta cerâmica, foi sempre estável e houve boa reprodutibilidade entre diversas medidas para um mesmo fluxo de nêutrons.

Usando este detector, passamos à investigar os diversos parâmetros relacionados com tensão gerado pelo piroelétrico quando o detector estava exposto ao fluxo de nêutrons térmicos.

5.3 - SINAL CARACTERÍSTICO DA TENSÃO NO PIROELÉTRICO

Em condições de baixa frequência de modulação (3 Hz), com pastilha de U_3O_8 enriquecida a 20% em U^{235} , usando graxa Apiezon-L e para um fluxo de nêutrons de $8,5 \times 10^5 \text{ n/cm}^2\text{s}$ obtém-se o sinal característico da tensão de $740 \pm 10 \mu\text{V}$ que pode ser visto na figura 30. Com o fluxo de nêutrons interrompido, o sinal de "background" foi da ordem de $2 \mu\text{V}$. Como a flutuação do sinal é da ordem de 1,5%, constata-se que este sistema de monitoração permite detectar variações de até 1,5% do fluxo de nêutrons de um feixe térmico.

Fig. 30 - Resposta do detector piroelétrico como função do tempo de exposição. (1) e (3) sinal de "background". (2) com um fluxo de nêutrons térmicos de $8.5 \times 10^5 \text{ n/cm}^2\text{s}$ e frequência de modulação de 3 Hz

A figura 30 mostra o sinal registrado apenas por alguns minutos de exposição, porém realizamos medidas durante todo o período de operação do reator (8 horas) e não foi observada qualquer variação da resposta do detector para um mesmo fluxo de nêutrons.

A figura 31 mostra o registro do sinal de tensão por um período de aproximadamente 4 horas. Pode-se observar uma boa estabilidade da resposta do detector.

Fig. 31 - Resposta do detector piroelétrico por um período de aproximadamente 4 horas. $\Phi = 4,19 \times 10^5 \text{ n/cm}^2\text{s}$; frequência do chopper de aproximadamente 5 Hz e enriquecimento 20% - U^{235} .

5.4 - VARIAÇÃO DA RESPOSTA DO DETECTOR COM A INTENSIDADE DO FLUXO DE NEUTRONS

Para avaliar o comportamento da resposta do detector em diferentes fluxos de nêutrons térmicos, utilizamos placas de Makrofol-E ($\rho = 1,21 \text{ g/cm}^3$, fórmula química $\text{C}_{16}\text{H}_{14}\text{O}_3$) para atenuar o feixe antes deste incidir no detector. Os resultados são apresentados na figura 32. Ao mesmo tempo, e na posição do detector, medidas de fluxo foram realizadas através da técnica de ativação de folhas de ouro, em duas situações particulares, isto é, sem atenuador (I) e com 3 milímetros de espessura de Makrofol-E (II). Os resultados obtidos foram de $8.5 \times 10^5 \text{ n/cm}^2\text{s}$ e $4,2 \times 10^5 \text{ n/cm}^2\text{s}$ respectivamente, conforme relatório do laboratório de metrologia apresentado no apêndice 4.

Estas medidas de fluxo com folhas de ouro estão em excelente acordo com os resultados apresentados na figura 32. Nesta figura, pode-se observar ainda, que o detector respondeu à variação do fluxo de nêutrons de acordo com a equação

$$\Phi = \Phi_0 e^{-\beta x} \quad (44)$$

onde Φ e Φ_0 são respectivamente as intensidades do feixe de nêutrons após e antes da passagem por uma camada de espessura x , de Makrofol-E com um coeficiente de atenuação β para nêutrons térmicos.

Fig. 32 - Amplitude do sinal piroelétrico como função da espessura de Makropol-E. Detector feito com U(20%) e frequência de modulação de 3,0 Hz.

Com os resultados experimentais anteriores, construímos uma curva de calibração para o nosso detector, relacionando o sinal de tensão medido, com a intensidade do fluxo de nêutrons incidente. Os resultados são apresentados na figura 33.

Fig. 33 - Curva de calibração do detector piroelétrico para nêutrons térmicos. Sinal de tensão versus intensidade do fluxo de nêutrons para detector 20% com U^{235} e frequência de 3,0 Hz

Esta curva de calibração abrange uma variação de fluxo de nêutrons entre $0,8 \times 10^3$ a $8,5 \times 10^5$ nêutrons/cm²s. Estes valores, são os fluxos que experimentalmente, conseguimos obter no reator IEA-R1, na posição de irradiação de amostras do canal número 8. O valor inferior, pode ser diminuído, atenuando o feixe de nêutrons com mais absorvedores. Porém no nosso caso específico, seria necessário fazer novo arranjo pois o espaço para colocar mais atenuadores de Makrofol-E era limitado.

Observe também, que o detector piroelétrico, pode medir fluxos mais baixos aumentando o enriquecimento de U_3O_8 e pode medir fluxos muito mais altos diminuindo o enriquecimento e ou aumentando a frequência de modulação.

5.5 - VARIAÇÃO DA RESPOSTA DO DETECTOR COM A FREQUÊNCIA DE MODULAÇÃO DO FEIXE DE NEUTRONS

De acordo com a equação (27) a expressão do sinal piroelétrico quando o detector está exposto à um fluxo de nêutrons térmicos que gera calor em uma amostra de urânio (enriquecido a 20%), pode ser escrito na forma:

$$V = \frac{A}{f^e} e^{-a\sqrt{f}} - C \quad (45)$$

onde:

A representa todos os parâmetros que não estão variando ($p, \bar{\epsilon}, I_0, \epsilon_0, k_s, \beta_s, \alpha_s, \alpha_p, b_{ps}$), e é o expoente da frequência, e

$$a = \left(\frac{\pi \ell_s^2}{\alpha_s} \right)^{1/2} \quad (45)$$

que vem da exponencial:

$$e^{-\sigma_s \ell_s} = \exp - \left(\frac{\pi \ell_s^2}{\alpha_s} \right)^{1/2} f^{1/2} \quad (47)$$

pois fizemos: $\sigma_s = \left(\frac{\pi f}{\alpha_s} \right)^{1/2}; \quad \omega = 2 \pi f$

e C é um fator de correção para ajustar a posição da curva.

Com um microcomputador, foi possível ajustar aos dados experimentais a curva descrita pela equação (45), com o seguinte desvio:

$$d = \frac{\left[\sum_j \left[M_{ji} I - Y_j \right]^2 \right]^{1/2}}{N^0 \text{ de dados (M)}} \quad (48)$$

onde j são elementos de uma matriz que contém os dados de frequência (M) e sinal piroelétrico (Y).

Obtivemos os valores:

$$A = 4000$$

$$a = 0.39$$

$$e = 1$$

$$C = 3.7$$

$$\ell_s = 1,076 \cdot 10^{-4} \text{ m} = 107 \text{ } \mu\text{m}$$

$$d = 2.4$$

Usamos $\alpha_s \cong 2.4 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$. Este valor foi calculado a partir do valor da condutividade térmica⁽⁶⁰⁾ do U_3O_8 :

$k \cong 4 \cdot 10^{-2} \text{ W / cm K}$ para a temperatura ambiente e do calor específico do U_3O_8 : $c_p = 7 \cdot 10^{-1} \text{ cal / g K}$, com

$$\alpha = \frac{k}{\rho c_p} \quad (49)$$

onde ρ = densidade da pastilha, foi determinado experimentalmente.

Fig. 34 - Gráfico do sinal piroelétrico para diferentes frequências de modulação do chopper. (a) Gráfico do sinal piroelétrico versus f^{-1} (b). Amostra U20% - 1.

Observando a figura 34(a) podemos notar o bom ajuste obtido da curva aos valores experimentais. Na figura 34(b), lançamos o gráfico do sinal piroelétrico versus o inverso da frequência (f^{-1}).

Desta forma, podemos concluir que a equação (19) do modelo teórico proposto, que se mostrou adequada aos resultados experimentais obtidos neste trabalho. E representam novas possibilidades para determinação de parâmetros térmicos de amostras de urânio, pois conhecendo-se a espessura da amostra pode-se determinar a difusividade térmica da mesma ou vice-versa.

A figura 35 mostra os resultados para uma outra amostra de urânio com o mesmo enriquecimento de 20% em U^{235} . Novamente, pode-se observar o bom ajuste obtido entre o modelo proposto e os dados experimentais. A espessura útil $\ell_s = 1,17 \times 10^{-4}$ m está bastante próximo do valor obtido com a outra amostra pois, ambas foram feitas com os mesmos materiais e procedimentos.

5.6 - RELAÇÃO ENTRE A FASE DO SINAL PIROELÉTRICO E FREQUÊNCIA DE MODULAÇÃO

Observamos que o ângulo de fase do sinal varia com a frequência de modulação, conforme pode ser observado na figura 36. Estes dados de fase, correspondem aos dados de amplitude mostrados na figura 35.

Fig. 35 - a - Sinal piroelétrico versus frequência de modulação
 b - Sinal x inverso da frequência. Amostra U20% - 3

Fig. 36 - Fase do sinal piroelétrico versus frequência de modulação do chopper para urânio 20% U^{235} .

Como a fase do sinal piroelétrico está relacionada com a parte complexa de $V(\omega_0)$ - equações (11) e (12), pode-se relacionar a fase com a frequência de modulação para uma determinada espessura da amostra, como:

$$\text{Fase } \phi \equiv \left(\frac{\pi f}{\alpha} \right)^{1/2} \ell_s \quad (50)$$

Assim,

$$\text{Fase } \phi \equiv \left(\frac{\pi \ell_s^2}{\alpha} \right)^{1/2} f^{1/2} \quad (51)$$

e fazendo um gráfico de valores de fase versus $\sqrt{f}$, como o da figura 37, podemos determinar a espessura efetiva ℓ_s da amostra, através do coeficiente da curva que se ajusta aos dados experimentais.

Neste caso específico, o ajuste não está muito bom, não foi possível o ajuste por uma só curva (a dependência tem comportamento aproximadamente exponencial) provavelmente porque os instrumentos de medidas estão interferindo na fase. Mas mesmo assim, pelas curvas Y1 e Y2 pode-se obter o valor da espessura efetiva útil.

Associando:

$$\begin{aligned} Y1 &= -1.1 f^{0,5} + 3.35 = \\ &= - \left(\frac{\pi}{\alpha} \ell_s^2 \right)^{0,5} f^{0,5} + 3.35 \implies \ell_s = 304 \text{ } \mu\text{m} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} Y2 &= -0,352 f^{0,5} + 1,32 = \\ &= - \left(\frac{\pi}{\alpha} \ell_s^2 \right)^{0,5} f^{0,5} + 1.32 \implies \ell_s = 97,3 \text{ } \mu\text{m} \end{aligned}$$

O valor de ℓ_s obtido com a relação frequência versus fase, está bastante próximo ao valor obtido com a relação da amplitude com a frequência quando se considera a curva Y2.

Assim, pode-se demonstrar que outra maneira alternativa para relacionar espessura da amostra, difusividade térmica, frequência de modulação e fase do sinal piroelétrico.

j := 0 ..15

M :=

2.3	110
3.1	82
3.4	75
3.8	66
4.0	61
4.7	53
5.5	43
6.1	36
7.3	26
7.95	20
9.65	12
10.55	10
11.8	5
13.4	0
18	-5
20	-10

$a_j := \frac{\pi}{180} \cdot M_{j,1}$ $f_j := M_{j,0}$

$y_j := -1.1 \cdot f_j^{.5} + 3.35$

$y1_j := -.352 \cdot f_j^{.5} + 1.32$

Fase do Sinal Piroeletrico (Uranio + PZT)
(Rad)

Raiz Quadrada da Frequencia de Modulacao[sqr(Hz)]

Fig. 37 - Relação entre a fase do sinal piroelétrico e a frequência de modulação.

5.7 - VARIAÇÃO DO ENRIQUECIMENTO ISOTÓPICO

Para testar o comportamento do detector com a variação do enriquecimento do isótopo físsil (U^{235}) na amostra, utilizamos diferentes pastilhas, e com a mesma frequência de modulação do feixe de nêutrons, obtivemos resultados que confirmam a previsão da equação (25), onde o sinal piroelétrico é proporcional a $\beta = N_{ff}\sigma$. A tabela 5 fornece os dados experimentais do sinal piroelétrico juntamente com os valores corrigidos. Estes valores corrigidos, são obtidos a partir do cálculo da auto absorção da espessura L_s das pastilhas. Como apenas uma espessura ℓ_s contribui para a geração do sinal, o restante da amostra $L_s - \ell_s$ está apenas absorvendo nêutrons. Com estas correções construímos o gráfico da figura 38, que mostra o comportamento do sinal piroelétrico com a variação do enriquecimento do urânio.

Tabela 5 - Valores dos sinais piroelétricos para diferentes concentrações do isótopo U^{235} nas amostras de U_3O_8 e correção da auto absorção.

	ENRIQUECIMENTO ISOTÓPICO					
	0,7%	3,0%	5,5%	10,3%	19,8%	
	$\rho_{mf} (g/cm^2)$	4,8	5,4	6,5	5,4	5,6
	$\rho_{ff} (mg/cm^3)$	29,3	137,4	299,9	471,6	940
	N_{ff}	$7,5 \cdot 10^{19}$	$3,5 \cdot 10^{20}$	$7,7 \cdot 10^{20}$	$1,2 \cdot 10^{21}$	$2,4 \cdot 10^{21}$
	$-N_{ff} \sigma \cdot L_s$	0,98	0,95	0,9	0,81	0,61
	$L_s (cm)$	0,25	0,13	0,13	0,16	0,19
	$\beta = N_{ff} \sigma (cm^{-1})$	0,05	0,23	0,52	0,82	1,63
	SINAL PIROELÉTRICO (μV)					
	50 $\pm$ 3	170 $\pm$ 5	420 $\pm$ 12	540 $\pm$ 16	640 $\pm$ 19	
SINAL PIROELÉTRICO CORRIGIDO (μV) EFEITO DA AUTO ABSORÇÃO						
50 $\pm$ 3	175 $\pm$ 5	450 $\pm$ 13	605 $\pm$ 18	896 $\pm$ 27		

ρ_{mf} é a densidade das pastilhas de U_3O_8

ρ_{ff} é a densidade de U^{235} nas pastilhas

N_{ff} é o número de núcleos de U^{235} por cm^3 em cada pastilha

$\sigma = 678$ barns; $\omega = 3,3$ Hz

Fig. 38 - Gráfico do sinal piroelétrico corrigido versus enriquecimento isotópico da amostra de U_3O_8 . $\omega = 3,3$ Hz

5.8 - VARIAÇÃO COM A ÁREA DA AMOSTRA DE URÂNIO

Dividindo uma pastilha de urânio de área A em 4 partes aproximadamente iguais, fizemos medidas do sinal piroelétrico para os diferentes tamanhos da amostra e os resultados obtidos são mostrados na tabela 6.

Tabela 6 - Resposta do detector piroelétrico, construído com diferentes tamanhos de pastilhas de urânio. (Acopladas com Apiezon, fluxo de nêutrons $\Phi = 8,5 \times 10^5 \text{ n/cms}^2$, $\omega = 3,3 \text{ Hz}$ e U-10%)

VARIAÇÃO DO TAMANHO	SINAL PIROELÉTRICO
Pastilha com área A	$560 \pm 11 \mu\text{V}$
Pastilha com área $3/4 \text{ A}$	$440 \pm 9,0 \mu\text{V}$
Pastilha com área $1/2 \text{ A}$	$270 \pm 5,0 \mu\text{V}$
Pastilha com área $1/4 \text{ A}$	$160 \pm 4,0 \mu\text{V}$
$A = \pi \cdot 0,49 \text{ cm}^2$ Área do PZT = 4 cm^2	

Estes resultados demonstram que a variação da área da amostra de urânio é proporcional ao sinal piroelétrico quando temos um transdutor de área maior que a amostra. Portanto, para melhorar a relação sinal ruído, o transdutor e a amostra, devem ter a mesma área. Cabe observar também, que aumentando a área de urânio e do PZT, o sinal aumenta e isto permite medir fluxos de nêutrons menores que o empregado neste trabalho.

5.9 - DETECTOR PIROELÉTRICO FEITO COM PASTILHAS DE BORO E DE LÍTIO

Investigando a reação exotérmica $B^{10}(n,\alpha)Li^7$ com o detector piroelétrico, obtivemos o resultado da figura 39, onde observa-se um pico no sinal piroelétrico nos primeiros 30 segundos de medida e depois o sinal permanece num patamar e só é alterado se houver alguma variação do fluxo de nêutrons. Podemos observar que a relação sinal ruído é bastante favorável, indicando uma boa potencialidade para se construir detectores de nêutrons piroelétricos com materiais conversores não radiativos.

Investigando uma outra reação, agora $Li^6(n,\alpha)H^3$ obtivemos resultados semelhantes, conforme pode ser observado na figura 40. Novamente, há um pico no início da medida e a posterior estabilização do detector. Comparando as figuras, observa-se que o detector feito com boro, apresenta um sinal maior que o de lítio. Isto é esperado pois, o calor liberado na reação com o boro, é maior que o liberado na reação com o lítio, considerando a energia e a secção de choque total.

Vejamos que: ^(62, 63)

A energia da reação (n,α) com B^{10} é de $\approx 2,8$ MeV.

A energia da reação (n,α) com Li^6 é de $\approx 4,8$ MeV.

Ambas as amostras de H_3BO_3 e Li_2CO_3 estão com enriquecimento natural.

Secção de choque para o B^{10} é $\sigma_{n\alpha} = 3840$ barns; secção de choque para o Li^6 é $\sigma_{n\alpha} = 940$ barns, para nêutrons térmicos.

Fig. 39 - Resposta do detector utilizando pastilha de H_3BO_3 , $\Phi = 8,5 \cdot 10^5 \text{ n/cm}^2\text{s}$, $\omega = 3,3 \text{ Hz}$. Observe que no início da medida, a amplitude do sinal é maior, depois cai rapidamente (1 min) até estabilizar em $380\mu\text{V}$.

Fig. 40 - Resposta do detector utilizando pastilha de Li_2CO_3 , nas mesmas condições descritas na figura anterior.

Estes resultados obtidos com o PZT, detector e conversor de boro e lítio são ainda preliminares e não tem uma interpretação completa. Em continuação à este trabalho, investigaremos a razão do pico observado no início da medida, tanto para o lítio quanto para o boro. Este efeito, pode estar ligado à reação (n,α) , ou a estabilidade térmica e propriedades físicas do H_3BO_3 e Li_2CO_3 . Apenas apresentamos estes resultados para mostrar potencialidades futuras com o detector piroelétrico. Estes estudos já estão programados para serem feitos no reator IEA-RI.

5.10 - RESPOSTA DO DETECTOR PIROELÉTRICO PULSADO

Como uma outra aplicação da técnica piroelétrica apresentada nesta tese, propomos, também para continuidade das pesquisas, o desenvolvimento do detector piroelétrico pulsado, descrito na secção 4.8. Preliminarmente, já obtivemos resultados indicativos da viabilidade deste detector na detecção de nêutrons térmicos.

A figura 41 mostra a resposta deste detector exposto a um fluxo de nêutrons da ordem de $8,5 \times 10^5$ n/ cm^2s . A amplitude do sinal resposta obtido é bastante grande (≈ 5 V) (É claro, devido ao uso da pré-amplificação). E o tempo de resposta é de ≈ 30 s.

Fig. 41 - Resposta do detector piroelétrico pulsado. Em (1) o diafragma está fechado. Em (2) aberto. Em (3) fechado novamente.

CAPÍTULO VI

CONCLUSÕES

6.1 - CONCLUSÕES FINAIS

Apresentaremos, a seguir, como parte final desta tese, alguns comentários e conclusões que consideramos pertinentes.

Consideramos que o objetivo desta tese, que é a utilização da técnica piroelétrica para detecção de nêutrons foi satisfeito. Podemos enumerar os principais resultados:

1 - Boa relação sinal x ruído. Como mostra a figura 30, é possível obter o sinal piroelétrico da ordem de 50 vezes maior que o ruído. ($\Phi = 8.5 \cdot 10^5$ n/cm²s; U - 20%; $\omega = 3$ Hz)

2 - A resposta do detector é estável, mesmo para longos períodos de medida. Na figura 31 nota-se que não há decaimento da resposta para um período de ≈ 4 horas de medida. ($\Phi = 4.2 \cdot 10^5$ n/cm²s; U - 20%; $\omega = 5$ Hz)

3 - O detector é bastante sensível e permite detectar fluxos de nêutrons maiores que 10^3 n/cm²s. Nas figuras 32 e 33, mostramos que a resposta do detector é linear para um fluxo que variou de $8,0 \times 10^3$ a $8,5 \times 10^5$ n/cm²s. Aumentando-se o enriquecimento, pode-se aumentar ainda mais a sensibilidade para fluxos menores. E, para fluxos maiores, pode-se usar urânio natural e frequências de modulação maior, ou ainda, usar atenuantes como Makropol-E.

4 - É possível medir o enriquecimento isotópico do urânio. A figura 38 mostra que o sinal é proporcional ao grau

de enriquecimento e para diminuir o erro recomenda-se usar amostras bem finas, da ordem da camada útil ($\approx 100 \mu\text{m}$). Melhor se forem depositadas diretamente sobre o PZT.

5 - O sinal piroelétrico varia com o inverso da frequência de modulação. Na secção 5.5 foi mostrado que esta dependência permite variar a sensibilidade do detector e permite obter informações sobre a amostra, como a espessura e a difusividade térmica.

6 - O sinal varia com a área da amostra de urânio. Para um transdutor maior que a amostra, diminuindo-se a área da amostra obtém-se um sinal proporcional, pois a energia gerada é menor. Este comportamento é equivalente à diminuir o fluxo ou enriquecimento.

7 - Não foram observados danos pela radiação de nêutrons térmicos durante os períodos que totalizaram aproximadamente 300 horas de exposição ao fluxo térmico da ordem de $10^6 \text{ n/cm}^2\text{s}$.

6.2 - PRINCIPAIS CARACTERÍSTICAS E VANTAGENS

Estes resultados demonstram a viabilidade de construção de detectores de nêutrons, por um baixo custo e com tecnologia brasileira. O detector piroelétrico apresentou boa sensibilidade, resposta rápida, estabilidade por longo tempo, alta sensibilidade e grande simplicidade mecânica.

6.3 - APLICAÇÕES E TRABALHOS FUTUROS

Desta tese, pode-se ainda ressaltar outras aplicações

e desenvolvimentos que poderão ser continuados em trabalhos futuros:

1 - Desenvolvimento e utilização de outras cerâmicas piroelétricas para detectores de nêutrons.

2 - Desenvolvimento de tecnologia nuclear, dirigida a medidas de parâmetros de combustíveis nucleares, como espessuras de amostras finas, difusidade térmica e acoplamento térmico entre a pastilha e o encamisamento do elemento combustível.

3 - Testar e desenvolver modelos teóricos para casos onde a amostra é semi-transparentes e o transdutor e o "backing" são transparentes, segundo as definições de Rosencwaig⁽¹²⁾ e de Mandelis⁽¹⁵⁾.

4 - Desenvolver detector piroelétrico pulsado. Com um dispositivo de blindagem e um pré-amplificador, pode-se construir um detector portátil e de alta sensibilidade para nêutrons.

5 - Utilização de materiais não radioativos como o boro e o lítio, para detectar nêutrons.

6 - Pode-se construir um módulo didático, para ensino de física nuclear, com um bolômetro piroelétrico que permite investigações de reações nucleares como (n,f) e (n,α) , usando urânio natural, boro ou lítio e uma fonte de nêutrons ($\approx 10^3$ n/cm²s).

6.4 - SINTESE DAS CONCLUSÕES

A figura 42 apresenta em forma de diagrama de blocos um resumo da tese.

Fig. 42 - Diagrama de blocos que sintetiza o objetivo, os resultados, as principais características e vantagens e as possíveis aplicações da presente tese.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 - MASCARENHAS, S. and ZIMMERMAN, R.L.; "A new electret dosimeter" in X Aniversário da Associação Brasileira de Físicos em Medicina (Ed. by S. Watanabe), SP, 1979.
- 2 - GUERRINE, O.; "Dosimetria com eletretos". Dissertação de mestrado. Orientador: Prof. S. Mascarenhas. IFQSC - USP - 1983.
- 3 - CRESTANA, S.; "Carregamento de eletretos com partículas alfa". Dissertação de mestrado. Orientador: Prof. S. Mascarenhas. IFQSC - USP, 1985.
- 4 - CAMPOS, L.L.; CALDAS, LVE and MASCARENHAS, S.; "Electret for β radiation detection", in Int. β Dosimetry Symposium, Washington, DC, feb. 1983.
- 5 - RODRIGUES, L.N.; Dissertação de mestrado. Orientador: Prof. S. Mascarenhas. 1985
- 6 - ALMEIDA, A.; Dissertação de mestrado. IFQSC-USP. Orientador: Prof. S. Mascarenhas.
- 7 - MASCARENHAS, S.; BAFFA FILHO, O and IKEIA, M; "ESR dating of human bones from Brazilian stell-mounds (Sambaquis); Am. J. Phys Anthropology, 59, 413-417 (1982).
- 8 - MASCARENHAS, S.; VARGAS, H. and CEZAR, C.L.; Med. Physics, 11, 73, (1984).
- 9 - PAULA, M.H. de; CARVALHO, A.A.; MASCARENHAS, S. and ZIMMERMAN, R.L.; Med. Physics, 11, 866, (1984).
- 10 - CARVALHO, A.A.; Tese de Doutorado. IFQSC - USP, (1987).
- 11 - CRESTANA, S.B.; MASCARENHAS, S.; GERALDO, L.P. and CARVALHO, A.A.; "Anew technique for thermal neutron

- detection using pyroelectric ceramics". Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res., 00, (1991).
- 12 - ROSENCWAIG, A. and GERSHO, A.; "Theory of photoacoustic effect with solids", J. Appl. Phys., 47, 64, (1976).
 - 13 - ROSENCWAIG, A.; "Photoacoustic and photoacoustic spectroscopy, J. Wiley & Sons, N.Y., (1980).
 - 14 - MANDELIS, A.; "Photoacoustic and thermal waves phenomena in semiconductors", North-Holland, Amsterdam (1987).
 - 15 - MANDELIS, A. and ZVER, M.M.; J. Appl. Phys., 51, 3343, (1985).
 - 16 - MANDELIS, A.; Chem. Phys. Lett., 4, v. 108, p. 388, (1984).
 - 17 - COUFAL, H.; Appl. Phys. Lett, 44, 59, (1984).
 - 18 - COUFAL, H.; Appl. Phys. Lett, 45, 516, (1984).
 - 19 - VARGAS, H. and MIRANDA, L.C.M.; Phys. Rept., 161, 43, (1988).
 - 20 - BELL, A.G.; "On the production and reproduction of sound by light", Am. J. Sci., 20, 305, (1880).
 - 21 - BELL, A.G.; Philos. Mag., 11, 510, (1881).
 - 22 - PFUND, A.H.; Science, 90, 326, (1939).
 - 23 - TAM, A.C.; Rev. Mod. Phys., 58, 381, (1986).
 - 24 - JACKSON, W. and AMER, N.M.; J. Appl. Phys., 51, 3343, (1980).
 - 25 - CELLA, N.; Tese de doutoramento. Orientador: Prof. H. Vargas. IFGW - UNICAMP, (1990).
 - 26 - BENTO, A.C. - Monografia para exame de qualificação para o doutoramento. Orientador: Prof. H. Vargas. IFGW - UNICAMP, (1990).
 - 27 - BENTO, A.C.; VARGAS, H.; AGUIAR, M.M.F. and MIRANDA,

- L.C.M.; Phys Chem. of Gasses, 28, 127, (1987).
- 28 - GALLEG0-JUÁREZ, J.A.; Piezoelectric ceramics and ultrasonic transducers, J. Phys. E: Sci. Instrum., 22, 804, 1989.
- 29 - NYE, J.F.; Propriétés Physiquee des Cristaux, Dunod, Paris, 1961.
- 30 - MEITZLER, A.H.; O'BRYAN Jr, H.M. and TIERSTEN, H.F., IEEE - Transaction on sonics and ultrasonics, 20(30), 233, 1973.
- 31 - MANDELIS, A.; LO, W. and WAGNER, R.E., Appl. Phys. A, 44, 123, (1987).
- 32 - MANDELIS, A.; WAGNER, R.E.; GHANDI, K. and BALTMAN, R., Phys. Rev. B, 8, v. 39, 5254, (1989).
- 33 - ROUNDY, C.B. and BYER, R.L., J.Appl. Phys., 44, 929-31, (1973).
- 34 - ASTHEIMER, R.W. and SCHWARZ, F.; Appl. Optics, vol. 7, 1687, 1967.
- 35 - BEERMAN, H.P.; Amer. Ceram. Soc. Bull., vol. 46, p. 737, 1967.
- 36 - PUTLEY, E.H., "Semiconductors and semimetals", vol. 5, R.K. Willardson and A.C.Beer, eds. New York: Academic Press, 1970.
- 37 - BERKNER, K.H.; MYERS, B.R. and PYLE, R.V., Rev. Sci. Instrum., 39, 1204, 1968.
- 38 - GEIS, M.W.; SMITH, K.A. and RUNDEL, R.D.; Journal of Physics E: Scientific Instuments 1975, vol. 8. Printed in Great Britain, 1975.
- 39 - STRAKOUSKAYA, R.Y.; KREMENCHUGSKII, L.S. and DIMOGLO, G.A.; Instrum. Exp. Tech., 19, 1317-19, 1976.

- 40 - CRUVINEL, P.E.; MASCARENHAS, S.; MIRANDA, J. and FLOCCHIN, R.G.; "The use of a perovskit crystal as a detector for protons bean current", IEEE Trans. On Nuc. Sc., 39 II, n^o 1, feb. 1992.
- 41 - CINTRA, W.S. de S.; "Engenharia Nuclear", notas de aula. Universidade Federal de São Carlos - DEMA, 1978.
- 42 - LAMARSH, J.R.; "Introduction to nuclear reactor theory". Addison-Wesley Publishing Company, 1972.
- 43 - GERALDO, L.P.; Tese de doutoramento. IPEN. Orientador: Prof. L.A. Vinhas, 1982.
- 44 - BOHR, N. and WHEELER, J.R.; Phys. Rev., 56(5), 426-50, 1939.
- 45 - KAPLAN, I.; "Nuclear Physics", Addison-Wesley Publishing Company, 1977.
- 46 - BURCHAM, W.E.; "Física Nuclear", Editorial Reverté, SA, 1974.
- 47 - GERALDO, L.P.; CESAR, M.F.; MAFRA, O.Y. and TANAKA, E.M.; J. Rad Chem., 49, 115, 1979.
- 48 - GERALDO, L.P.; VINHAS, L.A. and CESAR, M.T.F.; Nucl. Sci. Eng., 89, 150, 1985.
- 49 - VANDERBOSCH, R. and HUIZENGA, J.R.; "Nuclear Fission", Academic Press, New York, p. 329, 1973.
- 50 - DUDERSTADT, J.J. and HAMILTON, L.J.; "Nuclear Reactor Analysis", John Wiley & Sons, Inc., 1976.
- 51 - WAKILL, M.M. EL; "Nuclear Heat Transport", International Textbook Company.
- 52 - TSOUFANIDIS, N.; "Measurement and detection of radiation", University of Missouri - Rolla. (1986).
- 53 - HILBORN, J.W.; "Self-powered neutron detectors for reactor

- flux monitoring", *Nucleonics*, **22**, n^o 2, 69, (1964).
- 54 - SILVA, M.M.; "Cálculo da sensibilidade de detetores do tipo "self-powered" através do método de Monte Carlo". Trabalho a ser apresentado com dissertação de mestrado. IPEN, SP, (1991).
- 55 - AGU, M. and PETITCOLAS, H.; *Nucl. Sc. and Eng.*, **107**, 375, 1991.
- 56 - GROSS, B. and MURPHY, P.V.; "Solid State neutron-gamma dosimeter", *Select Topics in Radiation Dosimetry*, IAEA, Viena, pa. 549, 1961.
- 57 - GREGÓRIO FILHO, R.; "Radioproteção e instrumentação nuclear", Universidade Federal de São Carlos - DEMA, 1978.
- 58 - MORRISON, P. and HUIZENGA, J.R.; "Nuclear Fission", Academic Press, New York, p. 329, 1973.
- 59 - EIRAS, A.J.; "Grupo de cerâmicas ferroelétricas", Departamento de Física, Universidade Federal de São Carlos.
- 60 - TOULOKIAN, Y.S. et al; "Thermal conductivity", 61 - TOULOKIAN, Y.S. et al; "Specific heat", *Thermophysical properties of matter*, vol. 5, IFI/Plenum, New York, 1970.
- 62 - GARDNER, M.A. and HOWETON, R.J.; "Act1: Evaluated neutron activation cross section library - Evaluation techniques and reaction index". Lawrence Livermore Laboratory, California, 1978.
- 63 - SEELMANN, W. et al; "Nuklidkarte" - "Chart of the nuclides", Kernforschungszentrum karlsruhe, 1981.

APÊNDICES

Apêndice 2 - Desenho técnico do chopper.

NOTAS: 1 - PARA IDENTIFICAÇÃO DAS POSIÇÕES, VER FOLHA 02 A 06				
29	2	MOLA FIO $\phi 05 \times \phi 5 \text{ mm.}$	AÇO	
28	2	PINO C/ ROSCA M3 C/ FENDA	—	
27	4	PARAFUSO CAB. ESCAREADA C/ FENDA M3 x 12 mm.	DIN-953-5,8	
26	2	PARAFUSO CAB. ESCAREADA C/ FENDA M3 x 25 mm. C/PORCA E ARR. LISA	DIN-963-5,8	
25	3	PARAFUSO CAB. ESCAREADA C/ FENDA M4 x 16 mm C/PORCA E ARR. DE PRESSÃO	DIN-963-5,8	
24	6	PARAFUSO CAB. REDONDA C/ FENDA M3 x 6 mm. C/PORCA E ARR. DE PRESSÃO	DIN-86-6,8	
23	10	PARAFUSO CAB. REDONDA C/ FENDA M2,5 x 6 mm.	DIN-86-5,8	
22	2	PARAFUSO CAB. SEXT. M4 x 25 mm C/ PORCA E ARR. LISA	DIN-933-8,8	
21	1	ANEL O'RING $\phi 56,87 \times \phi 80,43 \times \phi 1,78 \text{ mm.}$	BORRACHA NITRILICA	DUREZA TO SHORE-A "PARKER"
20	1	CONECTOR DE SISTEMA BNC-COD.008801	—	
19	1	ANEL ELÁSTICO CODIGO - 501.004	—	"SCEGER-REMO"
18	1	ROLAMENTO RÍGIDO DE ESFERAS	REFER: 634	"SKF"
17	1	EIXO	—	FL. 06 de 08
15	1	PRENSA CABO TIPO PC - 8-8	—	"HELLERMAN"
15	1	MOTOR	—	
14	1	FOTO ACOPLADOR	—	"OM-RON"
13	1	APOIO	—	FL. 06 de 08
12	1	POLIA	—	06 de 08
14	1	POLIA	—	06 de 08
10	1	TAMPA	—	06 de 08
9	1	CUBO	—	06 de 08
3	1	SUPORTE	—	04 de 08
7	1	APOIO	—	08 de 08
6	1	HELICE	—	04 de 08
5	1	CH. FECHAM.	—	07 de 08
4	1	SUPORTE	—	08 de 08
3	1	SUPORTE	—	07 de 08
2	1	BERÇO	—	05 de 08
1	1	BASE	—	FL. 05 de 08
POS.	QT.	DESCRIÇÃO	MATERIAL	CÓDIGO/OBS.
TÍTULO				FOLHA
MODULADOR PARA FEIXE DE NEUTRONS				03
				08

Apêndice 2 - Desenho técnico do chopper.

NOTAS: 1: TODAS AS DIMENSÕES SÃO DADAS EM MM.

2	1	HÉLICE	esp 1 x 100,4 x 142	CADMO	
1	1	SUPOORTE	esp 3 x 120 x 119	ALUMÍNIO	
POS.	QT.	DESCRIÇÃO	MATERIAL	CÓDIGO/OBS.	

TÍTULO

MODULADOR PARA FEIXE DE NEUTRONS

901

FOLHA
04

NOTAS:

1: TODAS AS DIMENSÕES SÃO DADAS EM MM.

2	1	BERÇO	esp 3 x 126,6 x 175,4	ALUMÍNIO	
1	1	BASE	esp 8 x 100 x 150	ALUMÍNIO	
POS.	QT.	DESCRIÇÃO		MATERIAL	CÓDIGO/OBS.
TÍTULO					FOLHA
MODULADOR PARA FEIXE DE NEUTRONS					05

6	1	APOIO	esp 8 x 32 x 32	ACRILICO	
5	1	EIXO	ϕ 7 x 24	AISI- 304	
4	1	POLIA	esp 12 x ϕ 12 mm.	ALUMINIO	
3	1	POLIA	esp 16 x ϕ 37 mm.	" "	
2	1	TAMPA	esp. 8 x ϕ 30 mm.	" "	
1	1	CUBO	esp 12 x ϕ 30 mm.	ALUMINIO	
POS.	QT.	DESCRIÇÃO		MATERIAL	CÓDIGO/OBS.
TÍTULO					FOLHA 06
MODULADOR PARA FEIXE DE NEUTRONS					103

NOTAS: 1: TODAS AS DIMENSÕES SÃO DADAS EM MM.

Apêndice 2 - Desenho técnico do chopper.

NOTAS: 1: TODAS AS DIMENSÕES SÃO DADAS EM MM.

2	1	CH. FECHAM.	esp 1 x 97 x 113	CADMO	
1	1	SUPORTE	esp 1 x 100 x 194	CADMO	
POS.	QT.	DESCRIÇÃO		MATERIAL	CÓDIGO/OBS.
TÍTULO					FOLHA 07
MODULADOR PARA FEIXE DE NEUTRONS					109

Certificate of Analysis

Standard Reference Material U-200

Uranium Isotopic Standard

	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U
Atom percent	0.1246 +0.0003	20.913 +0.020	0.2116 +0.0006	79.651 +0.021
Weight percent	.1229	19.811	.2103	79.856

The material consists of highly purified oxide, U_3O_8 . The atomic weight of the material is calculated to be 237.440 using the nuclidic masses 234.0409; 235.0439; 236.0457; and 238.0508.

The values for ^{234}U and ^{235}U are calculated from measurements at the National Bureau of Standards. The samples were spiked with high-purity ^{235}U to approximate the ^{234}U concentration, the ratios ^{234}U to ^{235}U and ^{235}U to ^{238}U were measured on a triple-filament equipped surface ionization mass spectrometer with d.c. amplifier circuits.

The values for ^{235}U and ^{238}U are derived from measurements made at the National Bureau of Standards, at Union Carbide Nuclear Co., Oak Ridge, Tenn., and at Goodyear Atomic Corp., Portsmouth, Ohio, each laboratory's value being given equal weight. Values obtained at NBS are the result of direct measurement of the ^{235}U to ^{238}U ratio using triple filament thermal ionization. The observed ratios were corrected for mass discrimination effects by determining the system bias from measurements on standards U-500 and U-100. Experience at NBS has shown, through intercomparison of the standards, and synthetic mixtures at the 10-, 50-, and 90-percent ^{235}U level prepared from high-purity ^{235}U and ^{238}U isotopes, that a constant bias for a given procedure can be maintained over the range of 5- to 95-percent ^{235}U . Values from Union Carbide and Goodyear Atomic are based on direct determinations of the ^{235}U concentration by oxide dilution and UF_6 analysis, and then the ratio calculated using the NBS values for ^{234}U and ^{236}U , and the ^{238}U value obtained by difference.

The limits indicated for the isotopic concentrations are at least as large as the 95-percent confidence level for a single determination. The ^{235}U to ^{238}U ratio for this standard, 0.25126, is known to at least 0.1 percent; at the same time the pooled variance for the calibration system is significantly smaller.

Mass spectrometry measurements at NBS were made by Ernest L. Garner and William R. Shields on solutions prepared by Lawrence A. Machlan and Martha S. Richmond.

WASHINGTON, D.C. 20234
June 1, 1966

W. Wayne Meinke, Chief
Office of Standard Reference Materials

(This certificate supersedes certificate of 10-1-58)

INSTITUTO DE PESQUISAS
ENERGETICAS E NUCLEARES

112

LABORATORIO DE METROLOGIA NUCLEAR

Resultado de FLUXO DE NEUTRONS TERMICOS

Relatório nº : F-002/91

Destinatário : RTS (Silvério)

Fonte de nêutrons : BH-8 com filtro de bismuto (20cm) e
colimador de parafina de 5,08cm de
diâmetro.

Reação utilizada : $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$

Tipo de folha de ativação : Folha de Au puro (100 mg)

Dia da Irradiação : 08/04/91

Tipo de Fluxo	Tempo de Irrad.	Posição	Fluxo $n.s^{-1}.cm^{-2}$	Erro ^(*) (%)	Energia de corte
Térmico	3:03 hs	R-I	8,51 E05	3	2meV
Térmico	2:38 hs	R-II	4,19 E05	3	2meV

* Erro relativo com nível de confiança de 68%

Obs: Considerações para efeito de cálculo do fluxo de nêutrons
térmicos : - Espectro Térmico Maxwelliano.

- A secção de choque considerada foi calculada
utilizando-se a transmissão do Bismuto
- O erro absoluto é de: +46% e -13% com
nível de confiança de 68%.

São Paulo, 17 de Abril de 1991.

Responsável : Mauro da Silva Dias

Apêndice 4 - Certificado da metrologia do fluxo de nêutrons
térmicos.

Posição R-I - Sem atenuação: R-II com 3 mm de Makrofol-E

Apêndice 5 - Neutronografia do detector: (1) - fluxo de nêutrons colimado. (2) - corpo do detector. Observa-se que o detector não está muito bem centrado, mas está totalmente contido no feixe de nêutrons. (Colaboração do Dr. R. Pugliesi e L.A. Mai)