

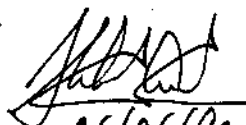
UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS
INSTITUTO DE FISICA GLEB WATAGHIN

DATAÇÃO COM O METODO DOS TRAÇOS DE FISSÃO: ESTUDO
DA DOSIMETRIA DE NEUTRONS COM FILMES FINOS DE URANIO NATURAL.

ALUNO: PEDRO JOSE IUNES

ORIENTADOR: JULIO CESAR HADLER NETO

*Este exemplar corresponde à redação final da tese de
mestrado de Pedro José Iunes aprovada pela Comissão
Julgadora.*

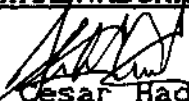

06/06/90

TESE SUBMETIDA AO INSTITUTO DE FISICA GLEB WATAGHIN DA
UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS COMO PARTE DOS REQUISITOS PARA A
OBTENÇÃO DO GRAU DE MESTRE EM CIÊNCIAS.

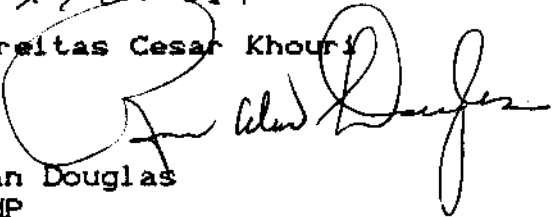
JUNHO DE 1990

Tese aprovada com distinção e louvor.

BANCA EXAMINADORA


Prof. Dr. Julio Cesar Hadler Neto
IFGW/UNICAMP

Maurilio T. F. Freitas
Profa. Dra. Marília Tereza Freitas Cesar Khouri
IPEN/CNEN


Prof. Dr. Ross Allan Douglas
IFGW/UNICAMP

Prof. Dr. André Koch Torres de Assis
IFGW/UNICAMP

Prof. Dr. Edison Hiroyuki Shibuya
IFGW/UNICAMP

DEDICO A SILEIDE
AOS MEUS PAIS E
AOS MEUS SOGROS

AGRADECIMENTOS

Ao Julio, pela atuação perfeita (constante, precisa e amiga) como meu orientador.

Ao Bigazzi, pela insubstituível participação durante todo o andamento desta tese.

Ao Massimo, pelas irradiações em Pavia e pelas medidas com o Ba e Au.

À Marília, pelas irradiações no IPEN.

À Lúcia, por suas medidas cuidadosas.

Ao Luis, pelos imprescindíveis auxílios com o micro.

Ao Sérgio e à Ana Maria, por nossa amizade.

RESUMO

Neste trabalho, descreve-se sinteticamente a datação com o método dos traços de fissão, MTF, enfocando-se seus dois aspectos mais polêmicos: a falta de um consenso sobre o valor da constante de desintegração por fissão espontânea do ^{238}U , λ_f , e a inexistência de uma dosimetria de neutrons (medida da fluência de neutrons a que deve ser submetido o mineral a ser datado pelo MTF) que seja aceita, sem restrições, pelos pesquisadores que utilizam o MTF.

A seguir, descreve-se os procedimentos experimentais e os resultados obtidos dentro de um estudo que utilizou filmes finos de urânio natural como dosímetros de neutrons.

A partir dos resultados obtidos neste trabalho, pode-se concluir que as características da dosimetria com filmes finos de urânio natural a colocam em uma posição importante em estudos que visem utilizar o MTF como um método independente de outros métodos de datação de minerais.

INDICE

1. - Introdução.
2. - Datação com o MTF.
3. - Os problemas do valor de λ_f e da dosimetria de neutrons, dentro do MTF.
4. - Dosimetria de neutrons com filmes finos de urânio natural.
 - 4.1. - Obtenção dos filmes.
 - 4.2. - Determinação do conteúdo de urânio dos filmes.
 - 4.3. - Determinação da eficiência de detecção da mica muscovita em relação a fragmentos de fissão produzidos nos filmes.
5. - Intercomparação de dosimetrias de neutrons dentro do MTF.
 - 5.1. - Comparação entre diferentes filmes finos.
 - 5.2. - Comparação entre a dosimetria com filmes finos e outras dosimetrias.
6. - Viabilidade da utilização de filmes finos de urânio em fluências de neutrons usualmente utilizadas na datação com o MTF.
7. - Conclusões.

APÊNDICE

Sobre a auto-absorção de fragmentos de fissão produzidos em filmes de UO_3 com espessuras $\leq 0,1\mu$.

1.- INTRODUÇÃO

A datação com traços de fissão nasceu após os trabalhos pioneiros desenvolvidos por R.L. Fleischer, P.B. Price e R.M. Walker, da General Electric, EUA, na primeira metade da década de sessenta. Estes pesquisadores descobriram:

- i) A possibilidade de se revelar quimicamente os traços decorrentes dos danos de radiação, produzidos por partículas carregadas ao longo de seu percurso em alguns minerais (a revelação química é importante pois possibilita a observação dos traços através do microscópio óptico comum);
- ii) A existência, dentro de diversos minerais, de traços que poderiam ser classificados como traços fósseis, porque tinham sido produzidos durante a história geológica do mineral.

Aqueles pesquisadores identificaram os traços fósseis como sendo devido a fissões espontâneas de núcleos de ^{238}U . A partir desta constatação surgiu um novo método de datação de minerais, o método dos traços de fissão, MTF, onde, semelhantemente a outros métodos radiométricos, a determinação quantitativa de um elemento radiogênico "filho" e do elemento "pai", conduz, conhecidas as constantes de decaimento envolvidas, a uma medida da idade do mineral.

No caso do MTF, a idade, em princípio, pode ser obtida conhecendo-se a constante de desintegração por fissão espontânea do ^{238}U , λ_f , o número de fissões espontâneas ocorridas durante a história geológica do mineral (cada traço "fóssil" revelado representa uma fissão espontânea ocorrida, a menos de um fator de eficiência de detecção, ϵ_{238}) e a quantidade de átomos de ^{238}U , N_{238} , existente no mineral.

Porém, como N_{238} e ϵ_{238} são parâmetros difíceis de se determinar, os descobridores do MTF propuseram que o mineral a ser datado fosse irradiado com neutrons térmicos. Desta forma, a quantidade de traços de fissão produzida pela reação $^{235}\text{U} (n, \text{fissão})$ é proporcional à quantidade de ^{235}U no mineral, N_{235} , e a um fator de eficiência de detecção, ϵ_{235} . Conhecendo-se então a fluência de neutrons térmicos utilizada e a seção de choque da

reação acima mencionada, a idade do mineral pode ser obtida, fazendo-se a razão entre as equações que descrevem os traços fósseis e os induzidos. Procedendo-se desta forma os fatores de eficiência que em princípio são iguais, são cancelados e a razão N_{238}/N_{235} se transforma na razão entre as concentrações isotópicas daqueles isótopos do urânio, que é uma constante da natureza.

Os problemas do MTF mais discutidos na década de oitenta estão relacionados com a falta de um consenso sobre o valor de λ_f e com a inexistência de uma dosimetria de neutrons (medida da fluência de neutrons a que deve ser submetido o mineral a ser datado) que seja aceita sem restrições.

Como será visto mais à frente, esses problemas possivelmente não são independentes. Isto acabou acontecendo porque demorou alguns anos até que se percebesse que a dosimetria de neutrons podia estar carregando erros sistemáticos dentro do MTF. Esta demora em parte foi causada pelo fato de que por razões históricas e/ou operacionais não se buscou de início estudar a dosimetria em profundidade, mas sim considerar corretos os procedimentos que levassem a que as idades do MTF fossem concordantes com as de outros métodos de datação.

No intuito de desvincular o MTF de outros métodos de datação, alguns pesquisadores se empenharam na procura de dosimetrias de neutrons absolutas e que se baseiam na reação $^{235}\text{U}(n, \text{fissão})$, a mesma que ocorre no mineral durante a irradiação com neutrons.

Nos últimos quatro anos foram propostas duas dosimetrias absolutas baseadas na reação $^{235}\text{U}(n, \text{fissão})$: a dosimetria com filmes finos de urânio (Wall, 1988) e a dosimetria do ^{140}Ba (Bigazzi et al., 1988a).

O objetivo deste trabalho é efetuar um estudo metodológico da dosimetria de neutrons com filmes finos de urânio natural, visando avaliar criticamente as possibilidades de sua utilização dentro do MTF.

2. - DATAÇÃO COM O MTF

Os minerais, em geral, contêm urânio como impureza, em quantidades da ordem de algumas p.p.m. O ^{238}U , isótopo mais abundante do urânio natural, tem uma certa probabilidade de se fissionar espontaneamente, e quando isto ocorre, é produzido no interior do mineral uma zona completamente desarranjada, devido à grande energia, massa e carga dos fragmentos de fissão. Esta região chama-se traço latente.

Os traços latentes são produzidos cumulativamente no mineral durante sua história geológica.

Se o mineral é submetido a um ataque químico conveniente, os traços latentes que se estenderam até a sua superfície, por serem mais reativos ao ataque químico que o corpo do mineral, ficam amplificados e podem ser observados ao microscópio óptico comum. O número de traços espontâneos (ou fósseis) visíveis ao microscópio óptico por unidade de superfície, ρ_s , permite que se determine a idade do mineral, T , através da relação:

$$\rho_s = N_U C_{238} \frac{\lambda_F}{\lambda} [\exp(\lambda T) - 1] \epsilon_{238} \quad (2-1)$$

onde: N_U é o número de átomos de urânio por unidade de volume, presente no mineral;

C_{238} é a concentração isotópica do ^{238}U no urânio natural;

λ é a constante de decaimento alfa do ^{238}U , em unidade de tempo $^{-1}$;

ϵ_{238} é um fator de eficiência de detecção, que representa a razão entre o número de traços de fissão espontânea do ^{238}U , observados por unidade de superfície do mineral e o número de fissões espontâneas do ^{238}U , ocorridas por unidade de volume.

Para se evitar as difíceis determinações de N_U e ϵ_{238} , irradia-se o mineral a ser datado, num reator nuclear, com uma

fluência de neutrons térmicos, ϕ_0 . Após uma segunda revelação química, pode-se medir, ao microscópio, o número de traços de fissão do ^{235}U , induzida por neutrons térmicos, por unidade de superfície, ρ_I :

$$\rho_I = N_U C_{235} \sigma_0 \phi_0 \epsilon_{235} \quad (2-2)$$

onde: C_{235} é a concentração isotópica do ^{235}U no urânio natural;
 σ_0 é a seção de choque para fissão do ^{235}U , induzida por neutrons térmicos;

ϵ_{235} representa a razão entre o número de traços de fragmentos de fissão do ^{235}U , induzida por neutrons térmicos, observados por unidade de superfície do mineral e o número de fissões do ^{235}U , induzidas por neutrons térmicos, ocorridas por unidade de volume.

Assumindo que os traços latentes de fissão espontânea, permaneceram inalterados no mineral, durante sua história geológica, pode-se escrever que $\epsilon_{238} = \epsilon_{235}$ (Bigazzi et al., 1988b). Lembrando-se ainda que os átomos de ^{238}U e de ^{235}U , são encontrados em amostras naturais numa razão isotópica constante, ou seja, $C_{238}/C_{235} = \eta$, se obtém das equações (2-1) e (2-2) a idade do mineral pelo MTF:

$$T = \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 + \frac{\lambda \phi_0 \sigma_0}{\lambda_F \eta} \frac{\rho_S}{\rho_I} \right] \quad (2-3)$$

O que foi resumido aqui resultou dos trabalhos pioneiros (Price and Walker, 1962a, b, c, d; Fleischer and Price, 1963; Price and Walker, 1963) desenvolvidos pelos pais do MTF.

Uma boa síntese dos problemas e das possíveis aplicações do MTF pode ser encontrada em Fleischer et al., 1978.

3. - OS PROBLEMAS DO VALOR DE λ_f E DA DOSIMETRIA DE NEUTRONS, DENTRO DO MTF.

Seguramente os problemas mais discutidos pela comunidade dos traços de fissão na década de oitenta estão relacionados com a falta de um consenso sobre o valor de λ_f e com a inexistência de uma dosimetria de neutrons que seja aceita sem restrições pelos pesquisadores que utilizam o MTF.

Desde 1940 até hoje, mais de 40 medidas de λ_f foram efetuadas. Se forem tomados os valores obtidos a partir da descoberta do MTF, pode-se notar a polirazação dos resultados em torno de dois valores: $(8,85 \pm 0,20) \times 10^{-17} \text{a}^{-1}$ (Fleischer and Price, 1964) e $(8,42 \pm 0,08) \times 10^{-17} \text{a}^{-1}$ (Galliker et al., 1970). A disparidade entre os valores de λ_f obtidos experimentalmente está muito bem documentada e discutida (Thiel and Herr, 1976; Bigazzi, 1981; Hadler, 1982).

O valor $8,85 \times 10^{-17} \text{a}^{-1}$ está alicerçado principalmente em medidas efetuadas dentro do MTF e nos resultados de alguns trabalhos onde se mostrou que idades obtidas pelo MTF, utilizando-se aquele valor de λ_f , eram concordantes com as obtidas com outros métodos de datação, para diversos minerais.

O valor $8,42 \times 10^{-17} \text{a}^{-1}$ é evidenciado por medidas feitas através de várias técnicas experimentais (análise radioquímica, câmara rotativa de bolhas, câmara de ionização e outras), por resultados de alguns trabalhos onde se verificou que aquele valor de λ_f também resultava em idades concordantes entre o MTF e outros métodos de datação, para diversos minerais e, finalmente, para três medidas de λ_f efetuadas dentro do MTF onde se tomou grandes cuidados com relação à dosimetria de neutrons (Wagner et al., 1975; Thiel and Herr, 1976; Hadler et al., 1981), sendo que neste último trabalho se utilizou uma dosimetria de neutrons baseada na reação $^{235}\text{U}(n, \text{fissão})$, que não necessitou de calibrações efetuadas através de outras dosimetrias.

Apesar dos geocronologistas poderem adotar o valor $8,85 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$ ou o valor $8,42 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$ para a constante λ_f . Estes valores diferem de aproximadamente 20%, peculiaridades dos procedimentos experimentais adotados em cada laboratório, podem fazer com que a datação de uma determinada amostra, efetuada em um laboratório onde se utilizou um dos dois valores mais prováveis de λ_f , produza resultados compatíveis com uma datação desta mesma amostra efetuada em um outro laboratório onde se utilizou o outro valor de λ_f . Ou seja, existem certos procedimentos experimentais que são compatíveis com o valor de λ_f utilizado na datação com o MTF.

Por exemplo, no final da década de setenta, pesquisadores que não pertenciam à comunidade dos traços de fissão, utilizando procedimentos experimentais incompatíveis com o valor de λ_f utilizado, publicaram resultados que abalaram a confiabilidade do MTF (Gale et al., 1979; McKevrow et al., 1980; Gale et al., 1980).

Diante disto, no 1º Fission Track Workshop, ocorrido em Pisa, Itália, em 1980, foi enfocada a necessidade de se padronizar as calibrações e os procedimentos experimentais utilizados no MTF e que possivelmente estariam associados ao valor de λ_f . Foi enfatizado (Hurford and Green, 1981) a dependência entre o valor de λ_f e o método de determinação da fluência de neutrons térmicos utilizados. Bigazzi (Bigazzi, 1981) também enfatizou a importância da fluência de neutrons, mas deu igual ênfase a possíveis erros sistemáticos relacionados à revelação e contagem dos traços e ao fading dos traços espontâneos (perda dos traços espontâneos devido à história térmica do mineral).

As principais propostas de calibração para o MTF foram:

1.- Calibração da idade do mineral a ser datado pelo MTF através de um mineral de idade conhecida por outros métodos de datação.

A idade de um mineral a ser datado pelo MTF pode ser encontrada, se um mineral com idade conhecida for datado simultaneamente (o mineral a ser datado e o mineral padrão são submetidos à mesma irradiação com neutrons térmicos). Desta maneira, para a amostra com idade desconhecida, da equação (2-3), tem-se que:

$$T_{\text{UNK}} = \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 + \frac{\lambda \sigma_o \phi_o}{\lambda_F \eta} \left(\rho_S / \rho_I \right)_{\text{UNK}} \right] \quad (3-1)$$

e para a amostra padrão de idade conhecida tem-se que:

$$T_{\text{STD}} = \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 + \frac{\lambda \sigma_o \phi_o}{\lambda_F \eta} \left(\rho_S / \rho_I \right)_{\text{STD}} \right]$$

donde se pode ver que:

$$\frac{\lambda \sigma_o \phi_o}{\lambda_F \eta} = \frac{\left[\exp (\lambda T_{\text{STD}}) - 1 \right]}{\left(\rho_S / \rho_I \right)_{\text{STD}}} \quad (3-2)$$

Substituindo-se a equação (3-2) na equação (3-1) tem-se que:

$$T_{\text{UNK}} = \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 + \left[\exp (\lambda T_{\text{STD}}) - 1 \right] \frac{\left(\rho_S / \rho_I \right)_{\text{UNK}}}{\left(\rho_S / \rho_I \right)_{\text{STD}}} \right] \quad (3-3)$$

o que elimina de T_{UNK} a possível influência dos parâmetros λ_F e ϕ_o .

2.- Calibração de vidros dopados com urânio através de minerais com idades conhecidas.

Se for irradiado um vidro artificial, dopado com urânio, justaposto a um detetor de fragmentos de fissão (por exemplo uma mica muscovita) em uma fluência ϕ_o de neutrons térmicos, a densidade superficial de traços no detetor externo, ρ_D , pode ser escrita como (Fleischer et al., 1965):

$$\rho_D = B \phi_0 \quad (3-4)$$

onde B é uma constante proporcional ao conteúdo de urânio do vidro, à eficiência de observação dos fragmentos de fissão no detetor externo e à σ_0 .

Se esta montagem vidro padrão/detetor externo for irradiada junto com um mineral de idade conhecida e em seguida forem efetuadas as medidas de $(\rho_S/\rho_I)^*$ no mineral e de ρ_D^* no detetor externo, das equações (3-2) e (3-4) tem-se que:

$$B = \frac{\rho_D^* \lambda \sigma_0 (\rho_S/\rho_I)^*_{STD}}{\eta \lambda_F \left[\exp (\lambda T_{STD}) - 1 \right]} \quad (3-5)$$

onde * se refere à irradiação de calibração.

Através desta calibração, a fluência para uma nova irradiação com neutrons térmicos, pode ser obtida substituindo-se a equação (3-5) na equação (3-4). Desta forma, tem-se que:

$$\phi_0 = \left[\frac{\eta \lambda_F \left(\exp (\lambda T_{STD}) - 1 \right)}{\rho_D^* \lambda \sigma_0 (\rho_S/\rho_I)^*_{STD}} \right] \rho_D \quad (3-6)$$

Assim, se forem irradiados com neutrons térmicos, um mineral a ser datado pelo MTF e um arranjo vidro padrão/detetor externo calibrado através de um mineral de idade conhecida, a idade do mineral a ser datado pode ser obtida substituindo-se a equação (3-6) na equação (3-1):

$$T_{\text{UNK}} = \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 + \left(\frac{\exp(\lambda T_{\text{STD}}) - 1}{\rho_D^* (\rho_S/\rho_I)^*_{\text{STD}}} \right) \rho_D (\rho_S/\rho_I)_{\text{UNK}} \right] \quad (3-7)$$

Esta proposta é a base da chamada calibração zeta (Hurford and Green, 1983). A calibração zeta está normalmente associada com um método de contagem de traços, o método do detector externo, MDE, utilizado para minimizar erros sistemáticos na datação de minerais que se apresentam na forma de pequenos grãos com conteúdo de urânio variando grão a grão. No MDE, os grãos do mineral são montados sobre um suporte de plástico e após o polimento e o ataque químico são efetuadas as medidas de ρ_S em cada grão. Em seguida, se acopla um detector externo aos grãos e se efetua a irradiação com neutrons. As medidas de ρ_I são efetuadas no detector externo. Neste caso, a equação (3-7) pode ser escrita como:

$$T_{\text{UNK}} = \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 + \left(\frac{\exp(\lambda T_{\text{STD}}) - 1}{\rho_D^* (\rho_S/\rho_I)^*_{\text{STD}} g_{\text{STD}}} \right) \rho_D (\rho_S/\rho_I)_{\text{UNK}} g_{\text{UNK}} \right] \quad (3-8)$$

onde g_{STD} (g_{UNK}) é um fator de calibração para o mineral standard (unknown) que leva em conta que as medidas de ρ_S e ρ_I foram efetuadas em detectores diferentes e em condições geométricas também diferentes. Deve ser notado que o fator g , principalmente por envolver a utilização de detectores diferentes, pode depender de condições experimentais (como por exemplo o ataque químico e o critério de observação para a contagem dos traços) utilizadas.

Na calibração zeta (ζ), a equação (3-8) é escrita da seguinte forma:

$$T_{\text{UNK}} = \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 + \lambda \zeta \rho_D (\rho_S/\rho_I)_{\text{UNK}} g_{\text{UNK}} \right] \quad (3-9)$$

onde:

$$\zeta = \left[\frac{\exp(\lambda T_{STD}) - 1}{\lambda \rho_D^* (\rho_S / \rho_I)^*_{STD} g_{STD}} \right]$$

A constante ζ é encontrada para um dado vidro padrão, através de várias irradiações de calibração.

A equação (3-9), assim como a equação (3-3), elimina λ_F e ϕ_0 da equação da idade; porém, a primeira delas recebeu maior atenção da comunidade dos traços de fissão por ser mais simples, do ponto de vista experimental.

3.- Padronização da dosimetria de neutrons a ser utilizada na datação com o MTF.

Nesta proposta, através de comparações entre vários laboratórios que utilizassem a dosimetria padrão, seria obtido o valor de λ_F que melhor ajustasse as idades obtidas através do MTF com as idades obtidas através de outros métodos de datação. Este valor operacional de λ_F seria recomendado, juntamente com a utilização da dosimetria padrão adotada.

As alternativas 1), 2), e 3), descritas acima, quando utilizadas corretamente, levam a idades concordantes com as obtidas através de outros métodos de datação de minerais, o que deu novamente confiabilidade ao MTF. Porém, tais alternativas vinculam, pelo menos indiretamente, o MTF a outros métodos de datação e visam, na realidade, contornar possíveis erros sistemáticos que afetam o MTF, já que λ_F é uma constante da física acessível, em princípio, à medição.

Um dos possíveis erros sistemáticos que provavelmente tem relação com a indeterminação de λ_F é aquele que acompanha a dosimetria de neutrons dentro do MTF.

Com relação à dosimetria de neutrons do MTF, uma forma mais exata da equação (2-2), pode ser obtida levando-se, também, em conta: i) a presença, nos minerais a serem datados pelo MTF, do ^{235}U e do ^{232}Th como núcleos fissionáveis por neutrons e ii) a presença de neutrons epitérmicos durante as irradiações.

Desta forma, a equação (2-2) pode ser escrita como:

$$\begin{aligned} \rho_1^x = N_U \left\{ C_{235} \int_0^{\infty} \epsilon_{235}(E) \phi^x(E) \sigma_{235}(E) dE + \right. \\ \left. + C_{238} \int_0^{\infty} \epsilon_{238}(E) \phi^x(E) \sigma_{238}(E) dE + \right. \\ \left. + \left(N_{232}/N_U \right) \int_0^{\infty} \epsilon_{232}(E) \phi^x(E) \sigma_{232}(E) dE \right\} \quad (3-10) \end{aligned}$$

onde: os sub-índices 235, 238 e 232 se referem ao ^{235}U , ^{238}U e ^{232}Th , respectivamente;

$\epsilon_i(E)$ representa, quando os núcleos do tipo i são irradiados com neutrons de energia E, a razão entre o número de traços de fragmentos de fissão observados por unidade de superfície do mineral e o número de fissões ocorridas por unidade de volume;

$\phi^x(E)$ é a fluência de neutrons com energia E, por unidade de energia, na irradiação x (Bigazzi and Hadler, 1989);

$\sigma_i(E)$ é a seção de choque do núcleo do tipo i, para a fissão induzida por neutrons de energia E;

(N_{232}/N_U) é a razão entre o número de núcleos de ^{232}Th e o número de núcleos de urânio presentes no mineral.

Uma boa aproximação da equação (3-10) pode ser obtida se for considerado que:

$$\epsilon_i(E) = \epsilon_{235}$$

onde ϵ_{295} foi definido na equação (2-2). Assim, a equação (3-10) pode ser escrita como:

$$\rho_I^x = N_U \epsilon_{295} \left\{ C_{295} \int_0^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE + \right. \\ \left. C_{238} \int_0^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{238}(E) dE + (N_{292}/N_U) \int_0^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{292}(E) dE \right\} \quad (3-11)$$

O espectro de neutrons de um reator nuclear é composto de neutrons sendo freiados através de sucessivos choques elásticos com o meio e de neutrons em equilíbrio térmico com o meio. Este espectro de neutrons pode ser descrito pela superposição de uma componente característica do intervalo de energia térmica e de uma componente característica do intervalo de energia epitérmica (I.C.R.U., 1969; I.A.E.A., 1970).

Na prática, é muito difícil separar totalmente a componente térmica da componente epitérmica. O que se utiliza é a propriedade especial do cádmio poder agir como um ótimo filtro "passa alto". Ou seja, um material irradiado com neutrons em um reator nuclear, dentro de um filtro ideal de cádmio, sofre apenas a influência de uma irradiação com neutrons de energia acima de uma determinada energia E_{cd} . Um filtro ideal de cádmio tem, por definição, absorção infinita para neutrons com energias abaixo de E_{cd} e absorção zero para neutrons com energias acima de E_{cd} . A energia E_{cd} é chamada energia efetiva de corte do cádmio (effective cadmium cut-off). O valor de E_{cd} depende da espessura do cádmio e do ângulo de incidência dos neutrons, mas geralmente é próximo de 0,5 eV. Desta forma todos os neutrons térmicos (com energias menores que 0,1 eV) são absorvidos por um filtro ideal de cádmio.

Assim, desprezando-se as fissões do ^{238}U e do ^{292}Th , induzidas por neutrons com energias abaixo de E_{cd} , a equação (3-11) pode ser escrita como:

$$\begin{aligned} \rho_1^x = N_U \epsilon_{295} \left\{ C_{295} \int_0^{E_{cd}} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE + \right. \\ \left. + C_{295} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE + C_{290} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{290}(E) dE + \right. \\ \left. + (N_{292}/N_U) \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{292}(E) dE \right\} \quad (3-12) \end{aligned}$$

onde o termo

$$C_{295} \int_0^{E_{cd}} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE$$

pode ser dividido em duas partes: uma parte considerando a componente maxwelliana (térmica) do espectro de neutrons (neutrons com energias $E_{Max} < 0,1eV$) e a outra parte considerando a componente epitérmica do espectro de neutrons que é absorvida por um filtro ideal de cádmio (neutrons com energias entre o limite superior da energia térmica e E_{cd}).

Para um reator bem moderado, a componente maxwelliana do termo

$$C_{295} \int_0^{E_{cd}} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE$$

pode ser escrita segundo o formalismo de Wescott (Wescott et al., 1958; Wescott, 1960), como:

$$C_{295} t_{irr}^x \phi_0^x \sigma_0 g_{295}(T^x)$$

onde: t_{irr}^x é o tempo de duração da irradiação x;

ϕ_0^x é o chamado fluxo convencional de neutrons térmicos da irradiação x. ϕ_0^x se refere a uma distribuição maxwelliana com velocidade mais provável de 2200m/s (o que equivale a uma temperatura dos neutrons de 293,6°K);

σ_0 é a seção de choque convencional para fissão do ^{235}U por neutrons térmicos. σ_0 é também chamada de seção de choque para 2200m/s, para a reação $^{235}\text{U}(n, \text{fissão})$;

$g_{235}(T^x)$ é o parâmetro g de Westcott do ^{235}U em função da temperatura dos neutrons na posição onde se efetua a irradiação x. Este parâmetro representa uma correção para o afastamento da seção de choque do ^{235}U da lei $1/v$, no intervalo térmico.

Desta maneira, a equação (3-12) pode ser escrita como:

$$\rho_I^x = N_U \epsilon_{235} \left\{ C_{235} t_{irr}^x \phi_0^x \sigma_0 g_{235}(T^x) + \right.$$

$$+ C_{235} \int_{E_{max}}^{E_{cd}} \phi^x(E) \sigma_{235}(E) dE + C_{235} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{235}(E) dE +$$

$$+ C_{238} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{238}(E) dE + (N_{232}/N_U) \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{232}(E) dE \left. \right\} (3-13)$$

Esta equação leva em conta algumas considerações, desprezadas na equação (2-2), que podem ser significativas, dependendo da termalização dos neutrons na posição de irradiação utilizada.

Os dosímetros de neutrons normalmente utilizados na datação com o MTF são de dois tipos: folhas de ativação e vidros padrões dopados com urânio. A respeito destes dosímetros muitas considerações foram feitas pelos pesquisadores que utilizam o MTF, durante a década de oitenta (ver, por exemplo: Hurford and Green, 1982; Green and Hurford, 1984; Crowley, 1986; Van Den Haute et al., 1988; Suzuki and Tomura, 1988; Tagami and Nishimura, 1989).

A dosimetria com folhas de ativação se baseia na medida da atividade gama que acompanha a atividade beta menos, induzida pela captura de neutrons por núcleos metálicos (Au, Co, Mn, Fe, Cu, etc.) durante uma irradiação.

Geralmente, quando se utiliza esta dosimetria na datação com o MTF, a equação (3-13) é utilizada desprezando-se a componente epitérmica do espectro de neutrons:

$$\rho_I^x = N_U \epsilon_{295} C_{295} t_{irr}^x \phi_0^x g_{295}(T^x) \quad (3-14)$$

A fluência convencional de neutrons térmicos, $t_{irr}^x \phi_0^x$, para a irradiação x, pode ser obtida por um monitor de ativação através da seguinte equação (I. A. E. A., 1970):

$$t_{irr}^x \phi_0^x = \phi_0 = \frac{A t_{irr}^x}{M \sigma_i^{eff} \left[1 - \exp(-\lambda_i t_{irr}^x) \right] \exp(-\lambda_i t_d)} \quad (3-15)$$

onde: A é a taxa absoluta de desintegração, observada no monitor, depois de um tempo t_d após o término da irradiação;
M é o número de núcleos pais presentes na folha irradiada;
 λ_i é a constante de decaimento do metal ativado;
 σ_i^{eff} é a seção de choque efetiva, para a captura de um neutron por um núcleo do metal i. Esta seção de choque pode

ser escrita, de acordo com o formalismo de Westcott, como:

$$\sigma_i^{eff} = \sigma_{oi} \left[g_i(T^x) G_i^{th} + r s_i(T^x) G_i^{ep} \right] \quad (3-16)$$

onde: σ_{oi} é a seção de choque convencional para a captura de um neutron por um núcleo metálico i;

G_i^{th} e G_i^{ep} representam as correções devido à autoabsorção de neutrons térmicos e epitérmicos pelos núcleos i, respectivamente;

$s_i(T^x)$ é o parâmetro s de Westcott para o nucleo i. Este parâmetro, dependente da temperatura dos neutrons na irradiação x, representa as correções devido ao afastamento da seção de choque, para a absorção de neutrons epitérmicos, da lei $1/v$;

r representa a razão entre os fluxos de neutrons epitérmicos e térmicos.

Se o intervalo de tempo, t_c , durante o qual se efetua a medida da atividade γ , A, for significativo em relação à meia vida do núcleo i, o fator $\exp(-\lambda_i t_d)$ deve ser substituído por $\exp[-\lambda_i(t_d + t_c)]$.

A dosimetria de neutrons com vidros padrões dopados com urânio foi proposta (Fleischer et al., 1964) com o intuito de simplificar a dosimetria de neutrons do MTF. Por ser uma técnica que se baseia na reação $^{235}\text{U}(n, \text{fissão})$ (embora dosimetrias com folhas sejam empregadas na calibração dos vidros padrões) e que permite que ϕ_0 seja determinado através de contagens de traços produzidos pelos vidros padrões, esta dosimetria foi bastante difundida entre os pesquisadores da comunidade dos traços de fissão. Como já foi citado anteriormente, sua utilização está ligada à análise de traços de fissão atacados quimicamente no próprio vidro ou em um detetor externo adjacente (normalmente uma mica muscovita).

Os vidros padrões mais utilizados são os do National Bureau of Standards - EUA (NBS), da série SRM (Carpenter and Reimer, 1974). Alguns problemas com relação aos vidros do NBS podem ser apontados:

- i) a dopagem destes vidros padrões foi efetuada com urânio depletado (a concentração isotópica do ^{235}U é menor que a natural);
- ii) contém como impureza diversos elementos químicos (tório, boro, terras raras, etc.) que podem produzir alterações no fluxo de neutrons que se quer medir;
- iii) alguns autores apontam desuniformidades no conteúdo de urânio desses vidros (Hurford and Green, 1982).

Outros vidros padrões utilizados são o CN1 e o CN2 da Corning-EUA (Schreurs et al., 1971), que não apresentam nenhum dos problemas mencionados anteriormente, mas não possuem uma calibração padrão, como os do NBS.

Os vidros padrões do NBS são comprados em um "kit" com seis unidades. Dois destes vidros são previamente irradiados no reator do NBS, em duas posições de irradiação com diferentes termalizações (posições RT3 e RT4). Nestas irradiações, a fluência convencional de neutrons térmicos é medida por mais de um monitor de ativação (Au, Co, Cu, etc.). Se forem levadas em conta apenas as presenças do ^{232}Th e dos isótopos do urânio, pode-se escrever a densidade superficial de traços de fissão, em um dos dois vidros irradiados pelo NBS, como:

$$\begin{aligned}
 \rho_D^* = N_U^{\text{NBS}} \epsilon^{\text{NBS}} \left\{ C_{235}^{\text{NBS}} t_{\text{irr}}^* \phi_0^* \sigma_0 g_{235}(T^*) + \right. \\
 + C_{295}^{\text{NBS}} \int_{E_{\text{Cd}}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{295}(E) dE + C_{238}^{\text{NBS}} \int_{E_{\text{Cd}}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{238}(E) dE + \\
 \left. + (N_{292}/N_U)^{\text{NBS}} \int_{E_{\text{Cd}}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{292}(E) dE \right\} \quad (3-17)
 \end{aligned}$$

onde ϵ^{NBS} é a eficiência de contagem dos traços no próprio detector ou no detector externo, dependendo de onde a medida de ρ_D^* é efetuada. O símbolo * se refere à irradiação de calibração, efetuada na posição RT3 ou na posição RT4.

Se um dos quatro vidros restantes, que não foram previamente irradiados pelo NBS, for submetido a uma irradiação x, ρ_D^x pode ser escrito como:

$$\begin{aligned} \rho_D^x = N_U^{NBS} \epsilon^{NBS} \left\{ C_{235}^{NBS} t_{irr}^x \phi_o^x \sigma_o g_{235}(T^x) \right. \\ + C_{235}^{NBS} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{235}(E) dE + C_{238}^{NBS} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{238}(E) dE + \\ \left. + (N_{292}/N_U)^{NBS} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{292}(E) dE \right\} \quad (3-18) \end{aligned}$$

Das equações (3-17) e (3-18) pode-se obter $t_{irr}^x \phi_o^x$ através da seguinte equação:

$$\begin{aligned} t_{irr}^x \phi_o^x = \left\{ \frac{\rho_D^x}{\rho_D^*} \frac{g_{235}(T^*)}{g_{235}(T^x)} t_{irr}^* \phi_o^* + \right. \\ + \frac{\rho_D^x}{\rho_D^*} \left[\left(C_{235}^{NBS} \int_{E_{max}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{235}(E) dE + C_{238}^{NBS} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{238}(E) dE + \right. \right. \\ \left. \left. + (N_{292}/N_U)^{NBS} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{292}(E) dE \right) / C_{235}^{NBS} \sigma_o g_{235}(T^x) \right] - \end{aligned}$$

$$- \left\{ C_{295}^{NBS} \int_{E_{\max}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE + C_{298}^{NBS} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{298}(E) dE + \right. \\ \left. + (N_{292}/N_U)^{NBS} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{292}(E) dE \right\} / \left\{ C_{295}^{NBS} \sigma_o g_{295}(T^x) \right\} \quad (3-19)$$

Para um mineral também submetido a uma irradiação x, ρ_I^x será dado pela equação (3-13). Irradiando-se um mineral junto com um vidro padrão do NBS temos (substituindo-se a equação (3-19) na equação (3-13)) que:

$$\rho_I^x = N_U \epsilon_{295} \left\{ C_{295} t_{irr}^* \rho_o^* \sigma_o g_{295}(T^*) \frac{\rho_D^x}{\rho_D^*} + \right. \\ + \frac{C_{295}}{C_{295}^{NBS}} \frac{\rho_D^x}{\rho_D^*} \left[C_{295}^{NBS} \int_{E_{\max}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{295}(E) dE + C_{298}^{NBS} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{298}(E) dE + \right. \\ \left. + (N_{292}/N_U)^{NBS} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{292}(E) dE \right] + \\ + \left(C_{298} - \frac{C_{295}}{C_{295}^{NBS}} C_{298}^{NBS} \right) \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{298}(E) dE + \\ \left. + \left[(N_{292}/N_U) - \frac{C_{295}}{C_{295}^{NBS}} (N_{292}/N_U)^{NBS} \right] \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{292}(E) dE \right\} \quad (3-20)$$

No manual que acompanha o "kit" com os vidros padrões, são fornecidos os valores de t_{irr}^* e ϕ_0^* (os valores de ϕ_0^* são dados para cada dosímetro de ativação que acompanha a irradiação *), para os dois vidros pré-irradiados pelo NBS.

Os pesquisadores da comunidade dos traços de fissão, geralmente, desprezam as fissões induzidas por neutrons epitérmicos nas irradiações de calibração. Desta maneira, considerando o caso em que o valor de

$$\left(g_{235}(T^*) t_{irr}^* \phi_0^* / \rho_D^* \right)$$

é obtido através da média das calibrações para as posições RT3 e RT4, referentes a um determinado monitor i, a equação (3-20) pode ser escrita como:

$$\rho_I^* = N_U \epsilon_{235} \left\{ C_{235} \sigma_0 \left[\frac{g_{235}(T^*) t_{irr}^* \phi_0^*(i)}{\rho_D^*} \right]_{RT3/RT4} + \right.$$

$$\left. + \left(C_{238} - \frac{C_{235}}{C_{NBS}^{235}} C_{NBS}^{238} \right) \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{238}(E) dE + \right.$$

$$\left. + \left[\left(N_{232} / N_U \right) - \frac{C_{235}}{C_{NBS}^{235}} \left(N_{232} / N_U \right)^{NBS} \right] \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{232}(E) dE \right\} \quad (3-21)$$

onde $\phi_0^*(i)$ é o fluxo convencional de neutrons térmicos, obtido pelo monitor i, para a irradiação * (RT3 ou RT4).

$g_{235}(T^*)$ é geralmente tomado como sendo 1, tanto para a posição RT3, como para a posição RT4. Também são desprezadas as fissões induzidas por neutrons epitérmicos, na irradiação x. Desta maneira, a equação (3-21) pode ser escrita como:

$$\rho_I^x = N_U \epsilon_{295} C_{295} \sigma_o \left[\frac{t_{irr}^* \phi_o^*(1)}{\rho_D^*} \right] \frac{\rho_D^x}{RT3/RT4} \quad (3-22)$$

Se ao invés de utilizarem a dosimetria com os vidros padrões do NBS, os pesquisadores da comunidade de traços de fissão utilizassem uma dosimetria com vidros padrões da Corning (CN1 ou CN2), calibrados em uma coluna termalizante (onde as fissões induzidas por neutrons epitérmicos são negligenciáveis) por uma folha de ativação, a equação (3-20) poderia ser escrita como:

$$\rho_I^x = N_U \epsilon_{295} \left\{ C_{295} t_{irr}^* \phi_o^* \sigma_o g_{295}(T^*) \frac{\rho_D^x}{\rho_D^*} + \right. \\ \left. + (N_{232}/N_U) \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{232}(E) dE \right\} \quad (3-23)$$

onde se considerou que os vidros da Corning são confeccionados com urânio natural e que:

$$\left(N_{232}/N_U \right) \gg \left(N_{232}/N_U \right)^{Corning}$$

Uma forma de se utilizar as dosimetrias com vidros padrões (NBS ou Corning) que, teoricamente, não necessita que aproximações sejam feitas na equação (3-13), para a obtenção da idade do mineral, se baseia na utilização do método do filtro de cádmio (a utilização de filtros de cádmio pode ser encontrada na literatura do MTF, por exemplo: Price and Walker, 1963).

Se um vidro padrão for calibrado por uma folha de ativação em uma coluna termalizante, da equação (3-17), pode-se escrever que:

$$N_U^V \epsilon^V C_{295}^V = \frac{\rho_D^*}{\sigma_0 g_{295}(T^*) t_{irr}^* \rho_0^*} \quad (3-24)$$

A datação de minerais é efetuada em posições onde nem sempre existe uma boa termalização dos neutrons. Para estas posições, se um mineral for irradiado junto com um vidro padrão, ρ_I^x e ρ_D^x são dados pelas equações (3-13) e (3-18), respectivamente. Porém se o mineral e o vidro padrão são irradiados dentro de um filtro ideal de cádmio, as equações (3-13) e (3-18) podem ser reescritas como:

$$(\rho_I^x)_{Cd} = N_U \epsilon_{295} \left\{ C_{295} \int_{E_{Cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE + \right. \\ \left. + C_{298} \int_{E_{Cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{298}(E) dE + (N_{292}/N_U) \int_{E_{Cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{292}(E) dE \right\} \quad (3-25)$$

$$(\rho_D^x)_{Cd} = N_U^V \epsilon^V \left\{ C_{295}^V \int_{E_{Cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE + \right. \\ \left. + C_{298}^V \int_{E_{Cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{298}(E) dE + (N_{292}/N_U)^V \int_{E_{Cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{292}(E) dE \right\} \quad (3-26)$$

O método do filtro de cádmio consiste em se irradiar com neutrons arranjos mineral/vidro padrão dentro e fora de um filtro de cádmio. Desta forma, subtraindo-se a equação (3-25) da equação (3-13) e a equação (3-26) da equação (3-18), pode-se obter que:

$$\rho_I^x - (\rho_I^x)_{Cd} = N_U \epsilon_{235} C_{235} \left[t_{irr}^x \phi_0^x \sigma_0 g_{235}(T^x) + \int_{E_{max}}^{E_{Cd}} \phi^x(E) \sigma_{235}(E) dE \right] \quad (3-27)$$

$$\rho_D^x - (\rho_D^x)_{Cd} = N_U^V \epsilon^V C_{235}^V \left[t_{irr}^x \phi_0^x \sigma_0 g_{235}(T^x) + \int_{E_{max}}^{E_{Cd}} \phi^x(E) \sigma_{235}(E) dE \right] \quad (3-28)$$

e, substituindo-se a equação (3-24) na equação (3-28), pode-se obter que:

$$\left[t_{irr}^x \phi_0^x \sigma_0 g_{235}(T^x) + \int_{E_{max}}^{E_{Cd}} \phi^x(E) \sigma_{235}(E) dE \right] =$$

$$= \frac{\left(\rho_D^x - (\rho_D^x)_{cd} \right) \sigma_0 g_{235}(T^*) t_{irr}^* \rho_0^*}{\rho_D^*} \quad (3-29)$$

Substituindo-se agora a equação (3-29) na equação (3-27), pode-se obter que:

$$N_{U^{235}} = \frac{\rho_D^*}{C_{235} t_{irr}^* \rho_0^* \sigma_0 g_{235}(T^*)} \left(\frac{\rho_I^x - (\rho_I^x)_{cd}}{\rho_D^x - (\rho_D^x)_{cd}} \right) \quad (3-30)$$

Desta maneira, a equação da idade pelo MTF pode ser obtida sem que, teoricamente, nenhuma aproximação relativa à dosimetria de neutrons deva ser efetuada.

Em termos práticos, as montagens dentro e fora da caixa de cádmio podem ser irradiadas juntas, ou em irradiações consecutivas, dependendo de estudos sobre a reproduzibilidade do fluxo de neutrons na posição de irradiação. Estes estudos devem verificar: a inexistência de gradiente de fluxo de neutrons epitérmicos na posição a ser utilizada, a influência da depleção dos neutrons térmicos causada pela caixa de cádmio no mineral e dosímetro que estão fora dela, a variação temporal do fluxo de neutrons epitérmicos etc.

Pode-se também efetuar um procedimento análogo a este, com a utilização de dosimetrias de ativação. Neste caso o dosímetro estaria presente apenas fora do filtro de cádmio e $t_{irr}^x \rho_0^x$ seria dado pela equação (3-15). Porém o parâmetro $g_{235}(T^x)$ deve ser estimado a partir de medidas da temperatura dos neutrons, na posição onde se efetuar a irradiação x, e a integral abaixo

$$\int_{E_{\max}}^{E_{\text{cd}}} \phi^x(E) \sigma_{225}(E) dE$$

deve ser desprezada.

Um problema do método do filtro de cádmio (além do fato dele ser muito trabalhoso) é que, apesar da seção de choque do cádmio decrescer apreciavelmente nas vizinhanças de E_{cd} , os neutrons com energia maior que esta energia de corte, têm uma certa probabilidade de serem absorvidos pela caixa de cádmio.

Um outro procedimento que poderia ser adotado para diminuir os erros sistemáticos da dosimetria de neutrons dentro do MTF é a utilização de posições muito bem termalizadas (como por exemplo uma coluna termalizante) tanto nas irradiações de calibração de dosímetros, como nas irradiações nas quais se efetua a datação com o MTF. Porém, tal procedimento geralmente não é viável, pelo fato de que estas posições têm fluxos de neutrons muito baixos. Deve ser considerado, também, que há casos em que uma posição com uma alta termalização e com um fluxo de neutrons bom para datação, não é acessível ao pesquisador que utiliza o MTF. Neste sentido, o método do filtro de cádmio apesar de não ser tão preciso quanto a utilização de posições com alta termalização, merece um estudo metodológico mais profundo, já que pode viabilizar a utilização de posições com baixa termalização na datação com o MTF. Porém tal estudo não está nos objetivos deste trabalho.

Vários estudos sugerem que as folhas de ativação, em geral, dificilmente permitem uma determinação precisa da fluência convencional de neutrons térmicos (ver por exemplo, Storzer e Wagner, 1982; Hurford e Green, 1982; Green e Hurford, 1984). Estes estudos se baseiam no fato de que os parâmetros envolvidos na equação (3-16), dependem de um controle rígido da termalização dos neutrons na posição onde se efetua a irradiação x. A termalização dos neutrons por sua vez depende, por exemplo, da idade do combustível (ou se ele foi mudado em quantidade, geometria etc...) ou até muitas vezes de experimentos efetuados nas vizinhanças da posição utilizada. Desta forma, certas mudanças nas condições de

irradiação podem alterar as respostas do mineral e do dosímetro. Isto se deve ao fato de que as seções de choque envolvidas (do dosímetro de ativação e do mineral, $\sigma(n, \text{fissão})$ para o ^{235}U) não têm a mesma variação com a energia dos neutrons.

Pelos motivos expostos acima, na década de oitenta alguns laboratórios se empenharam na procura de dosimetrias absolutas que se baseassem na reação $^{235}\text{U}(n, \text{fissão})$.

Nos últimos quatro anos foram propostas para o MTF, duas dosimetrias absolutas baseadas na reação $^{235}\text{U}(n, \text{fissão})$: a dosimetria com filmes finos de urânio (Wall, 1988) e a dosimetria do ^{140}Ba (Bigazzi et al., 1988a).

A dosimetria do ^{140}Ba se baseia no fato de que um dos produtos da fissão do ^{235}U induzida por neutrons térmicos, o ^{140}Xe , produz uma cadeia radioativa que passa rapidamente para o ^{140}Ba , que é um emissor gama com uma linha bem definida.

A dosimetria com filmes finos de urânio se baseia no fato de que é possível confeccioná-los de modo que se conheça o seu conteúdo de urânio e de modo que sua auto-absorção para fragmentos de fissão seja negligenciável.

Estas duas dosimetrias serão detalhadas mais à frente, com enfoque especial para a dosimetria com filmes finos de urânio.

4. - DOSIMETRIA DE NEUTRONS COM FILMES FINOS DE URÂNIO NATURAL

O dosímetro filme fino de urânio é constituído por um detetor de fragmentos de fissão justaposto a um filme de urânio onde não existe auto-absorção para fragmentos de fissão.

Quando este dosímetro é irradiado com neutrons, em um reator nuclear, a densidade superficial de traços registrada no detetor, ρ_F , será dada por:

$$\rho_F = N_U^F \sum_i C_i^F \int_0^{\infty} \epsilon_i^F(E) \phi(E) \sigma_i(E) dE \quad (4-1)$$

onde: o índice i se refere ao isótopo do urânio com número de massa i = 234, 235 e 238;

N_U^F é o número de átomos de urânio por unidade de superfície do filme.

Esta equação pode ser escrita, em analogia com a equação (3-13), da seguinte forma:

$$\rho_F^x = N_U^F \epsilon^F \left\{ C_{235}^F t_{irr}^x \rho_o^x \sigma_o g_{235}(T^x) + \right.$$

$$\left. + C_{295}^F \int_{E_{max}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE + C_{238}^F \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{238}(E) dE \right\} \quad (4-2)$$

onde ϵ^F é uma constante que representa a razão entre ρ_F^x e o número de fissões ocorridas no filme por unidade de superfície, durante a irradiação x.

Deve ser notado que a quantidade entre chaves na equação (4-2) (número de fissões ocorridas durante a irradiação x, por

átomo alvo de urânio) pode ser determinada através da medida de ρ_F^x , conhecendo-se N_U^F e ϵ^F . Desta forma, se os átomos de urânio presentes no filme fino estiverem em concentrações isotópicas naturais, a quantidade entre chaves na equação (3-13) pode ser determinada através da equação (4-2), a menos do termo:

$$(N_{292} / N_U) \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{292}(E) dE$$

O problema das fissões do ^{232}Th pode, pelo menos teoricamente, ser levado em conta utilizando-se o método do filtro de cádmio.

Uma grande vantagem desta dosimetria é que, considerando apenas o urânio natural, mudanças nas condições de irradiação, afetariam da mesma forma tanto o filme fino como o mineral a ser datado. Outra vantagem é que ela pode ser utilizada, como veremos mais à frente, de maneira a independe de parâmetros ligados a outras dosimetrias.

A seguir serão descritos os procedimentos experimentais adotados neste trabalho, para a obtenção dos filmes finos e para as determinações de N_U^F e ϵ^F .

4.1.- Obtenção dos filmes

Existem várias técnicas de obtenção dos filmes finos de urânio. Pode-se citar, por exemplo, o método da ignição de parlodium (Yagoda, 1949), métodos baseados na eletrodeposição do urânio (por exemplo Kirn, 1963) e métodos baseados na vácuo-evaporação do urânio (por exemplo Erickson et al., 1956).

Para se obter os filmes finos de urânio natural utilizados neste trabalho, foi adotada uma técnica de confecção baseada nos procedimentos descritos por Yagoda (Yagoda, 1949). Nesta técnica, inicialmente se espalha sobre uma superfície selecionada de mica muscovita, uma solução de nitrato de uranila misturada a um colóide, o parlodium, dissolvido em éter e álcool. Depois de um tempo apropriado, para a evaporação do éter e do álcool, se obtém

uma película seca de parlodium contendo nitrato de uranila, sobre a mica-suporte.

Submetendo-se este filme a uma temperatura de 400°C , em poucos minutos o parlodium entra em combustão. A extensão deste tempo de cozimento para $\approx 1\text{h}$ é importante para que o filme de UO_2 (este óxido é obtido pela decomposição do nitrato de uranila a 350°C) possa se aderir à mica-suporte e para que desapareçam todos os resíduos da ignição do parlodium.

A função do colóide é homogeneizar o filme de urânio. Segundo Yagoda isto ocorre ao se utilizar quantidades aproximadamente iguais de nitrato de uranila e parlodium.

A mica muscovita utilizada como base dos filmes foi escolhida de modo que os traços de fissão induzida, originados do seu interior durante a irradiação, fossem desprezíveis em relação aos originados do filme de urânio.

Ao se fazer o filme fino, a solução de parlodium/nitrato de uranila foi derramada sobre uma mica onde se construiu uma piscina com auxílio de fitas isolantes. Este procedimento foi utilizado para se definir a área total do filme.

Os filmes obtidos com auxílio de piscinas, têm uma maior concentração de urânio nas regiões próximas das bordas. Assim, para se obter um filme homogêneo é conveniente utilizar apenas a região central da piscina, de maneira a se poder desprezar os efeitos de borda.

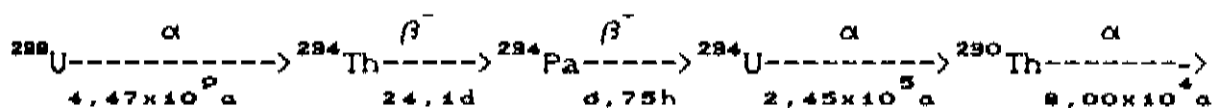
O cálculo para se estimar a quantidade de nitrato de uranila a ser utilizada na confecção de um filme depende, é claro, da fluência de neutrons na qual o filme será utilizado como dosímetro. Por exemplo, para se estimar aquela quantidade para que um filme produza ρ_I^x traços por unidade de superfície do detetor adjacente, em uma fluência de neutrons térmicos de $\approx \phi^x$, pode-se desprezar a componente epitérmica do fluxo de neutrons. Assim, conhecendo-se os valores de $C_{295}^F = 0,720\%$ e $\sigma_0 = 580,2$ barns (Browne et al., 1978) e considerando-se que $g_{295}(T^x) \approx 1$ e $c^F \approx 1$, pode-se obter da equação (4-2) o valor de N_U^F . Sabendo-se que o nitrato de uranila, $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, tem peso molecular de 502,18u.m.a., se obtém a quantidade de nitrato de urânio que o filme em questão deve possuir, por unidade de superfície.

Normalmente, os filmes obtidos através do método de confecção descrito acima, tem espessuras próximas das estimadas.

4.2. - Determinação do conteúdo de urânio dos filmes.

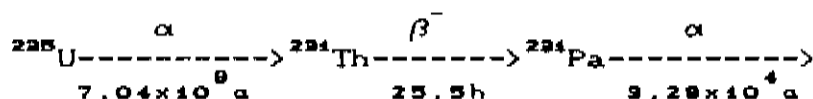
Quando se obtém urânio através da separação química de uma rocha rica naquele elemento, os isótopos ^{238}U , ^{235}U e ^{234}U são obtidos nas concentrações isotópicas naturais. Estes três isótopos do urânio são emissores alfa.

Da cadeia radioativa do ^{238}U até o ^{230}Th esquematizada abaixo,



se pode concluir que a separação química não altera as atividades de equilíbrio dos isótopos do urânio ali contidos, já que para tempos de ≈ 150 dias ($\approx$ seis vezes a meia vida do ^{234}Th) os primeiros quatro elementos da cadeia voltam à situação de equilíbrio radioativo em que se encontravam antes da separação química. Esta atividade de equilíbrio permanecerá constante por um período de tempo pequeno comparado com a meia vida do ^{238}U . Porém aquele período de tempo é muitíssimo maior que o intervalo de tempo decorrido desde que o homem começou a fazer separações químicas.

Da cadeia radioativa do ^{235}U até o ^{231}Pa , esquematizada abaixo,



pode-se concluir que a atividade alfa daquele isótopo do urânio, permanecerá constante por um longo período de tempo após a separação química.

Também pode ser visto, nas duas cadeias radioativas esquematizadas parcialmente acima, que os núcleos emissores alfa, ^{230}Th e ^{231}Pa , têm meias vidas muito maiores do que a "idade" de separação química do urânio natural comercialmente disponível para uso em laboratório. Isto significa que a atividade alfa daqueles dois radioisótopos pode ser negligenciada dentro dos filmes finos de urânio natural.

Deve ser mencionado que foram encontradas amostras de urânio (supostamente urânio natural) de várias partes do mundo, onde a concentração isotópica do ^{234}U é diferente da natural (Holden, 1981). Porém, com relação ao nitrato de uranila utilizado neste trabalho, foi verificado que o ^{234}U está em equilíbrio com o ^{238}U .

O nitrato de uranila utilizado neste trabalho foi o mesmo que o utilizado na tese de doutoramento do professor Hadler (Hadler, 1982). Naquela tese, para se determinar o conteúdo de urânio em emulsões carregadas, haviam dois métodos que podiam ser utilizados: 1) o gravimétrico, através do qual conhecia-se a massa de urânio colocada na emulsão (através de uma calibração efetuada previamente); neste caso foi utilizado o peso molecular do urânio natural, que não é afetado pelo desequilíbrio do ^{234}U e 2) via traços de partículas alfa do urânio; neste caso foi imposto o equilíbrio do ^{234}U e ^{238}U . Se isto não fosse verdade para a solução de nitrato de uranila utilizada, os métodos 1) e 2) não ficariam de acordo. Porém, nas medidas efetuadas para se confrontar os dois métodos, verificou-se que eles estavam de acordo.

Como as suspeitas de Holden (Holden, 1981) recaem apenas sobre o ^{234}U (em todas as amostras analisadas por este autor, as concentrações isotópicas do ^{238}U e ^{235}U concordam muito bem com as concentrações isotópicas do urânio natural), pode-se concluir que o nitrato de uranila utilizado neste trabalho possui urânio em concentrações isotópicas naturais.

Das considerações acima, pode-se escrever a atividade alfa, por unidade de superfície, para os filmes finos de urânio natural utilizados neste trabalho como (Hadler, 1982):

$$\frac{N_{\alpha}}{\Delta t} = N_U^F (2C_{290} \lambda_{290} + C_{295} \lambda_{295}) \quad (4-3)$$

onde: N_{α} é o número de desintegrações alfa por unidade de superfície, devido às contribuições de todos os isótopos do urânio natural, ocorridas durante um intervalo de tempo Δt ; λ_{290} e λ_{295} são as constantes de decaimento alfa do ^{238}U e do ^{235}U , respectivamente.

O detector de partículas alfa utilizado neste trabalho foi a emulsão nuclear. Este detector consiste, basicamente, de cristais de brometo de prata em suspensão num colóide. As emulsões utilizadas neste trabalho foram preparadas pelo fabricante (Ilford-Inglaterra) sobre bases de vidro com baixo conteúdo de tório e urânio.

Uma partícula carregada, quando passa através de uma emulsão nuclear, ioniza os cristais de brometo de prata que estão na sua trajetória. Depois de um tratamento químico conveniente, pode-se observar o traço da partícula ao microscópio óptico. A emulsão nuclear não possui ângulo crítico para detecção.

Neste trabalho foram utilizadas emulsões nucleares KO da Ilford, que são preparadas para detetar partículas tão ou mais ionizantes que prótons de baixa energia. Os dois métodos de revelação utilizados aqui, que permitiram a revelação de partículas alfa (e de eventos mais ionizantes) e a revelação de fragmentos de fissão somente, foram extraídos de Hadler, 1979.

Como foi observado no apêndice, mesmo os menores traços de fragmentos de fissão provenientes de filmes finos de urânio podem ser considerados grandes comparados ao grau de resolução de uma emulsão nuclear. Com isto, pode-se afirmar que todos os traços de fragmentos de fissão que escapam de filmes finos podem ser observados em emulsões nucleares que tenham sido justapostas aqueles filmes.

Como o alcance médio das partículas alfa do urânio é maior que o alcance médio, por fragmento, dos fragmentos de fissão do

urânio ($\sim 18\mu\text{m}$ e $\sim 12\mu\text{m}$, respectivamente, ver Hadler, 1979), todas as partículas alfa que chegam a uma emulsão justaposta a um filme fino de urânio são detetadas, se a revelação química da emulsão nuclear foi feita adequadamente.

Como a emissão de uma partícula alfa é um processo isotrópico, o número de partículas alfa que chegam, por unidade de tempo, a uma emulsão justaposta a um filme fino de urânio é a metade da atividade alfa do filme vezes o tempo de exposição.

Das considerações acima, pode-se escrever a densidade superficial de traços de partículas alfa, em uma emulsão justaposta a um filme fino de urânio natural, durante um intervalo de tempo Δt , como:

$$\rho_{\alpha} = \frac{N_{\alpha}}{2} = \frac{\Delta t}{2} N_U^F (2C_{238} \lambda_{238} + C_{235} \lambda_{235}) \quad (4-4)$$

Substituindo-se os valores das constantes presentes na equação (4-4) pode-se obter (Hadler, 1982):

$$N_U^F = (5,60 \pm 0,03) \times 10^{12} \frac{\rho_{\alpha}}{\Delta t(\text{horas})} \quad (4-5)$$

Desta forma, pode-se determinar o conteúdo de urânio de um filme fino através da medida de ρ_{α} .

As medidas de ρ_{α} foram efetuadas com o auxílio de um retículo acoplado à ocular do microscópio. Esta unidade de área é chamada de campo do microscópio.

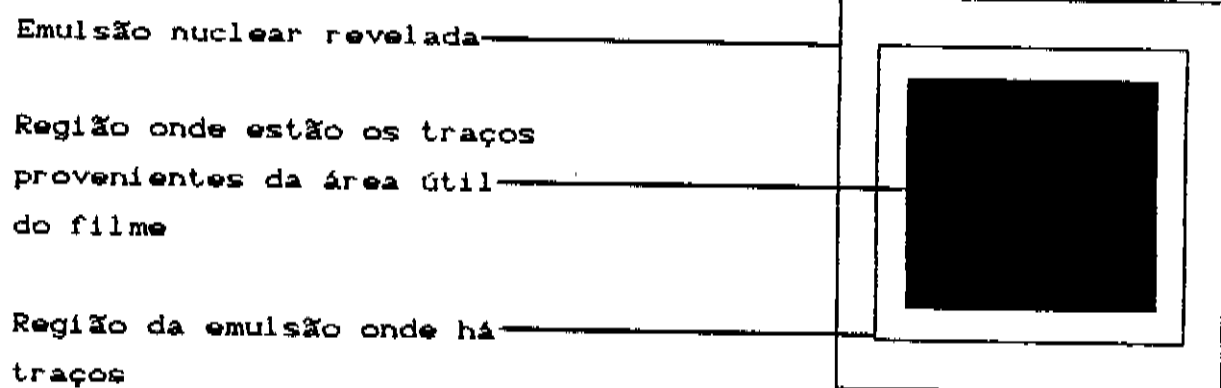
O microscópio utilizado para se efetuar as medidas deste trabalho (Dialux 20 EB, Leitz/Wetzlar) é dotado de um sistema de eixos (x e y) que possibilita a orientação espacial ao longo da superfície da emulsão.

Os traços contados são de partículas alfa provenientes de uma região central do filme. Isto se deve ao fato de que ao serem

cortados, os filmes adquirem pequenas rachaduras nas bordas ($\approx 0,2\text{cm}$), o que pode eventualmente afetar a uniformidade do conteúdo do urânio nessas regiões. Aquela região central, quadrada, será chamada de área útil do filme.

As emulsões nucleares para cada exposição, são sempre maiores que os filmes a que são expostas. Desta forma, os traços das partículas emitidas das bordas de um filme, servem de referência para a localização dos traços provenientes da área útil.

O esquema abaixo ilustra o procedimento adotado para se identificar os traços provenientes da área útil do filme:



Ao serem efetuadas as medidas de ρ_α utilizou-se um método de contagem de traços que consistiu no seguinte: dividiu-se toda a "área útil" da emulsão (correspondente à área útil do filme) em $L \times L$ sub-regiões adjacentes e de áreas iguais (ver figura (4-1)); para cada sub-região, contou-se os traços contidos em um campo localizado no seu centro.

Este método de contagem de traços foi utilizado, também, ao serem efetuadas as medidas de ρ_f nas micas detetores. Desta forma, uma determinada região do filme tem praticamente o mesmo peso na média geral das contagens dos traços de fragmentos de fissão, que tem na média geral das contagens dos traços de partículas alfa. Este fato minimiza os possíveis problemas causados por desuniformidades no conteúdo de urânio dos filmes, o que poderia prejudicar a utilização dos filmes finos enquanto dosímetros de

FIGURA (4-1): Nesta figura está esquematizado o método de contagem de traços utilizado neste trabalho; depois de localizada, a "área útil" do detetor (região onde estão presentes traços de partículas alfa ou de fragmentos de fissão provenientes da área útil do filme) foi dividida em $L \times L$ sub-regiões adjacentes e de áreas iguais; para cada sub-região foi efetuada a contagem dos traços presentes em um campo localizado no seu centro.

		COLUNAS							
		1	2	3					L
LINHAS	1	o	o	o	-	-	-	-	o
	2	o	o	o	-	-	-	-	o
	3	o	o	o	-	-	-	-	o
L		o	o	o	-	-	-	-	o

neutrons.

Porém, neste trabalho foram utilizados, como dosímetros de neutrons, filmes finos com conteúdo de urânio uniforme. O que foi verificado analisando-se os filmes aqui utilizados à luz dos procedimentos e resultados de um estudo sobre testes estatísticos, para averiguar a uniformidade da distribuição dos traços ao longo da superfície de um detector.

Neste estudo comparou-se testes estatísticos convencionais com um teste desenvolvido para levar em conta a ordem de chegada dos eventos (dos traços), feito utilizando-se polinômios de Legendre para ajustar a distribuição dos eventos. Este estudo (Iunes, 1989) é muito extenso, por isso preferiu-se não incluí-lo nesta tese, mesmo como um apêndice.

Para se verificar se o manuseio e o contato com os detectores (emulsões nucleares e micas muscovitas) não alteram o conteúdo de urânio dos filmes, foram efetuadas medidas de N_U^F , antes e depois de submeter filmes finos a irradiações com neutrons. Os resultados destas medidas foram os seguintes:

Filme	N_U^F (antes da irradiação) (átomos/cm ²)	N_U^F (depois da irradiação) (átomos/cm ²)
SPXXIV-5	$(1.452 \pm 0.026) \times 10^{17}$	$(1.471 \pm 0.026) \times 10^{17}$
SPXXIII-2	$(6.89 \pm 0.14) \times 10^{16}$	$(6.84 \pm 0.14) \times 10^{16}$

Os erros computados nas medidas de N_U^F são desvios padrões de médias poissonianas. Ou seja, foi considerado que o processo de decaimento alfa obedece à estatística de Poisson. Desta maneira, o erro da medida de N_U^F pode ser escrito como:

$$\sigma_{N_U^F} = \left[\sum_i x_i \right]^{-1/2} N_U^F$$

onde $\sum x_i$ é o número total de traços de partículas alfa contados.

Os resultados acima indicam que o conteúdo de urânio de um filme fino não é alterado com a sua utilização como dosímetro de neutrons.

4.3. - Determinação da eficiência de detecção da mica muscovita em relação a fragmentos de fissão produzidos nos filmes.

Antes de se descrever os procedimentos experimentais utilizados neste trabalho para determinação de ϵ^F , serão descritos resumidamente outras determinações de ϵ^F já efetuadas dentro do MTF.

Em Gold et al., 1968, foram utilizados filmes finos de ^{234}Cm (este radionuclídeo tem uma meia-vida, para a fissão espontânea, relativamente pequena, o que possibilita que se obtenha uma boa estatística de decaimentos para tempos de exposição convenientes) para a determinação de ϵ^F . Detetores de barreira de superfície foram utilizados para se determinar as atividades de fissão e alfa das fontes de ^{244}Cm utilizadas. O valor de ϵ^F obtido foi $\epsilon^F = 0,948 \pm 0,005$.

Em Roberts et al., 1984, participaram dois dos autores do trabalho anterior. Neste trabalho foi efetuada uma re-determinação de ϵ^F nos moldes do trabalho de 1968. As fontes utilizadas foram de ^{252}Cf . As atividades de fissão dos filmes finos foram determinadas por quatro diferentes laboratórios utilizando-se quatro métodos diferentes. O valor de ϵ^F obtido foi $\epsilon^F = 0,9875 \pm 0,0085$.

Em Wall, 1986, foram utilizadas medidas de Wall, 1970, com novos valores das constantes de decaimento dos isótopos do urânio. Nesta determinação de ϵ^F , foram irradiados com neutrons filmes finos de urânio justapostos a micas muscovitas em uma coluna termalizante. O número de fissões de ^{235}U pode ser determinado conhecendo-se a fluência de neutrons térmicos, o conteúdo de ^{235}U dos filmes e a seção de choque efetiva para a reação $^{235}\text{U}(n, \text{fissão})$. O valor obtido por Wall foi $\epsilon^F = 0,938 \pm 0,020$.

No presente trabalho, filmes de urânio natural (preparados sobre micas muscovitas) justapostos a emulsões nucleares, foram submetidos a irradiações com neutrons térmicos num canal tangencial do reator do IPEN/CNEN em São Paulo. O número de fissões induzidas por neutrons, nos filmes finos, foi determinado diretamente através das emulsões nucleares. Depois das irradiações, os filmes de urânio foram dissolvidos e ϵ^F pode ser determinado confrontando-se as medidas de ρ_F efetuadas nas micas-suporte com as efetuadas nas emulsões.

Deve ser notado que esta determinação de ϵ^F não necessitou dos valores das fluências de neutrons a que foram submetidos os arranjos mica suporte-filme de urânio-emulsão nuclear. Também não se necessitou conhecer o conteúdo de urânio dos filmes (apesar da necessidade de se garantir que a auto-absorção para fragmentos de fissão dos filmes não alterou o valor de ϵ^F) ou da seção de choque efetiva para a reação $^{235}\text{U}(n, \text{fissão})$.

As irradiações com neutrons não afetaram as propriedades das emulsões nucleares, enquanto detetores de fragmentos de fissão, porque foram efetuadas em uma posição onde a dose de radiação gama é suficientemente baixa.

Como já foi citado anteriormente e está mostrado no apêndice, a emulsão K0 deteta todos os fragmentos de fissão provenientes dos filmes finos de urânio. A revelação química para fragmentos de fissão foi efetuada de forma a não revelar traços de partículas alfa e revelar todos os traços de fragmentos de fissão (Hadler, 1979). As medidas de ρ_F na emulsão foram efetuadas ao microscópio óptico com aumento $12,5 \times 100$, a óleo.

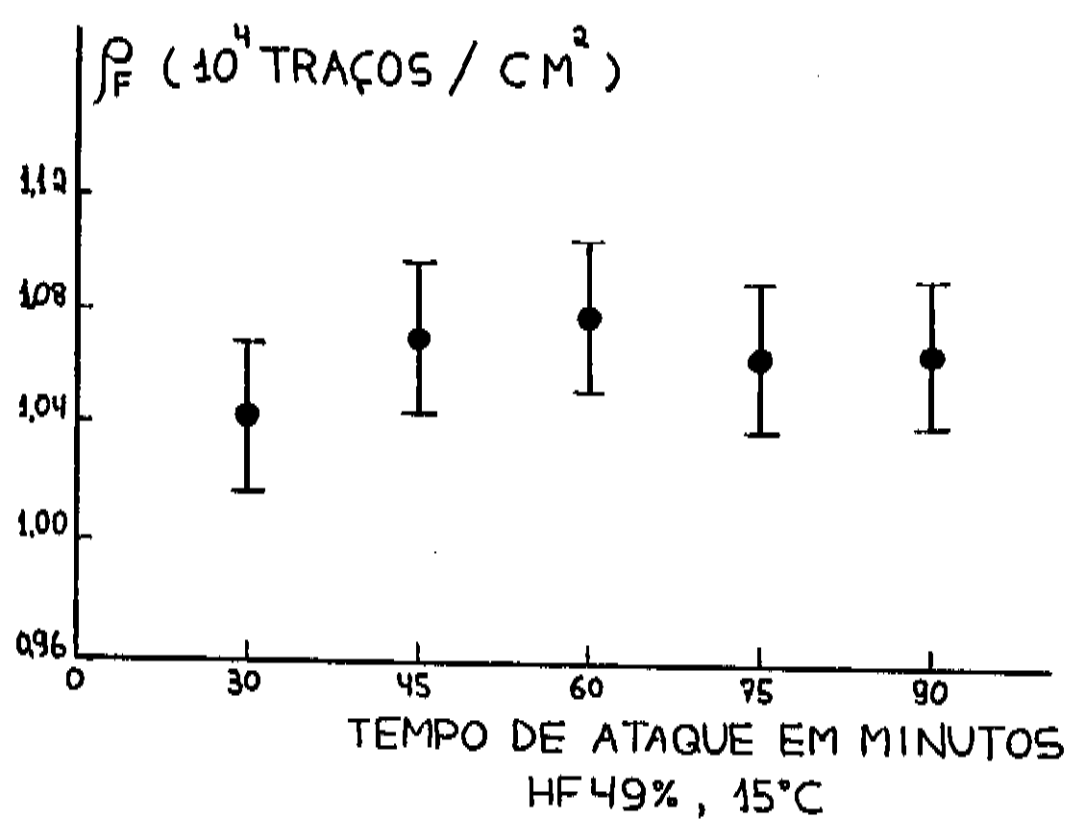
Para se escolher o ataque químico padrão para revelação dos traços de fragmentos de fissão nas micas, foram efetuadas medidas de ρ_F em uma mica-detector contendo traços de fragmentos de fissão provenientes de um filme fino de urânio, em tempos de ataque ($\text{HF } 40\%$, 15°C) variando de 30 a 90 minutos. A tabela (4-1) mostra os resultados das medidas de ρ_F efetuadas em cada tempo de ataque. A figura (4-2) mostra a curva de ataque construída a partir da tabela (4-1).

Os erros da medida de ρ_F , para cada tempo de ataque, são erros de médias poissonianas.

TABELA (4-1): Nesta tabela, estão mostrados os valores das medidas da densidade superficial de traços, ρ_F , efetuadas em uma mica-detetor (que havia sido submetida a uma irradiação com neutrons, justaposta a um filme fino de urânio natural) em tempos de ataque químico (HF 49%, 15°C) variando de 30 a 90 minutos. São mostrados também, o número total de traços contados, $\sum x_i$, para cada tempo de ataque.

TEMPO DE ATAQUE (MINUTOS)	ρ_F (10 ⁴ TRAÇOS/ CM ²)	$\sum x_i$ (TRAÇOS)
30	1,043 ± 0,025	1737
45	1,070 ± 0,025	1780
60	1,070 ± 0,025	1795
75	1,064 ± 0,025	1772
90	1,066 ± 0,025	1774

FIGURA (4-2): Curva de ataque químico obtida através dos dados mostrados na tabela (4-1).



Tomando-se o χ^2 na forma:

$$\chi^2 = \sum_{k=1}^5 \frac{(\rho_{Fk} - \bar{\rho}_F)^2}{\sigma_k^2}$$

onde: ρ_{Fk} e σ_k^2 são ρ_F e σ^2 para o k-ésimo tempo de ataque

$$\bar{\rho}_F = \sum_{k=1}^5 \frac{\rho_{Fk}}{5}$$

se obtém que:

$$\chi^2 = 1,08$$

$$\nu = 4$$

$$P_{\chi}(\chi^2, \nu) \approx 0,90$$

Desta forma, o teste χ^2 indica que para tempos de ataque químico (HF 49%, 15°C) maiores que 30 minutos, pode-se considerar que todos os traços estão revelados

O tempo padrão de ataque químico (HF 49%, 15°C), escolhido neste trabalho para micas-detetor, foi de 90 minutos. Desta maneira, o ataque padrão utilizado neste trabalho está próximo dos ataques padrões utilizados por Roberts et al., 1984 (HF 49%, temperatura ambiente, durante 90 minutos) e por Wall, 1986 (HF 40%, 25°C, durante 120 minutos).

Deve ser notado que para o ataque padrão utilizado no presente trabalho, além de todos os traços estarem revelados, é possível se efetuar medidas de ρ_i com até $\approx 1,2 \times 10^6$ traços/cm², sem que tais medidas sejam prejudicadas pela superposição de traços.

Para se verificar que o filme fino não altera as propriedades da mica suporte enquanto detector de traços de fissão, após a irradiação com neutrons de um dosímetro composto de mica suporte-filme de urânio-mica detector, a mica suporte sofreu um tratamento químico com HNO_3 65%, a 80°C , durante ≈ 30 horas. Este tratamento químico dissolveu completamente o UO_2 depositado sobre a mica suporte. Em seguida, as duas micas (suporte e detector) foram atacadas (HF 49%, 15°C , 90 min.) e observadas ao microscópio. Os resultados das medidas de ρ_f nas duas micas são mostradas abaixo:

Mica detector:

$$\rho_f = (1,066 \pm 0,025) \times 10^4 \text{ traços/cm}^2$$

Mica suporte:

$$\rho_f = (1,072 \pm 0,025) \times 10^4 \text{ traços/cm}^2$$

Todas as micas-detector utilizadas neste trabalho foram pré-atacadas com HF 49%, 15°C , durante 120 minutos, para que fossem revelados os traços fósseis (Hadler, 1982). No resultado mostrado acima, já está descontado o background de traços fósseis da mica-detector.

Para se descontar o background de traços fósseis nas micas-suporte, depois de efetuadas as medidas de ρ_f , elas foram clivadas, novamente atacadas (HF 49%, 15°C) por 90 minutos e aí tiveram seus traços de background analisados. No caso da mica suporte utilizada acima, o background foi de (138 ± 10) traços/ cm^2 . Desta forma, o valor de ρ_f na mica suporte fica: $\rho_f = (1,058 \pm 0,027) \times 10^4$ traços/ cm^2 .

Estes resultados indicam que a mica-suporte registrou o mesmo ρ_f que a mica-detector.

A medida de ϵ^f foi efetuada com um filme de espessura $0,1\mu$. O arranjo mica-suporte-filme de urânio-emulsão nuclear foi irradiado com neutrons térmicos durante 14 horas no Beam Hole n° 10 do reator do IPEN-CNEN em São Paulo, onde o fluxo nominal de neutrons térmicos é $\approx 10^6$ n/ cm^2s . As medidas de ρ_f na emulsão e na mica suporte foram efetuadas nas condições de observação mencionadas

acima (aumento $12,5 \times 100$, a óleo, para a emulsão nuclear, aumento $12,5 \times 40$ para a mica submetida ao ataque (15°C , 49% de 90 min.) e o número de campos analisados, para cada detetor, foi escolhido de modo que se obtivesse ≈ 2.500 traços espalhados pela área útil dos detetores, como está descrito na figura (4-1). Os resultados obtidos foram:

Emulsão nuclear:

$$\rho_F = (8,18 \pm 0,17) \times 10^4 \text{ traços/cm}^2$$

Mica-suporte:

$$\rho_F = (8,28 \pm 0,16) \times 10^4 \text{ traços/cm}^2$$

$$\text{Background} = (97 \pm 17) \text{ traços/cm}^2$$

Os erros atribuídos às medidas são desvios padrões de médias poissonianas.

Utilizando-se os resultados acima se obtém que $\epsilon^F = 1,011 \pm 0,029$.

Outra determinação de ϵ^F , análoga à descrita acima, mas com um filme com espessura de $0,047\mu$, resultou em $\epsilon^F = 1,001 \pm 0,029$, o que confirma a determinação efetuada anteriormente. Desta forma, considerando a média entre as duas medidas, pode-se escrever que $\epsilon^F = 1,006 \pm 0,020$. Como o quanto o valor de ϵ_F excede 1 é 30% do erro a ele associado, pode-se dizer que $\epsilon_F = 1$, ou seja, dentro de um erro de 2%, pode-se dizer que a mica muscovita e a emulsão nuclear registram todos os fragmentos de fissão originados de filmes finos de urânio a elas justapostos. Este resultado concorda com uma das medidas mencionadas anteriormente (Roberts et al., 1984), mas discorda de outra (Wall, 1986). Uma possível explicação para esta discordância é dada a seguir.

Através da equação (A-2) do apêndice, pode-se estimar que $\approx 9\%$ dos fragmentos de fissão deixam o filme com ângulos inferiores a 5° , em relação à sua superfície. Muitos destes traços, depois de atacados, têm uma forma alongada que penetra pouco na mica, produzindo figuras de ataque que têm pouco contraste ao serem observadas ao microscópio óptico, como está mostrado na figura

(4-3).

Pode-se mostrar que o valor de ϵ^F pode estar associado ao critério utilizado para contar os traços na mica e talvez até ao ataque químico a que se submete este mineral. Por exemplo, mostraremos em seguida que se obtém um novo valor de ϵ_F , aqui denominado ϵ'_F , se não se levar em conta, nas contagens, os traços com as características dos traços mostrados na figura (4-3).

Para se determinar ϵ'_F , foram efetuadas novas medidas de ρ_F nas micas-suporte utilizadas na determinação de ϵ^F . As medidas de ρ_F nas emulsões nucleares utilizadas na determinação de ϵ'_F são as mesmas utilizadas na determinação de ϵ^F . Procedendo-se desta forma, se obteve, através da média entre os dois filmes que $\epsilon'_F = 0,950 \pm 0,020$.

Uma tendência de ϵ'_F ser menor que 1 também poderia ser obtida se se prolongasse em demasia o ataque químico das micas. Deste modo os traços alongados, por serem bastante superficiais, ou desapareceriam ou se deformariam perdendo as suas características de traços.

É possível então que as razões citadas acima sejam as causas da discordância entre o valor de ϵ^F obtido por Wall (Wall, 1986), $0,938 \pm 0,020$, e os valores obtidos no presente trabalho, $1,00 \pm 0,02$, e por Roberts et al. (Roberts et al., 1984), $0,9875 \pm 0,0085$.

FIGURA (4-3): Nesta fotografia estão marcados alguns traços que penetram pouco na mica, produzindo figuras de ataque que têm pouco contraste ao serem observadas ao microscópio óptico.



5. - INTERCOMPARAÇÃO DE DOSIMETRIAS DE NEUTRONS DENTRO DO MTF

A quantidade entre chaves na equação (3-13) será denominada

R_M :

$$R_M = \left\{ C_{295} t_{irr}^x \rho_o^x \sigma_o g_{295}(T^x) + C_{295} \int_{E_{max}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE + \right. \\ \left. + C_{299} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{299}(E) dE + (N_{292}/N_U) \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{292}(E) dE \right\} \quad (5-1)$$

Esta quantidade representa, para um mineral submetido a uma irradiação com neutrons, a razão entre o número total de fissões ocorridas no seu interior e o número de átomos de urânio.

A função das dosimetrias de neutrons dentro do MTF é estimar R_M para que se possa conhecer o produto $N_U^F \sigma_{295}$ através da medida de ρ_I^x (equação (3-13)).

As estimativas de R_M através de dosimetrias efetuadas utilizando-se vidros padrões do NBS, filmes finos de urânio natural e metais ativados serão denominadas R_{NBS} , R_F e R_y , respectivamente. As expressões destes termos serão explicadas a seguir, utilizando-se de equações desenvolvidas em capítulos precedentes.

No caso das dosimetrias via folhas metálicas, pode ser visto, pela equação (3-14), que R_y é dado por:

$$R_y = C_{295} \sigma_o t_{irr}^x \rho_o^x g_{295}(T^x) \quad (5-2)$$

onde ρ_o^x pode ser obtido da equação (3-15) e $g_{295}(T^x)$ é estimado

através da temperatura dos neutrons na posição de irradiação.

No caso da dosimetria com filmes finos de urânio natural, pode ser mostrado, da equação (4-2), que:

$$R_F = \left\{ C_{235} t_{irr}^* \rho_o^* \sigma_o g_{235}(T^*) + C_{235} \int_{E_{max}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{235}(E) dE + \right. \\ \left. + C_{238} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{238}(E) dE \right\} \quad (5-3)$$

Para os vidros padrões do NBS, da equação (3-22), tem-se que:

$$R_{NBS} = C_{235} \sigma_o \left[\frac{t_{irr}^* \rho_o^*}{\rho_D^*} \right]_{RT3/RT4} \rho_D^* \quad (5-4)$$

Utilizando-se a equação (3-19), pode-se mostrar que:

$$C_{235} \sigma_o \left[\frac{t_{irr}^* \rho_o^*}{\rho_D^*} \right] \rho_D^* = \\ = \frac{1}{g_{235}(T^*)} C_{235} \sigma_o t_{irr}^* \rho_o^* g_{235}(T^*) + \\ + \frac{1}{g_{235}(T^*)} C_{235} \int_{E_{max}}^{\infty} \left[\phi^*(E) - \frac{\rho_D^*}{\rho_o^*} \phi^*(E) \right] \sigma_{235}(E) dE +$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{1}{g_{295}(T^*)} \frac{C_{295}}{C_{295}^{NBS}} C_{298}^{NBS} \int_{E_{Cd}}^{\infty} \left[\phi^x(E) - \frac{\rho_D^x}{\rho_D^*} \phi^*(E) \right] \sigma_{298}(E) dE + \\
& + \frac{1}{g_{295}(T^*)} \frac{C_{295}}{C_{295}^{NBS}} (N_{292}/N_U)^{NBS} \int_{E_{Cd}}^{\infty} \left[\phi^x(E) - \frac{\rho_D^x}{\rho_D^*} \phi^*(E) \right] \sigma_{292}(E) dE
\end{aligned}
\tag{5-5}$$

Porém, como R_{NBS} geralmente é obtido através da média entre as calibrações nas posições RT3 e RT4, tem-se que:

$$\begin{aligned}
R_{NBS} = & \left\{ \left[\frac{1}{g_{295}(T^*)} \right]_{RT3/RT4} C_{295} \sigma_0 t_{irr}^x \phi_0^* g_{295}(T^x) + \right. \\
& + \left[\frac{1}{g_{295}(T^*)} \right]_{RT3/RT4} C_{295} \int_{E_{max}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE + \\
& + \left[\frac{1}{g_{295}(T^*)} \right]_{RT3/RT4} \frac{C_{295}}{C_{295}^{NBS}} C_{298}^{NBS} \int_{E_{Cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{298}(E) dE + \\
& + \left[\frac{1}{g_{295}(T^*)} \right]_{RT2/RT4} \frac{C_{295}}{C_{295}^{NBS}} (N_{292}/N_U)^{NBS} \int_{E_{Cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{292}(E) dE -
\end{aligned}$$

$$- C_{295} \rho_D^x \left[\frac{1}{g_{295}(T^*) \rho_D^*} \int_{E_{\max}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{295}(E) dE \right]_{RT3/RT4} -$$

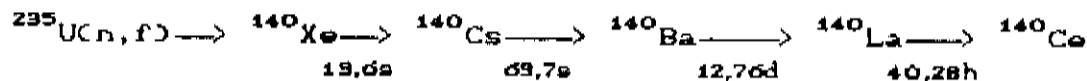
$$- \frac{C_{295}}{C_{295}^{NBS}} C_{298}^{NBS} \rho_D^x \left[\frac{1}{g_{295}(T^*) \rho_D^*} \int_{E_{Cd}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{298}(E) dE \right]_{RT3/RT4} -$$

$$\left. - \frac{C_{295}}{C_{295}^{NBS}} (N_{292}/N_U)^{NBS} \rho_D^x \left[\frac{1}{g_{295}(T^*) \rho_D^*} \int_{E_{Cd}}^{\infty} \phi^*(E) \sigma_{292}(E) dE \right]_{RT3/RT4} \right\}$$

(5-6)

Neste trabalho, a dosimetria com filmes finos de urânio natural vai ser comparada também com a dosimetria baseada no decaimento do ^{140}Ba . A seguir serão descritos os procedimentos em que se baseia esta dosimetria.

Quando se irradia com neutrons uma lâmina de urânio natural, um dos fragmentos pesados de fissão produzidos é o ^{140}Xe , que, por estar com excesso de neutrons, inicia uma cadeia beta menos, que termina no ^{140}Ce , como está esquematizado abaixo:



Como o ^{140}Xe e o ^{140}Cs têm meias vidas muito pequenas, ao cabo de alguns minutos de irradiação as atividades destes radionuclídeos entram em equilíbrio com o rendimento da reação $^{235}\text{U}(n,\text{fissão})$. Pode-se mostrar que, para tempos de irradiação usuais dentro do MTF, $\leq 10\text{hs}$, a quantidade de ^{140}Ba existente no final da irradiação é determinada pelo número de núcleos de ^{140}Xe produzidos durante a irradiação (Bigazzi *et al.*, 1988a).

A atividade absoluta do ^{140}Ba pode ser determinada, por exemplo, através da medida da linha gama de 537Kev de desexcitação do ^{140}La , conhecidas a "branching ratio" desta linha e a eficiência com que ela é detetada. Aquela atividade, medida durante o tempo de contagem, t_c , contado a partir do fim do intervalo de tempo t_d , cuja função é permitir que a radioatividade induzida na lâmina de urânio pela irradiação atinja níveis aceitáveis para sua manipulação, é dada por:

$$A = \frac{N_U^{Ba}}{t_{irr}^x} Z \left[\left[1 - \exp(-\lambda_{Ba} t_{irr}^x) \right] \exp[-\lambda_{Ba}(t_d + t_c)] \right] \quad (5-7)$$

onde: N_U^{Ba} é o número de átomos de urânio presentes na lâmina de urânio;

λ_{Ba} é a constante de decaimento do ^{140}Ba ;

Z é o número total de núcleos de ^{140}Ba produzidos por átomo alvo de urânio.

Z é dado por:

$$Z = \left\{ (Y_o)_{235} C_{235} t_{irr}^x \rho_o^x \sigma_o g_{235}(T^x) + \right. \\ \left. + (Y_{ep})_{235} C_{235} \int_{E_{max}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{235}(E) dE + \right. \\ \left. + (Y_{ep})_{238} C_{238} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{238}(E) dE \right\}$$

onde: $(Y_o)_{235}$ e $(Y_{ep})_{235}$ são os rendimentos percentuais da fissão

do ^{235}U induzida por neutrons térmicos e epitérmicos, respectivamente, para a produção do ^{140}Ba ;

$(Y_{\text{ep}})_{298}$ é o rendimento percentual da fissão do ^{238}U induzida por neutrons epitérmicos, para a produção do ^{140}Ba .

Através da atividade do ^{140}Ba , pode-se estimar R_M o número de fissões produzidas no mineral, por átomo alvo de urânio, dividindo-se Z por $(Y_o)_{295}$:

$$R_{\text{Ba}} = \frac{Z}{(Y_o)_{295}}, \text{ ou}$$

$$R_{\text{Ba}} = \left\{ C_{295} t_{\text{irr}}^x \phi_o^x \sigma_o g_{295}(T^x) + \right.$$

$$+ \frac{(Y_{\text{ep}})_{295}}{(Y_o)_{295}} C_{295} \int_{E_{\text{max}}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE +$$

$$\left. + \frac{(Y_{\text{ep}})_{298}}{(Y_o)_{295}} C_{298} \int_{E_{\text{Cd}}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{298}(E) dE \right\} \quad (5-8)$$

A estimativa de R_M por R_{Ba} é tanto melhor quanto mais próximos de 1 forem as razões $(Y_{\text{ep}})_{295}/(Y_o)_{295}$ e $(Y_{\text{ep}})_{298}/(Y_o)_{295}$.

Neste trabalho foram feitas comparações, em cinco irradiações diferentes, de estimativas de R_M utilizando-se filmes finos de urânio, uma dosimetria de ativação (dosimetria com folhas de ouro), vidros padrões do NBS e a dosimetria do ^{140}Ba . Os resultados das medidas de R_F , R_{Au} , R_{NBS} e R_{Ba} serão mostradas mais à frente. Antes disto, será mostrada uma comparação entre medidas de R_F , para uma mesma irradiação, efetuadas por vários filmes finos.

B.1. - Comparação entre diferentes filmes finos.

Para se analisar a consistência interna da dosimetria com filmes finos de urânio, submeteu-se a uma mesma irradiação com neutrons vários arranjos filme fino-mica muscovita, onde os filmes tinham espessuras variando entre $0,0015 \mu$ ate $0,1 \mu$. A irradiação (irradiação P22-1) foi efetuada na coluna termalizante (cração cádmio para ouro, 92,6) do reator da Universidade de Pavia, Pavia, Itália. A fluência nominal foi de $1,5 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2$.

Os resultados das medidas de R_F para os diferentes filmes são mostrados na tabela (5-1). A média pesada das medidas de R_F mostradas na tabela (5-1) pode ser escrita como:

$$\overline{R_F} = \frac{\sum_{i=1}^8 R_{Fi} / \sigma_i^2}{\sum_{i=1}^8 1 / \sigma_i^2} = (8,73 \pm 0,13) \times 10^{-12} \text{ fissões/núcleo de urânio}$$

onde os R_{Fi} são as medidas de R_F (algumas delas foram efetuadas pelos observadores A e B) e σ_i é o desvio padrão de R_{Fi} .

Os erros mostrados na tabela (5-1) são desvios padrões de médias poissonianas.

Efetuando-se o teste do χ^2 na forma

$$\chi^2 = \sum_i \frac{(R_{Fi} - \overline{R_F})^2}{\sigma_i^2} \quad (5-9)$$

se obtém que:

$$\chi^2 = 5,29$$

$$\nu = 7$$

$$P_{\chi}(\chi^2, \nu) \geq 0,60$$

TABELA (B-1): Nesta tabela estão mostrados os resultados obtidos com filmes finos de varias espessuras, submetidos a uma mesma irradição com neutrons. N_U^F são os números de átomos de urânio/cm² nos filmes, medidos através de suas atividades alfa registradas por emulsões nucleares. ϵ^F é a eficiência da mica enquanto detetor de traços produzidos pelo filme a ela acoplado. ρ_F é o número de traços/cm² medido nas micas, já descontados os traços fósseis. Para os filmes SPXXIV-2 e SPXVIII-3 foram efetuadas medidas de ρ_F por dois observadores: observador A (Pedro José Iunes) e observador B (Ligia Maria Estela de Navia). O observador A utilizou eficiência $\epsilon^F = 0,95 \pm 0,02$ e o observador B, $\epsilon^F = 1,00 \pm 0,02$.

FILME	ESPESSURA (MICRONS)	N_U^F (ATOMOS/CM ²)	OBSERVADOR	ϵ^F	ρ_F (TRAÇOS/CM ²)	R_F (10 ⁻¹⁶ FISSÕES/ NUCLEO)
SPXXIV-1	0,10	$1,51 \times 10^{17}$ ($\pm 2,8\%$)	A	0,95 ($\pm 2,1\%$)	$1,21 \times 10^6$ ($\pm 2,1\%$)	$8,44 \pm 0,35$
SPXXIV-2	0,10	$1,51 \times 10^{17}$ ($\pm 2,6\%$)	A	0,95 ($\pm 2,1\%$)	$1,26 \times 10^6$ ($\pm 2,9\%$)	$8,78 \pm 0,38$
			B	1,00 ($\pm 2,0\%$)	$1,38 \times 10^6$ ($\pm 2,5\%$)	$9,14 \pm 0,37$
SPXXVI-3	0,050	$7,08 \times 10^{16}$ ($\pm 2,8\%$)	A	0,95 ($\pm 2,1\%$)	$6,17 \times 10^5$ ($\pm 2,8\%$)	$9,17 \pm 0,41$
SPXVII-3	0,0015	$2,22 \times 10^{15}$ ($\pm 2,0\%$)	A	0,95 ($\pm 2,1\%$)	$1,76 \times 10^4$ ($\pm 2,3\%$)	$8,35 \pm 0,31$
SPXVIII-3	0,0015	$2,44 \times 10^{15}$ ($\pm 2,0\%$)	A	0,95 ($\pm 2,1\%$)	$2,06 \times 10^4$ ($\pm 2,8\%$)	$8,89 \pm 0,36$
			B	1,00 ($\pm 2,0\%$)	$2,13 \times 10^4$ ($\pm 2,8\%$)	$8,75 \pm 0,36$
SPXXII-4	0,010	$1,63 \times 10^{16}$ ($\pm 2,0\%$)	A	0,95 ($\pm 2,1\%$)	$1,31 \times 10^5$ ($\pm 2,7\%$)	$8,46 \pm 0,38$

Este resultado indica que as medidas de R_F estão consistentes com o valor médio de todas as medidas. Ou seja, os filmes utilizados como dosímetros apresentam resultados que concordam entre si.

Deve ser notado, também, que nas medidas de R_F efetuadas pelo observador A foi utilizado o valor de $\epsilon^F = 0,95 \pm 0,02$ e nas medidas de R_F efetuadas pelo observador B foi utilizado o valor de $\epsilon^F = 1,00 \pm 0,02$.

Os resultados das médias pesadas das medidas de R_F , efetuadas pelos dois observadores, foram:

observador A: $\bar{R}_F = (8,68 \pm 0,15) \times 10^{-12}$ fissões/núcleo de urânio

observador B: $\bar{R}_F = (8,95 \pm 0,26) \times 10^{-12}$ fissões/núcleo de urânio

Estes resultados são concordantes dentro de praticamente um desvio padrão da medida efetuada pelo observador B.

Na tabela (5-2) e na figura (5-1) são mostrados os valores de R_F em função da posição relativa dos filmes na montagem irradiada. Para os filmes SPXXIV-2 e SPXVIII-3 foram efetuadas as médias das medidas dos dois observadores.

Efetuando-se, com os dados mostrados na tabela (5-2), o teste do χ^2 , na forma da equação (5-9), se obtém que:

$$\chi^2 = 4,74$$

$$\nu = 5$$

$$P_{\chi}(\chi^2, \nu) < 0,50$$

Este resultado indica que não houve gradiente de fluxo de neutrons dentro da montagem irradiada.

Na tabela (5-3) e na figura (5-2) são mostrados os valores de R_F em função da espessura do filme. Para se obter o valor de R_F para filmes de $0,1 \mu$ foi utilizado a média entre os valores de R_F obtidos com os filmes SPXXIV-1 e SPXXIV-2. Um procedimento análogo a este foi utilizado para os filmes de $0,0015 \mu$.

Efetuando-se, com os valores de R_F mostrados na tabela (5-3), o teste do χ^2 , na forma da equação (5-9), se obtém que:

TABELA (5-2): Nesta tabela estão mostrados os valores de R_F em função da posição relativa dos filmes na montagem irradiada. Para os filmes SPXXIV-2 e SPXVIII-3 foram tomadas as médias das medidas efetuadas pelos observadores A e B (ver legenda da Tabela (5-1)).

FILME	POSICÃO RELATIVA (MILÍMETROS)	R_F (10^{12} fissões/ NÚCLEO)
SPXXIV-1	0,0	$8,44 \pm 0,35$
SPXXIV-2	1,0	$8,97 \pm 0,41$
SPXXIII-3	2,0	$9,17 \pm 0,44$
SPXVII-3	3,0	$8,35 \pm 0,34$
SPXVIII-3	4,0	$8,31 \pm 0,25$
SPXXII-4	5,0	$8,46 \pm 0,38$

FIGURA (5-1): Nesta figura grafica-se os valores de R_F em função da posição relativa dos filmes na montagem irradiada cujos dados estão mostrados na Tabela (5-2).

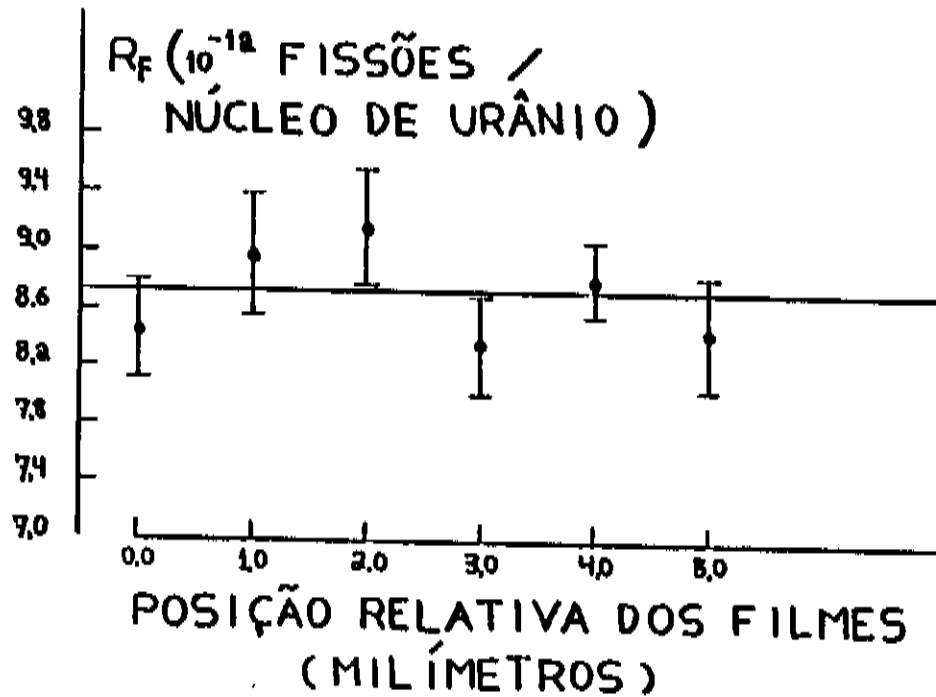
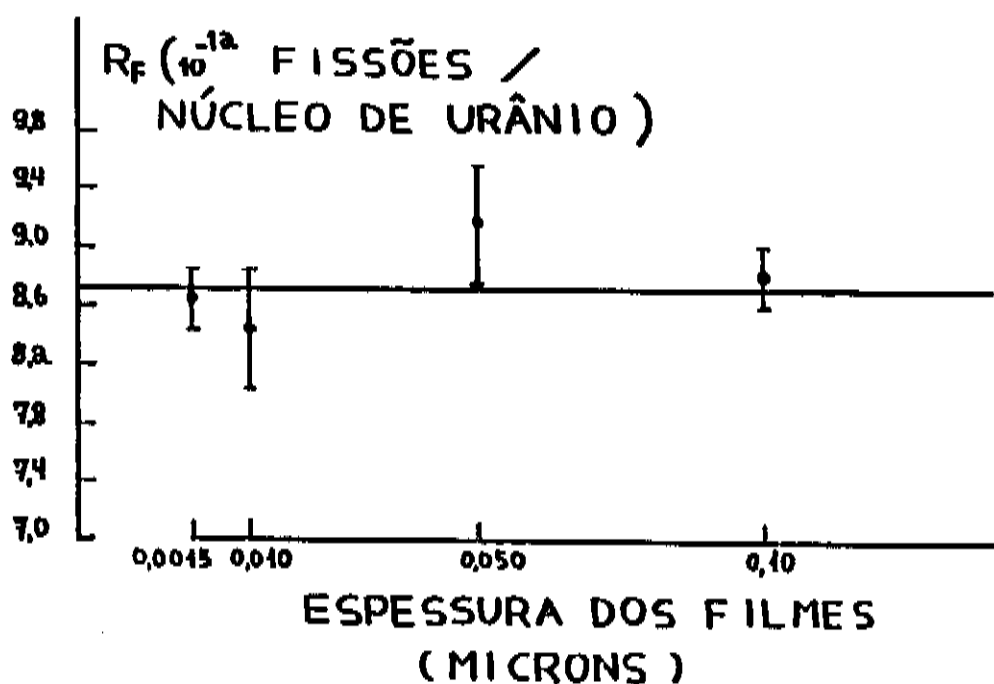


TABELA (5-3): Nesta tabela estão mostrados os valores de R_F em função da espessura dos filmes. Os valores de R_F são médias pesadas das medidas de R_F efetuadas com filmes de mesma espessura (ver Tabela (5-1)).

ESPESSURA (MICRONS)	R_F (10^{-12} FISSOES/ NUCLEO)
0,0015	$8,64 \pm 0,19$
0,010	$8,46 \pm 0,38$
0,050	$9,17 \pm 0,41$
0,10	$8,79 \pm 0,24$

FIGURA (5-2): Nesta figura grafica-se os valores de R_F em função da espessura dos filmes cujos dados estão mostrados na Tabela (5-3).



$$\chi^2 = 1,96$$

$$\nu = 3$$

$$P_{\chi}(\chi^2, \nu) \leq 0,60$$

Com os resultados apresentados nesta seção pode-se afirmar que o termo R_F obtido através da dosimetria com filmes finos é uma constante, nas condições experimentais utilizadas.

5.2. - Comparação entre a dosimetria com filmes finos e outras dosimetrias, resultados preliminares.

Como já foi mencionado, neste trabalho foram feitas comparações, em cinco irradiações diferentes, de estimativas de R_M utilizando-se filmes finos, dosimetria com folhas de ouro, dosimetria com vidros padrões do NBS e dosimetria via atividade do ^{140}Ba . Três das irradiações foram efetuadas na coluna termalizante do reator da Universidade de Pavia (posição TC). Para esta posição a temperatura dos neutrons é de $22,45^\circ\text{C}$ e a razão cádmio para ouro é 92,6. As outras duas irradiações foram efetuadas na posição LS do mesmo reator, onde a temperatura dos neutrons é $271,8^\circ\text{C}$ e razão cádmio para ouro é 6,6. Os fluxos de neutrons nominais para as posições TC e LS são, respectivamente, $2,5 \times 10^9 \text{ n/cm}^2\text{s}$ e $1,0 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2\text{s}$.

Os valores de R_{Au} , R_{Ba} , R_{NBS} e R_F obtidos para as cinco irradiações são mostrados na tabela (5-4).

Para se determinar R_{Au} foi utilizada a equação (5-2):

$$R_{\text{Au}} = C_{235} \sigma_0 t_{\text{irr}}^x \phi_0^x g_{235}(T^x)$$

onde $C_{235} = 0,0072$ e $\sigma_0 = 580,2$ barns.

$g_{235}(T^x)$ foi estimado a partir da temperatura dos neutrons nas posições TC e LS. Os valores de $g_{235}(T^x)$ utilizados foram (Wescott, 1957):

TABELA (5-4): Nesta tabela estão mostrados os resultados das estimativas de R_M efetuadas com as dosimetrias via Au, Ba, vidro do NBS e filme fino, para as cinco irradiações utilizadas neste trabalho. Os R_i são dados em 10^{-14} fissões/núcleo de urânio. Os valores de R_F para as irradiações P21-1 e P21-3 são as médias entre os valores obtidos por dois [3,61(±4,5%) e 3,79(±4,6%)] e três [22,5(±3,9%), 22,3(±3,9%) e 23,4(±3,8%)] filmes diferentes, respectivamente.

IRRADIAÇÃO (Posição)	R_{Au}	R_{Ba}	R_{NBS}	R_F
P18-2 (TC)	3,57 ± 0,17	3,67 ± 0,17	3,80 ± 0,16	3,92 ± 0,15
P19-1 (TC)	26,5 ± 0,9	26,5 ± 0,9	26,5 ± 0,9	25,1 ± 1,0
P21-1 (TC)	3,36 ± 0,09	3,86 ± 0,20	3,60 ± 0,11	3,70 ± 0,12
P19-2 (LS)	235 ± 12	253 ± 14	241 ± 6	226 ± 10
P21-3 (LS)	25,8 ± 1,2	21,4 ± 1,9	21,8 ± 0,5	22,8 ± 0,5

Posição TC: $g_{295}(T^x) = 0,978$

Posição LS: $g_{295}(T^x) = 0,935$

$t_{irr}^x \phi_o^x$ foi obtido através da equação (3-15), utilizando-se os seguintes dados e procedimentos experimentais (Bigazzi et al., 1989): 1) as folhas de Au possuem pureza de 99,9918%, espessura de 0,025mm e diâmetro de 12,7mm; 2) a atividade gama absoluta foi determinada, utilizando-se um detetor de Ge-Li, através da linha gama de 411Kev de desexcitação do ^{198}Au , conhecidas a "branching ratio" desta linha (99,5%) e a eficiência com que ela é detetada (4,60%); 3) o valor da constante de decaimento utilizada foi de $2,9757 \times 10^{-6} \text{s}^{-1}$; 4) a seção de choque efetiva, σ_{eff} , para a absorção de um neutron por um núcleo de Au foi obtida através da seguinte relação:

$$\sigma_{eff} = (g + rs) \sigma_o$$

onde $\sigma_o = 98,8$ barns e os valores de g , r e s utilizados nas posições TC e LS foram:

POSIÇÃO TC	POSIÇÃO LS
$r = 0,0008148$	$r = 0,0447$
$g = 1,000545$	$g = 1,0192$
$s = 17,375$	$s = 23,250$

Os valores da fluência de neutrons térmicos, $t_{irr}^x \phi_o^x$, obtidos através das folhas de ouro foram

IRRADIAÇÃO	FLUÊNCIA DE NEUTRONS TÉRMICOS (neutrons/cm ²)
P18-2	$(8,74 \pm 0,41) \times 10^{12}$
P19-1	$(6,49 \pm 0,21) \times 10^{13}$
P21-1	$(8,22 \pm 0,21) \times 10^{12}$
P19-2	$(6,02 \pm 0,31) \times 10^{14}$
P21-3	$(6,61 \pm 0,31) \times 10^{13}$

R_{Ba} foi determinado a partir da equação (5-7):

$$R_{Ba} = \frac{t_{irr}^x A}{N_U^{Ba} (Y_o)_{295} (1 - \exp(-\lambda_{Ba} t_{irr}^x)) \exp(-\lambda_{Ba} (t_d + t_c))}$$

Foram levados em conta os seguintes dados e procedimentos experimentais (Bigazzi et al., 1989): 1) a atividade absoluta do ^{140}Ba foi determinada através da linha gama de 537Kev de desexcitação do ^{140}La , conhecidas a "branching ratio" desta linha (24,4%) e a eficiência com que ela é detectada (3,677%); 2) o valor de λ_{Ba} utilizado $\lambda_{Ba} = 6,2060 \times 10^{-7} s^{-1}$; 3) de $(Y_o)_{295}$ utilizado foi 6,375%.

Para se determinar R_{NBS} foi utilizada a equação (5-4):

$$R_{NBS} = C_{295} \sigma_o \left(\frac{t_{irr}^* \rho_o^*}{\rho_D^*} \right)_{RT3/RT4} \rho_D^x$$

onde $C_{295} = 0,0072$ e $\sigma_o = 580,2$ barns.

Na irradiação P18-2, foi utilizado o padrão SRM961. Porém, nas outras irradiações foram utilizados os padrões SRM962a.

Os valores de R_{NBS} foram obtidos utilizando-se as medidas de ρ_D^x na superfície interna do vidro (geometria 4π) e na superfície de uma mica muscovita justaposta ao padrão em cada irradiação (Bigazzi et al., 1989). Desta forma, para se obter R_{NBS} foram utilizados dois valores de

$$\left[\frac{t_{irr}^* \rho_o^*}{\rho_D^*} \right]_{RT3/RT4}$$

Por exemplo, a seguir são mostrados os valores de ρ_D^* , obtidos utilizando-se os dois métodos de contagem mencionados acima, para o padrão SRM962a:

	$\rho_D^* (\times 10^4 \text{ traços/cm}^2)$	
	posição RT3	posição RT4
vidro-4 π	9,18	8,95
muscovita	8,27	7,50

Neste trabalho foi utilizada a calibração via ouro. Neste caso, $t_{irr}^* \rho_o^*$ dado pelo NBS para o SRM962a é $4,75 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2$ na posição RT3 e é $4,17 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2$ na posição RT4. Desta forma, com os valores de ρ_D^* dados acima, pode-se obter

$$\left[\frac{t_{irr}^* \rho_o^*}{\rho_D^*} \right]_{RT3/RT4}$$

para cada método de contagem utilizado.

Os valores de R_{NBS} mostrados na tabela (5-4) foram obtidos efetuando-se as médias dos valores obtidos com vidro-4 π e muscovita.

Como já foi mencionado, para se determinar R_F foi utilizada a equação (4-2):

$$R_F = \frac{\rho_F}{N_U^F \epsilon^F}$$

onde ρ_F é o número de traços/cm² medido nas micas, já descontados os traços fósseis, N_U^F são os números de átomos de urânio/cm² nos filmes, medidos através de suas atividades alfa registradas por emulsões nucleares e $\epsilon^F = 0,95 \pm 0,02$.

Deve ser mencionado, também, que os valores de R_F mostrados na tabela (5-4), para as irradiações P19-1 e P19-2 foram obtidos indiretamente.

Por exemplo, para se determinar R_F na irradiação P19-1, foi utilizada a matriz do filme com prefixo SPXVIII. Esta matriz foi cortada em quatro pedaços, como mostra o esquema abaixo:

SPXVIII-1	SPXVIII-2
SPXVIII-3	SPXVIII-4

Os pedaços SPXVIII-1 e SPXVIII-4 foram irradiados e os pedaços SPXVIII-2 e SPXVIII-3 foram justapostos a emulsões nucleares durante 102 dias, a $\approx 5^\circ\text{C}$.

N_U^F foi obtido através da média das atividades alfa dos pedaços SPXVIII-2 e SPXVIII-3 e ρ_F foi obtido através das médias das densidades superficiais dos traços de fissão nos pedaços SPXVIII-1 e SPXVIII-4.

Um procedimento análogo a este foi efetuado com a matriz SPXX, utilizada na determinação de R_F para a irradiação P19-2.

Na tabela (5-5) e na figura (5-3) são mostradas as razões R_F/R_{NBS} , R_F/R_{Ba} e R_F/R_{Au} , obtidas para cada uma das cinco irradiações apresentadas na tabela (5-4). As médias pesadas destas razões são:

$$\left(\overline{R_F/R_{\text{NBS}}} \right) = 1,012 \pm 0,020$$

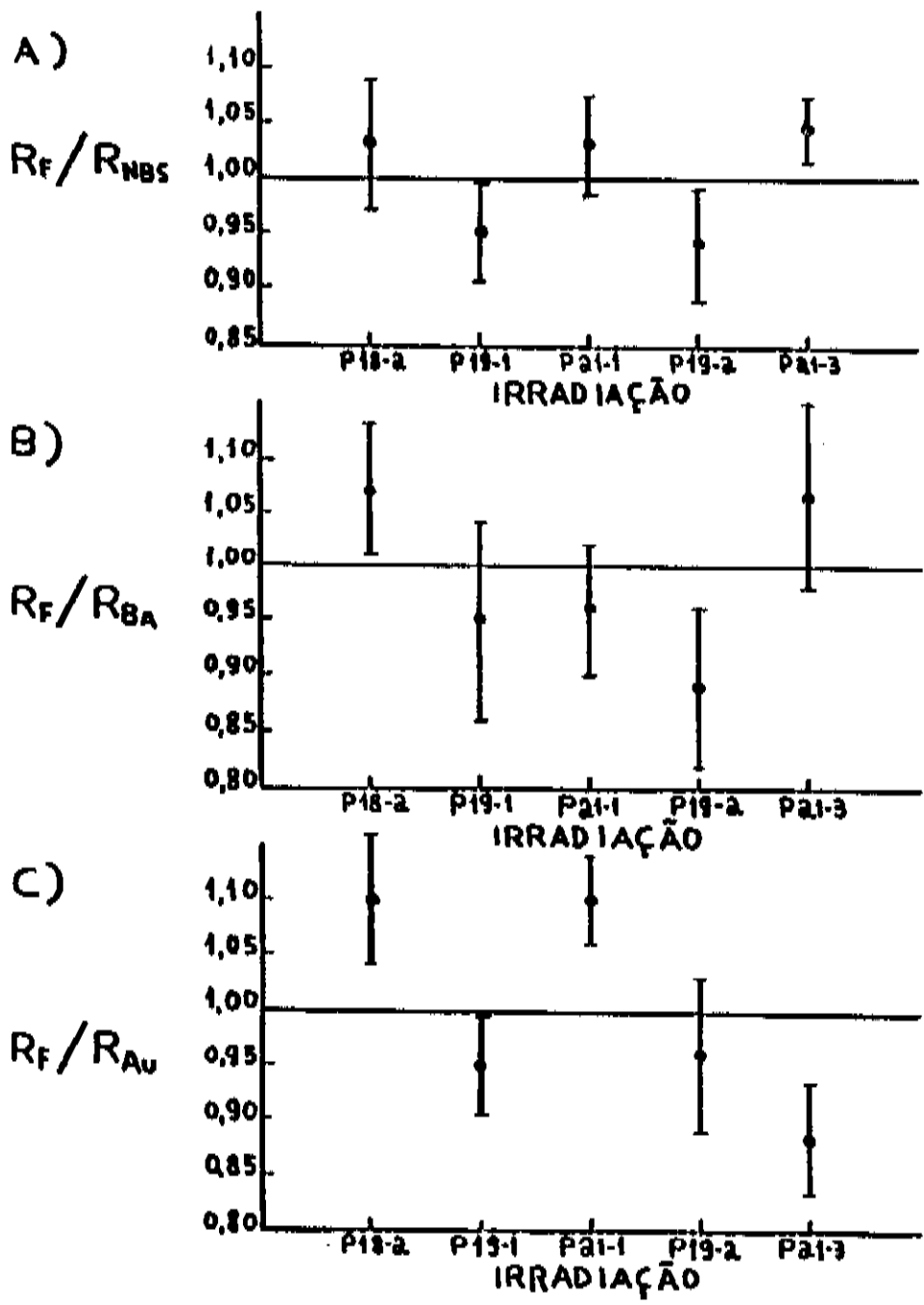
$$\left(\overline{R_F/R_{\text{Ba}}} \right) = 0,998 \pm 0,032$$

$$\left(\overline{R_F/R_{\text{Au}}} \right) = 1,024 \pm 0,024$$

TABELA (5-5): Nesta tabela estão mostradas as razões R_F / R_{NBS} , R_F / R_{Ba} e R_F / R_{Au} , obtidas através da Tabela (5-4).

IRRADIAÇÃO (POSICÃO)	R_F / R_{NBS}	R_F / R_{Ba}	R_F / R_{Au}
P18-2 (TC)	$1,032 \pm 0,059$	$1,068 \pm 0,060$	$1,098 \pm 0,060$
P19-1 (TC)	$0,947 \pm 0,046$	$0,947 \pm 0,086$	$0,947 \pm 0,080$
P21-1 (TC)	$1,028 \pm 0,044$	$0,959 \pm 0,062$	$1,101 \pm 0,041$
P19-2 (LS)	$0,938 \pm 0,061$	$0,893 \pm 0,072$	$0,962 \pm 0,069$
P21-3 (LS)	$1,046 \pm 0,032$	$1,065 \pm 0,092$	$0,884 \pm 0,052$

FIGURA (6-3): Nesta figura estão mostrados os resultados da Tabela (5-5); em A), B) e C) estão mostrados, respectivamente, R_F/R_{NBS} , R_F/R_{Ba} e R_F/R_{Au} para as irradiações efetuadas.



Estes valores são estatisticamente indistinguíveis do valor ideal 1. Porém, para se testar se aquelas razões estão individualmente consistentes com o valor 1, foi utilizado o teste do χ^2 na forma da equação (5-9). Os resultados obtidos foram:

i) no caso da comparação com os padrões do NBS;

$$\chi^2 = 5,65$$

$$\nu = 5$$

$$P_{\chi}(\chi^2, \nu) \leq 0,40$$

ii) no caso da comparação com o ^{140}Ba ;

$$\chi^2 = 4,78$$

$$\nu = 5$$

$$P_{\chi}(\chi^2, \nu) \leq 0,50$$

iii) no caso da comparação com o ouro;

$$\chi^2 = 15,53$$

$$\nu = 5$$

$$P_{\chi}(\chi^2, \nu) \leq 0,01$$

Os resultados obtidos acima mostram uma boa concordância entre a dosimetria via filmes finos e as dosimetrias via ^{140}Ba e via os padrões do NBS.

No caso da comparação entre os filmes finos e o ouro não se pode afirmar que as duas dosimetrias estão em boa concordância. Porém, o fato de que se está no limite do critério para o teste do χ^2 ($P_{\chi}(\chi^2, \nu) < 0,01$) indica que uma resposta mais clara pode ser obtida se se efetuar um número maior de comparações entre estas dosimetrias.

Deve ser lembrado que um dos objetivos deste trabalho é a viabilização da dosimetria com filmes finos de urânio natural, de modo que ela possa ser utilizada em um número muito maior de comparações com outras dosimetrias. Outro objetivo é utilizá-la em fluências compatíveis com as normalmente utilizadas na datação com o MTf, o que será estudado no capítulo seguinte.

8. - VIABILIDADE DA UTILIZAÇÃO DE FILMES FINOS EM FLUÊNCIAS DE NEUTRONS USUALMENTE UTILIZADAS NA DATAÇÃO COM O MTF.

A dosimetria de neutrons com filmes de urânio, dentro do MTF, é utilizada normalmente em fluências menores que 10^{15} n/cm^2 (ver por exemplo, Wall, 1988 e Bigazzi et al., 1988b). Este fato se deve, principalmente, às dificuldades em se preparar depósitos uniformes com conteúdo de urânio muito baixo (menor que $10^{14} \text{ átomos/cm}^2$) e em se determinar N_U^F para estes depósitos. Porém, podem ser encontrados na literatura, trabalhos sobre a aplicação da dosimetria com filmes finos em física de reatores, em fluências maiores que 10^{17} n/cm^2 (ver por exemplo, Gold et al., 1980 e Ruddy and Roberts, 1986).

Na Westinghouse Hanford Company foram desenvolvidos procedimentos de preparação de depósitos fissionáveis de massa ultra baixa (Ruddy, 1986). Para se calibrar a massa destes depósitos, foram utilizados isótopos de meia vida curta (traçadores) para marcarem os isótopos de interesse. Ou seja, conhecendo-se as concentrações isotópicas do traçador e do isótopo de interesse presentes no depósito, a constante de decaimento do traçador e a atividade do depósito pode-se obter o conteúdo do isótopo de interesse presente no depósito.

No presente trabalho conseguiu-se confeccionar e calibrar filmes finos de urânio natural compatíveis com fluências de até $\approx 10^{16} \text{ n/cm}^2$. Para se confeccionar tais filmes foram efetuadas algumas modificações na técnica desenvolvida a partir do trabalho de Yagoda, 1949, e para calibrá-los não se necessitou de um traçador. A seguir serão detalhados os procedimentos utilizados na preparação e calibração de filmes de UO_3 compatíveis com fluências maiores que 10^{15} n/cm^2 .

Para filmes "muito finos" as moléculas estão espalhadas sobre a superfície da mica suporte (já não tem sentido se falar de espessura em unidade de comprimento). Este fato dificulta a obtenção de filmes uniformes, utilizando-se a técnica de Yagoda. Porém, pode-se minimizar o efeito da desuniformidade dos filmes alterando esta técnica.

No procedimento de Yagoda se recomenda a utilização das mesmas quantidades de nitrato de uranila e parlodium. Filmes uniformes puderam ser obtidos, no entanto, aumentando-se o conteúdo de parlodium em relação ao conteúdo de nitrato de uranila. Neste caso, o único problema observado foi que a estimativa do conteúdo de urânio ficou prejudicada (uma parcela do urânio escapa do filme durante a queima do parlodium).

Para se confeccionar filmes compatíveis com fluências maiores que 10^{15} n/cm² (filmes com menos que 0,1 µg de UO₃/cm²) foi utilizado $\approx$ 8mg de parlodium/cm². O conteúdo de urânio para os filmes confeccionados com esta quantidade de parlodium pode ser até 10 vezes menor do que o esperado. Porém, este procedimento acarreta uma boa uniformidade nos filmes e minimiza a presença de aglomerados (regiões muito pequenas com concentrações de urânio muito altas comparadas com o resto do filme), que aparecem normalmente em filmes "muito finos" obtidos com o método de Yagoda. Na figura (6-1) estão mostrados traços de fragmentos de fissão provenientes de dois aglomerados.

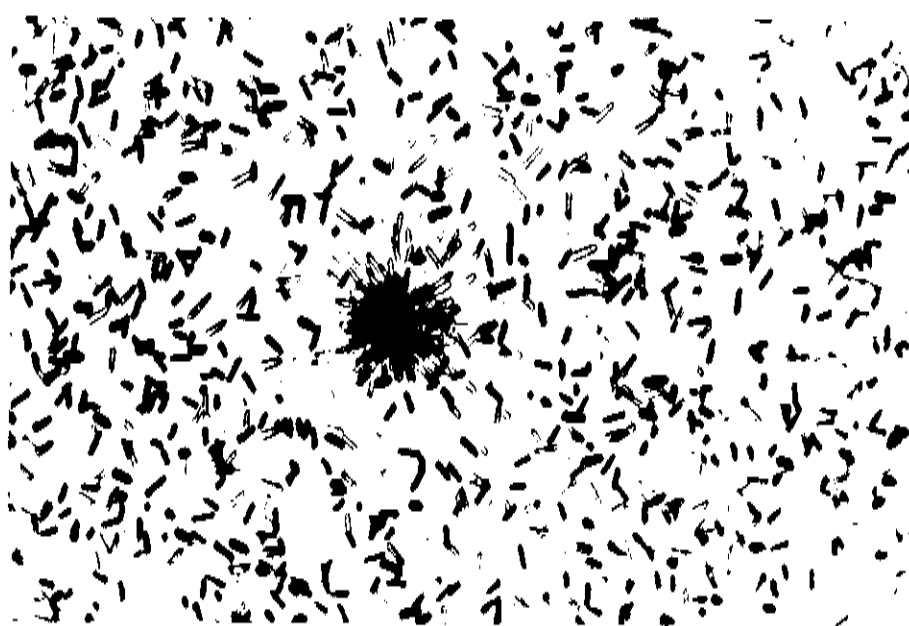
Apesar dos aglomerados não terem sido totalmente erradicados dos filmes "muito finos", eles aparecem sobre um fundo com conteúdo de urânio uniforme e estão suficientemente distantes uns dos outros. Isto faz com que a presença dos aglomerados não prejudique a dosimetria com filmes finos de urânio. Ou seja, se se puder distinguir os aglomerados tanto na medida de ρ_F como na determinação do conteúdo de urânio dos filmes, pode-se considerar como dosímetro de neutrons apenas o fundo com conteúdo de urânio uniforme.

Uma densidade superficial de traços de partículas alfa, em emulsões nucleares, apropriada para que se possa identificar aglomerados (utilizando-se aumento 12,5x100) é $\rho_\alpha \approx 10^5$ traços/cm². Este fato torna inviável o tempo de exposição de uma emulsão nuclear a um filme "muito fino". Por exemplo, para um filme com $2,5 \times 10^{14}$ átomos de urânio/cm² (compatível com fluências de até 10^{15} neutrons/cm²) seria necessário um tempo de exposição de $\approx$ 2,5 anos, para se obter 10^5 traços/cm².

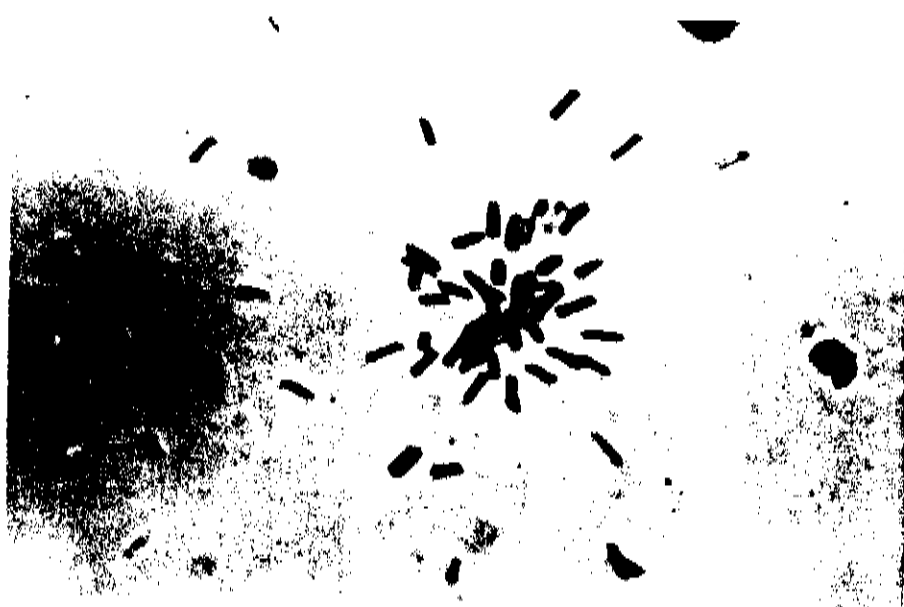
Porém, pode-se identificar traços provenientes de aglomerados ao se efetuar a medida de ρ_F em micas-detetor (utilizando-se

FIGURA (8-1): Nesta figura estão mostrados traços de fissão provenientes de dois aglomerados: em A) junto com um fundo com $\rho_F \approx 10^6$ traços/cm² e em B) junto com um fundo com $\rho_F \approx 1.6 \times 10^4$ traços/cm².

A)



B)



aumento $12,5 \times 40$) com densidades superficiais até menores que 10^4 traços/cm². Isto se deve principalmente ao fato de que a área ocupada pelos traços de fissão, provenientes de um aglomerado, é quase sempre menor que a área do campo visual no aumento $12,5 \times 40$ ($\approx 10^{-8}$ cm²). Este fato possibilita que um filme com conteúdo de urânio conhecido, através da atividade alfa registrada na emulsão nuclear (e que não apresenta problemas com aglomerados), possa ser utilizado para se calibrar filmes (com aglomerados) cujo conteúdo de urânio é até 100 vezes menor de que o dele. Por exemplo, foram submetidos a uma mesma irradiação com neutrons, um filme com $(2,30 \pm 0,05) \times 10^{15}$ átomos de urânio/cm² (onde não aparecem aglomerados) e um filme com conteúdo de urânio ≈ 25 vezes menor. O conteúdo de urânio do filme "mais grosso" foi obtido através da atividade alfa, registrada por uma emulsão nuclear que ficou justaposta a este filme por 23,8 dias. Após a irradiação com neutrons, foram efetuadas (por Lígia Maria Estela de Navia) as medidas de ρ_F para ambos os filmes. Os resultados destas medidas foram:

Filme	N_F^U (átomos de urânio/cm ²)	ρ_F (traços/cm ²)
SPXVII-4	$2,30 \times 10^{15}$ ($\pm 2,2\%$)	$9,24 \times 10^5$ ($\pm 2,0\%$)
A	?	$3,76 \times 10^4$ ($\pm 1,8\%$)

Como os dois filmes foram submetidos a uma mesma irradiação com neutrons (irradiação efetuada no reator do IPEN/CNEN-São Paulo, com uma fluência nominal de 10^{14} n/cm²), da equação (4-2) pode-se escrever que:

$$N_U^F(A) = \frac{\rho_F(A)}{\rho_F(\text{SPXVII-4})} N_U^F(\text{SPXVII-4}) \quad (6-1)$$

Desta forma, se obtém que o filme A possui $N_U^F = 9,36 \times 10^{13}$ átomos de urânio/cm².

Para se estimar a fluência de neutrons máxima na qual este filme pode ser utilizado, sem que a superposição de traços atrapalhe as medidas de ρ_F , pode-se utilizar a equação (4-2), desprezando-se as fissões por neutrons epitérmicos. Desta forma, utilizando-se os valores de $\sigma_o = 580$ barns, $C_{235} = 0,0072$, $\rho_F^x = 1,2 \times 10^6$ traços/cm², $g_{235}(T^x) \approx 1$ e $N_U^F = 9,36 \times 10^{13}$ cm⁻², se obtém que $t_{irr}^x \rho_o^x \approx 3 \times 10^{15}$ n/cm².

O erro associado a esta determinação do conteúdo de urânio do filme A, $\sigma(N_U^F, A)$, pode ser escrito como:

$$\sigma(N_U^F, A) = \left[\sigma^2(N_U^F, \text{SPXVII-4}) + \sigma^2(\rho_F, \text{SPXVII-4}) + \sigma^2(\rho_F, A) \right]^{1/2}$$

onde: $\sigma(N_U^F, \text{SPXVII-4}) = 2,2\%$

$\sigma(\rho_F, \text{SPXVII-4}) = 2,0\%$

$\sigma(\rho_F, A) = 1,8\%$

logo

$$\sigma(N_U^F, A) = 3,5\%$$

Para se diminuir o erro na determinação de $N_U^F(A)$, pode-se aumentar o número de traços contados nas micas ou, por exemplo, aumentar o número de filmes "grossos" na irradiação de calibração, como será mostrado em seguida.

Assim, foram submetidas a uma mesma irradiação com neutrons (irradiação efetuada no reator do IPEN/CNEN-São Paulo com uma fluência nominal de 10^{14} n/cm²) quatro filmes "grossos" (cujos conteúdos de urânio foram determinados através das atividades alfa) e três filmes a serem calibrados. Cada filme a ser calibrado foi colocado entre dois filmes com N_U^F conhecido. Na tabela (6-1) estão mostrados os resultados obtidos.

TABELA (6-1): Nesta tabela estão mostrados os valores de ρ_F obtidos para sete filmes submetidos a uma mesma irradiação com neutrons. Estão mostrados também os valores de ρ_F/N_U^F para cada filme com conteúdo de urânio (N_U^F) conhecido via atividade alfa.

FILME	N_U^F (ÁTOMOS/ CH^2)	ρ_F (TRAÇOS/ CH^2)	ρ_F / N_U^F (TRAÇO / ÁTOMO)
SPXVII-1	$2,27 \times 10^{15}$ ($\pm 2,1\%$)	$1,10 \times 10^6$ ($\pm 1,9\%$)	$4,85 \times 10^{-10}$ ($\pm 2,9\%$)
R	?	$3,72 \times 10^4$ ($\pm 1,9\%$)	—
SPXVII-2	$2,14 \times 10^{15}$ ($\pm 2,2\%$)	$1,05 \times 10^6$ ($\pm 2,2\%$)	$4,91 \times 10^{-10}$ ($\pm 3,1\%$)
T	?	$1,64 \times 10^4$ ($\pm 2,0\%$)	—
SPXVII-1	$2,34 \times 10^{15}$ ($\pm 2,1\%$)	$1,90 \times 10^6$ ($\pm 2,1\%$)	$5,13 \times 10^{-10}$ ($\pm 2,9\%$)
D	?	$1,25 \times 10^5$ ($\pm 2,1\%$)	—
SPXVIII-3	$2,44 \times 10^{15}$ ($\pm 2,0\%$)	$1,21 \times 10^6$ ($\pm 1,8\%$)	$4,96 \times 10^{-10}$ ($\pm 2,7\%$)

Na coluna da direita da tabela (6-1) são mostrados os valores de ρ_F/N_U^F , para cada filme com N_U^F conhecido via atividade alfa. A média pesada dos valores de ρ_F/N_U^F é:

$$\left[\frac{\rho_F}{N_U^F} \right] = (4,96 \pm 0,07) \times 10^{-10} \text{ traços/átomo de urânio}$$

onde

$$\sigma(\overline{\rho_F/N_U^F}) = \left[\sum_i 1 / \sigma_i^2 \right]^{-1/2} = 1,45\%$$

Desta forma, pode-se utilizar $\left[\overline{\rho_F/N_U^F} \right]$ para se obter os valores de N_U^F dos filmes R, T e D, utilizando-se uma relação semelhante à equação (6-1); estes valores estão mostrados na tabela (6-2). Nesta tabela também se mostra a espessura daqueles filmes e os limites superiores da fluência em que eles podem ser utilizados (esses limites são definidos para $\rho_1 = 1,2 \times 10^6$ traços/cm², onde a superposição de traços ainda não atrapalha as contagens).

Os erros associados a estas calibrações podem ser escritos como:

$$\sigma(N_U^F, \text{filme}) = \left[\sigma^2(\overline{\rho_F/N_U^F}) + \sigma^2(\rho_F, \text{filme}) \right]^{1/2}$$

Das considerações e resultados mostrados acima, pode-se concluir que é viável a utilização de filmes finos de urânio natural em fluências compatíveis com as usualmente utilizadas dentro do MTF, sem que, necessariamente, se tenha que introduzir traçadores ou calibrações ligadas a outras dosimetrias.

TABELA (6-2): Nesta tabela estão mostrados os valores de N_U^F para os filmes R, T e D, calibrados através dos filmes com N_U^F conhecidos via atividade alfa. Mostra-se também as espessuras (em gramas/cm²) dos filmes e a fluência máxima na qual cada filme pode ser utilizado (fluência na qual a mica-detector justaposta ao filme registrará $\rho_F = 1,2 \times 10^6$ tracos/cm²).

FILME	N_U^F (ÁTOMOS/CM ²)	ESPESSURA (GRAMAS/CM ²)	FLUÊNCIA MÁXIMA (NEUTRONS/CM ²)
R	$7,50 \times 10^{13}$ ($\pm 2,4\%$)	$3,56 \times 10^{-8}$	$\approx 4 \times 10^{15}$
T	$3,30 \times 10^{13}$ ($\pm 2,5\%$)	$4,57 \times 10^{-8}$	$\approx 9 \times 10^{15}$
D	$2,52 \times 10^{13}$ ($\pm 2,5\%$)	$1,19 \times 10^{-7}$	$\approx 1 \times 10^{15}$

7. - CONCLUSÕES

1) Neste trabalho pode ser visto que a dosimetria de neutrons com filmes finos de urânio natural pode ser utilizada de maneira a depender de parâmetros ligados a outras dosimetrias e é autoconsistente, ou seja, filmes finos com diferentes conteúdos de urânio dão a mesma estimativa de R_M , quando irradiados conjuntamente.

Outro ponto importante da dosimetria com filmes finos é a possibilidade de sua utilização em fluências compatíveis com as usualmente utilizadas dentro do MTF, sem que suas características sejam modificadas.

2) Comparando-se o desempenho da dosimetria com filmes finos com o das dosimetrias via ^{140}Ba , vidros do NBS e Au, pode-se dizer que há um bom acordo com relação ao ^{140}Ba e aos vidros do NBS e um acordo duvidoso ($P(\chi^2, \nu) \leq 0,01$) com relação ao Au. Porém este comentário tem que ser tomado como preliminar, já que o número de irradiações onde se fez comparações foi pequeno (cinco).

É importante que fique claro que a comparação entre os desempenhos de diferentes dosimetrias não é o objetivo da presente tese. Isto foi feito aqui mais para mostrar que a dosimetria com filmes finos funciona na prática.

3) Foi comentado anteriormente, na introdução e no capítulo 3, que a dosimetria de neutrons é uma possível fonte de erros sistemáticos dentro do MTF. Com o intento de evidenciar as diferentes respostas que mineral e dosímetros podem dar a uma dada irradiação, escreveu-se a expressão completa do número de fissões por átomo de urânio para o mineral, R_M , e as suas estimativas para os dosímetros aqui estudados, R_F , R_{NBS} , R_{Ba} e R_{Au} .

Já foi dito em 2) que não temos estatística para fazermos uma análise comparativa profunda dos desempenhos dos diferentes dosímetros analisados aqui. Porém alguns comentários podem ser feitos, a partir das expressões dos R_i :

No caso em que a dosimetria via vidro do NBS é efetuada

lançando-se mão de apenas um vidro de calibração do NBS. RT3 por exemplo, R_{NBS} pode ser descrito pela equação (5-5). Se nesta irradiação se irradiam também um mineral e os dosímetros via ^{140}Ba , Au e filme fino, se tem, reescrevendo as estimativas de R_M e o R_M do próprio mineral, que:

$$R_M = \left\{ C_{295} \sigma_o t_{irr}^x \phi_o^x g_{295}(T^x) + C_{295} \int_{E_{max}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE \right. \\ \left. + C_{299} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{299}(E) dE + (N_{292}/N_U) \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{292}(E) dE \right\}$$

$$R_F = \left\{ C_{295} \sigma_o t_{irr}^x \phi_o^x g_{295}(T^x) + \right. \\ \left. + C_{295} \int_{E_{max}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE + C_{299} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{299}(E) dE \right\}$$

$$R_{Ba} = \left\{ C_{295} \sigma_o t_{irr}^x \phi_o^x g_{295}(T^x) + \right. \\ \left. + \frac{(Y_{ep})_{295}}{(Y_o)_{295}} C_{295} \int_{E_{max}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{295}(E) dE + \right. \\ \left. + \frac{(Y_{ep})_{299}}{(Y_o)_{295}} C_{299} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{299}(E) dE \right\}$$

$$R_{Au} = C_{235} \sigma_0 t_{irr}^x \phi_0^x g_{235}(T^x)$$

$$R'_{NBS} = \left\{ C_{235} \sigma_0 t_{irr}^x \phi_0^x g_{235}(T^x) + \right. \\ + C_{235} \int_{E_{max}}^{\infty} \left[\phi^x(E) - \frac{\rho_D^x}{\rho_D^*} \phi^*(E) \right] \sigma_{235}(E) dE + \\ + \frac{C_{235}}{C_{235}^{NBS}} C_{238}^{NBS} \int_{E_{cd}}^{\infty} \left[\phi^x(E) - \frac{\rho_D^x}{\rho_D^*} \phi^*(E) \right] \sigma_{238}(E) dE + \\ \left. + \frac{C_{235}}{C_{235}^{NBS}} (N_{232}/N_U)^{NBS} \int_{E_{cd}}^{\infty} \left[\phi^x(E) - \frac{\rho_D^x}{\rho_D^*} \phi^*(E) \right] \sigma_{232}(E) dE \right\}$$

onde R'_{NBS} é igual ao R_{NBS} da equação (8-5) vezes $g_{235}(T^*)$. Utilizamos R'_{NBS} aqui para facilitar a comparação com os outros R_i .

Comparando-se os R_i acima se pode dizer que:

a) R_F é o que mais se aproxima de R_M , porém não "responde" aos efeitos, em termos de traços, que o conteúdo de tório do mineral possa causar.

b) R_{Ba} tem uma expressão idêntica a R_F , somente se $(Y_o)_{235} = (Y_{op})_{235} = (Y_{op})_{238}$.

c) R_{Au} só responde aos neutrons térmicos, ou seja, responde apenas ao primeiro termo do lado direito da equação de R_M .

d) R'_{NBS} dá uma resposta muito parecida com a de R_{Au} , no caso em que a irradiação de calibração do NBS e a irradiação x são efetuadas em posições com termalizações iguais. Pois neste caso

se pode escrever que $\phi^*(E) = (\rho_D^x/\rho_D^*) \phi^*(E)$, já que a razão (ρ_D^x/ρ_D^*) atua apenas como um fator de normalização.

No caso em que a termalização da irradiação x é pior que a da irradiação de calibração há uma tendência de que R'_{NBS} seja maior que R_{Au} .

No caso em que a termalização da irradiação x é melhor que a da irradiação de calibração há uma tendência de que R_{NBS} seja menor que R_{Au} .

As considerações acima são qualitativas. Não se esquecendo das dificuldades envolvidas nos procedimentos e medições do MTF, pode-se dizer, porém, que elas se constituem no resultado de um esforço no sentido de se compreender as raízes das dificuldades da dosimetria de neutrons dentro do MTF, o que tem sido feito por outros autores também (por exemplo: Green and Hurford, 1984; Crowley, 1986; Van Den Haute et al., 1988; Suzuki and Tomura, 1988; Tagami and Nishimura, 1989).

4) Os filmes finos de urânio natural podem ser utilizados para calibrar outras dosimetrias baseadas na reação $^{235}\text{U}(n, \text{fissão})$. Por exemplo, se eles forem usados para calibrar vidros padrões dopados apenas com urânio natural (como o CN1 e o CN2 da Corning) esta dosimetria funcionará de maneira análoga à dosimetria com filmes finos de urânio natural.

5) O termo de R_M relativo às fissões do ^{232}Th pode ser obtido conhecendo-se a razão tório-urânio no mineral ($N_{^{232}\text{Th}}/N_{^{238}\text{U}}$) e o número de fissões por átomo alvo de ^{232}Th durante a irradiação x ($E_{cd} \int_0^\infty \phi^*(E) \sigma_{^{232}\text{Th}}(E) dE$).

A razão tório-urânio no mineral pode, por exemplo, ser conhecida através de espectroscopia de massa.

O número de fissões por átomo alvo de ^{232}Th , ocorridas durante a irradiação x, pode ser conhecido irradiando-se um filme fino de ^{232}Th , com conteúdo de tório conhecido, junto com o mineral a ser datado pelo MTF. Desta forma:

$$\rho_F^x = \epsilon_{232} N_{232}^F \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi^x(E) \sigma_{232}(E) dE$$

onde ρ_F^x é a densidade superficial de traços de fissão registrados numa mica justaposta ao filme de tório durante a irradiação x, $\epsilon_{232} = \epsilon^F$ e finalmente, N_{232}^F é o conteúdo de ^{232}Th por unidade de superfície do filme. N_{232}^F pode ser obtido através da atividade alfa do filme.

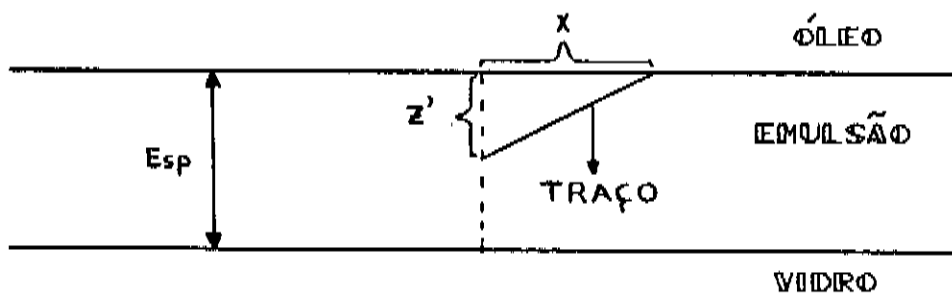
Desta forma, a utilização conjunta de filmes finos de urânio natural e de tório permite que se determine diretamente o valor de R_M , conhecida a razão tório-urânio do mineral a ser datado pelo MTF. O que significa que filmes de tório devem ser também estudados dentro do enfoque de se procurar limpar a dosimetria de neutrons do MTF de seus possíveis erros sistemáticos.

Em suma, de 1), 2), 3), 4) e 5) pode-se concluir que as características da dosimetria com filmes finos de urânio natural a colocam em uma posição importante em estudos que visem utilizar o MTF como um método independente de outros métodos de datação de minerais.

SOBRE A AUTO-ABSORÇÃO DE FRAGMENTOS DE FISSÃO PRODUZIDOS EM FILMES DE UO_2 COM ESPESSURAS $\leq 0,1 \mu$.

Os filmes finos utilizados neste trabalho têm espessuras $\leq 0,1 \mu$. Para se estudar a auto-absorção nestes filmes, com relação aos fragmentos de fissão neles produzidos, foram efetuadas medidas de alcances dos fragmentos de fissão numa emulsão que permaneceu justaposta a um filme de $0,1 \mu$ durante uma irradiação com neutrons.

A determinação do alcance de cada fragmento foi efetuada através das medidas ao microscópio das grandezas x , z' e E_{sp} , definidas abaixo:



Esta forma, o alcance de um fragmento de fissão, pode ser escrito como:

$$R = (x^2 + z'^2)^{1/2}$$

onde: $z = \frac{50\mu}{E_{sp}} z'$

As medidas dos alcances dos fragmentos nas emulsões foram efetuadas com aumento $12,5 \times 100$, a óleo. As medidas de x foram efetuadas com o auxílio de uma régua micrométrica acoplada à ocular do microscópio. As medidas de z' e E_{sp} foram efetuadas com

o auxílio de um micrômetro, acoplado ao microscópio.

O alcance médio por fragmento de fissão na emulsão K0, para o filme de $0,1\mu$, obtido neste trabalho foi de $(11,58 \pm 0,21)\mu$, que está um pouco abaixo do valor esperado, $(12,07 \pm 0,09)\mu$. O alcance esperado foi obtido através de medidas do alcance total (dois fragmentos) em emulsões do mesmo tipo carregadas com urânio (Hadler, 1979).

Para se explicar este resultado, será considerado o fato de que, para um filme de UO_3 com espessura de $0,1\mu$, há uma pequena redução no alcance dos fragmentos causada pela perda de energia dos fragmentos no interior do filme. Porém, como será visto mais à frente, este fato não prejudica a dosimetria com filmes de UO_3 , com espessuras $\leq 0,1\mu$.

Pode-se escrever o número de fragmentos que escapam de uma área unitária u na superfície de um filme de UO_3 , com espessura menor que o alcance médio por fragmento, R_{UO_3} , como (figura (A-1)):

$$N = \int_{V_1} A \frac{\cos\theta}{4\pi r^2} dV + \int_{V_2} A \frac{\cos\theta}{4\pi r^2} dV \quad (A-1)$$

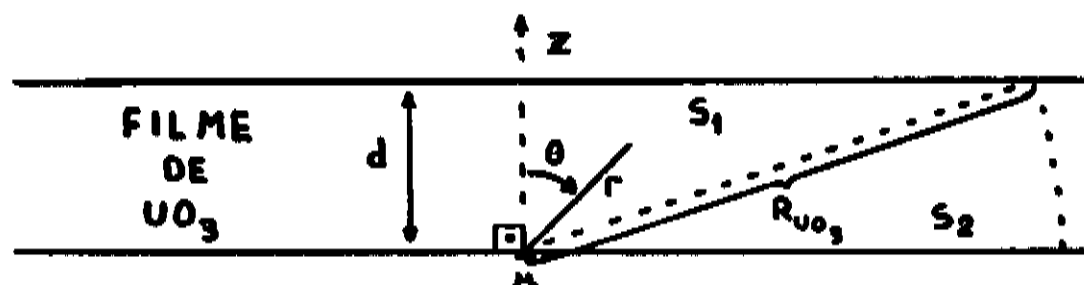
onde: A é o número de fissões ocorridas por unidade de volume do filme;

$\cos\theta/4\pi r^2$ é a probabilidade de, ocorrendo uma fissão a uma distância r de u e fazendo um ângulo θ com a normal, um dos fragmentos passe por u (Hadler, 1982);

V_1 e V_2 são os volumes gerados quando as áreas S_1 e S_2 (figura (A-1)) são giradas de 2π em torno de z .

Tomando-se a equação (A-1) em coordenadas esféricas tem-se que:

FIGURA (A-1): Nesta figura está esquematizado um corte transversal de um filme de UO_2 com espessura d . R_{UO_2} é o alcance médio por fragmento de fissão no UO_2 .



$$\begin{aligned}
N = & A \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{r=0}^{d/\cos\theta} \int_0^{\arccos(d/R_{\text{UO}_2})} \frac{\cos\theta}{4\pi r^2} \sin\theta r^2 dr d\theta d\varphi + \\
& + A \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{r=0}^{R_U} \int_{\arccos(d/R_{\text{UO}_2})}^{\pi/2} \frac{\cos\theta}{4\pi r^2} \sin\theta r^2 dr d\theta d\varphi \quad (\text{A-2})
\end{aligned}$$

onde A foi tomado constante ao longo do filme.

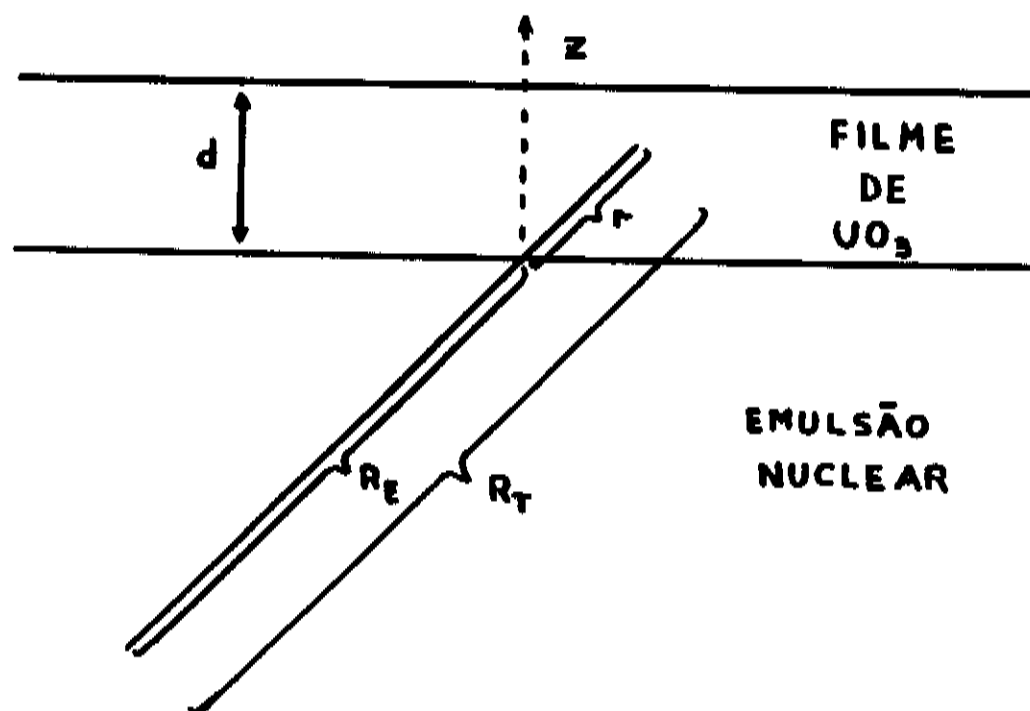
Através da equação (A-2) pode-se calcular o alcance médio dos fragmentos de fissão em uma emulsão justaposta a um filme de UO_2 durante uma irradiação com neutrons, o que será feito em seguida.

Medidas do alcance médio por fragmento de fissão no U_2O_8 (Segrè and Wiegand, 1946) indicam que para o UO_2 aquele alcance é de $\approx 14 \mu$. Desta forma, serão considerados como sendo iguais o alcance médio por fragmento na emulsão nuclear KO e no UO_2 . Levando-se em conta esta aproximação, pode-se escrever o alcance médio por fragmento de fissão em uma emulsão nuclear, justaposta a um filme de UO_2 , como (figura (A-2)):

$$\langle R_E \rangle = \bar{R}_T - \langle r \rangle$$

onde $\bar{R}_T$ é o alcance médio por fragmento de fissão em uma emulsão carregada com urânio e $\langle r \rangle$ é a distância média percorrida no filme pelos fragmentos de fissão, antes de penetrarem na emulsão.

FIGURA (A-2): Nesta figura está esquematizada a trajetória de um fragmento de fissão que escapa de um filme de UO_2 e penetra em uma emulsão nuclear justaposta a este filme. r é a distância percorrida pelo fragmento no filme e R_E e a distância percorrida pelo fragmento na emulsão.



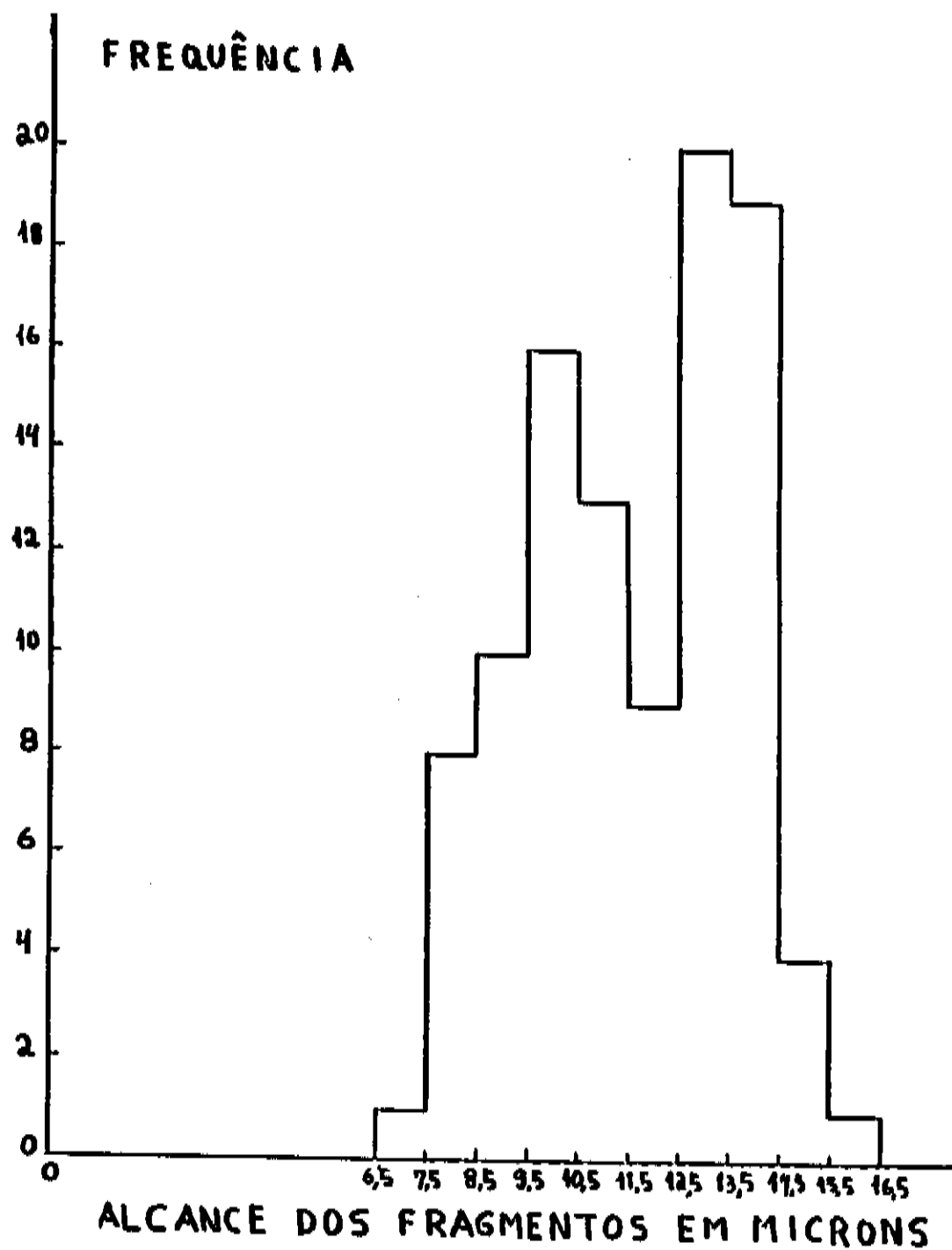
$$\begin{aligned}
\langle r \rangle = & \left\{ A \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{r=0}^{d/\cos\theta} \int_{\theta=0}^{\arccos(d/\bar{R}_T)} \frac{\cos\theta}{4\pi r^2} r \sin\theta r^2 dr d\theta d\varphi \right. \\
& + \left. A \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{r=0}^{\bar{R}_T} \int_{\arccos(d/\bar{R}_T)}^{\pi/2} \frac{\cos\theta}{4\pi r^2} r \sin\theta r^2 dr d\theta d\varphi \right\} / \\
& \left\{ A \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{r=0}^{d/\cos\theta} \int_{\theta=0}^{\arccos(d/\bar{R}_T)} \frac{\cos\theta}{4\pi r^2} \sin\theta r^2 dr d\theta d\varphi + \right. \\
& + \left. A \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{r=0}^{\bar{R}_T} \int_{\arccos(d/\bar{R}_T)}^{\pi/2} \frac{\cos\theta}{4\pi r^2} \sin\theta r^2 dr d\theta d\varphi \right\} \\
\rightarrow \langle r \rangle = & \frac{\frac{A d^2}{4} \ln(d/\bar{R}_T) + \frac{A d^2}{8}}{\frac{A d}{2} \left[1 - d/\bar{R}_T \right] + \frac{A}{4} \frac{d^2}{\bar{R}_T}} \quad (A-3)
\end{aligned}$$

Para $\bar{R}_T = 12,07 \mu$ e $d = 0,1 \mu$ se tem que $\langle r \rangle = 0,27 \mu$. Desta forma $\langle R_E \rangle = 11,8 \mu$. Este valor concorda com o resultado obtido neste trabalho, $\langle R_E \rangle = (11,8 \pm 0,2) \mu$.

Porém, apesar da auto-absorção de fragmentos de fissão no filme de $0,1 \mu$ acarretar uma pequena redução no alcance médio dos fragmentos na emulsão justaposta a ele, este fato não altera a eficiência de detecção da emulsão. Para se demonstrar isto, na figura (A-3) está mostrado o histograma dos alcances dos fragmentos, medidos ao microscópio.

Na figura (A-3) pode ser visto que, para um total de 100 fragmentos, praticamente não foram encontrados alcances menores que $7,5 \mu$. Como a emulsão nuclear foi observada com um grau de resolução que permite a observação de traços com alcances bem menores do que aquele, isto indica que a emulsão nuclear detecta

FIGURA (A-3): Histograma dos alcances de 100 fragmentos de fissão medidos em uma emulsão que foi justaposta a um filme de $0,1\mu$ durante uma irradiação com neutrons.



praticamente todos os fragmentos provenientes de filmes com espessuras de $0,1 \mu$.

Na figura (A-3), pode-se notar a presença de dois picos. O pico com alcances menores pode ser atribuído aos fragmentos mais pesados e o pico com alcances maiores aos fragmentos leves. A distribuição dos alcances em torno do pico com alcances menores é mais larga do que aquela do pico com alcances maiores. Porém, as duas distribuições possuem aproximadamente o mesmo número de traços. Este fato é também uma indicação de que todos os fragmentos provenientes do filme de $0,1 \mu$ foram detetados.

Para se testar o efeito da pequena diminuição do alcance dos fragmentos de fissão, provenientes de filmes com espessuras de $0,1 \mu$, na eficiência de detecção da muscovita, ϵ^F , pode-se utilizar os resultados mostrados na tabela (5-1). Nesta tabela são mostradas medidas de ρ_F e N_U^F efetuadas para filmes com espessuras variando de $0,0015 \mu$ a $0,10 \mu$, submetidos a uma mesma irradiação com neutrons.

Para um filme de UO_2 com espessura de $0,0015 \mu$ o valor de $\langle r \rangle$ calculado através da equação (A-3) é de $0,0071 \mu$. Desta forma, para um filme com esta espessura a auto-absorção de fragmentos praticamente não altera o valor de $\langle R_F \rangle$.

Da equação (4-2) pode-se escrever que:

$$\rho_F N_U^F = \epsilon^F C$$

onde C (o número de fissões por átomo de urânio) é constante para os filmes mostrados na tabela (5-1).

Levando-se em conta apenas as medidas de ρ_F/N_U^F efetuadas pelo observador A se obtém que:

1) Para filmes com espessuras de $0,0015 \mu$,

$$(\rho_F/N_U^F) = (8,15 \pm 0,12) \text{ fissões registradas/átomos de urânio}$$

ii) para filmes com espessuras de $0,10 \mu$.

$$\overline{(\rho_F / N_U^F)} = (8,16 \pm 0,21) \text{ fissões registradas/átomos de urânio}$$

Estes resultados indicam que a pequena auto-absorção observada no filme de $0,1 \mu$ não influencia a eficiência de detecção do detetor a ele acoplado (míca muscovita no caso da tabela (5-1)) , o que confirma a afirmação (Gold et al., 1968) de que o valor de ϵ^F pode ser considerado constante quando a espessura de um filme de urânio é pelo menos 100 vezes menor que o alcance dos fragmentos no filme.

Das considerações mencionadas neste apêndice, pode-se afirmar que a auto-absorção de fragmentos de fissão, ocorrida em filmes de UO_2 com espessuras $\leq 0,1 \mu$, não prejudica a utilização de tais filmes como dosímetros de neutrons.

REFERÊNCIAS:

- Bigazzi, G. (1981). The problem of the decay constant of ^{238}U . Nuclear Tracks, 5, 35-44.
- Bigazzi, G., J.C.Hadler, P.J.Iunes, M.Oddone, S.R.Paulo and G.Poupeau (1988a). On neutron dosimetry: comparison between different dosimetries. 6th International Fission Track Dating Workshop, Besançon (France), 5-9 sept. 1988, Abstracts, A1-3 (O).
- Bigazzi, G., J.C.Hadler and P.J.Iunes (1988b). Fission track D_s/D_i measurements in artificial glass at conditions free from fading and radiation. 6th International Fission Track Dating Workshop, Besançon (France), 5-9 sept. 1988, Abstracts, A1-3 (O).
- Bigazzi, G. and J.C.Hadler (1989). Errori di contaggio ed errori sistematici nella datazione con il metodo delle tracce di fissione. Bolletino della Societa Geologica Italiana, 108, 325-350.
- Bigazzi, G., J.C.Hadler, P.J.Iunes and M.Oddone (1989). Intercalibrazione di dosimetri per la misura del flusso neutronico termico applicata alle tracce di fissione. Rapporto Interno - Istituto di Geocronologia e Geochimica Isotopica, CNR - Pisa, Italy.
- Browne, E., J.M.Dairiki and R.E.Doebler (Principal authors) (1978). Table of Isotopes, Seventh edition, edited by C.M.Lederer and V.S.Shirley. John Wiley and Sons, Inc., New York, USA.
- Carpenter, B.S. and G.B.Reimer (1974). Calibrated glass standards for fission track use, SRM961, SRM962, SRM963 and SRM964. NBS special publication, 260-49. National Bureau of Standards, Washington, DC, USA.

Crowley, K.D. (1988). Neutron dosimetry in fission track analysis. Nuclear Tracks, 11, 237-243.

Erickson, E.F., S.G.Kaufmann and L.E.Pahis (1956). Recent neutron detection studies at Argonne National Laboratory. IRE Trans., Prof. Group Nucl. Sci., NS-3, 3.

Fleischer, R.L. and P.B.Price (1963). Charged particle tracks in glass. Journal of Applied Physics, 34, 2903-2904.

Fleischer, R.L. and P.B.Price (1964). Decay constant for spontaneous fission of ^{238}U . Physics Review, 133, 1B, B83-B84.

Fleischer, R.L., P.B.Price and R.M.Walker (1965). Neutron flux measurements by fission tracks in solids. Nuclear Science and Engineering, 22, 153-156.

Fleischer, R.L., P.B.Price and R.M.Walker (1975). Nuclear tracks in solids: Principles and applications. University of California Press, Berkeley, Calif., USA.

Gale, N.H., R.D.Beckinsale and A.J.Wadge (1979). A Rb-Sr hole rock isochron for the stockdale rhyolite of the English Lake District and a revised mid-paleozoic timescale. J. Geol. Soc. London, 136, 235-242.

Gale, N.H., R.D.Beckinsale and A.J.Wadge (1980). A discussion of a paper by McKevrow, Lambert and Chamberlain on the Ordovician, Silurian and Devonian Timescales. Earth and Planetary Science Letters, 51, 9-17.

Galliker, D., E.Hugentobler and B.Halm (1970). Spontane Kernspaltung von ^{238}U und ^{241}Am . Helv. Phys. Acta, 43, 593-606.

Green, P.F. and A.J.Hurford (1984). Thermal neutron dosimetry for fission track dating. Nuclear Tracks, 9, 231-241.

Gold, R., R.J.Armani and J.H.Roberts (1968). Absolute fission rate measurements with Solid State Track Recorders. Nuclear Science and Engeneering, 34, 13-32.

Gold, R., J.H.Roberts and F.H.Ruddy (1980). Advances in solid state recorder techniques for dosimetry and radiation damage measurements. Dosimetry Methods for Fuels, Cladding, and Strutural Materials. Proc. 3rd International ASTM - Euratom Symposium on Reactor Dosimetry, Ispra, Italy, 1-5 oct., 1979 EUR 6813, 1172-1179.

Hadler, J.C. (1979). Estudo sobre traços anômalos em emulsões carregadas com urânio. Master Thesis. Universidade Estadual de Campinas. Campinas-SP, Brazil.

Hadler, J.C., C.M.G.Lattes, A.Marques, M.D.D.Marques, D.A.B.Serra and G.Bigazzi (1981). Measurement of the spontaneous fission desintegration constant of U-238. Nuclear Tracks, 5, 45-52.

Hadler, J.C. (1982). Medida da constante de desintegração do U-238 por fissão espontânea. Ph.D. Thesis. Universidade Estadual de Campinas. Campinas-SP, Brazil.

Holden, N.E. (1981). The uranium half-lives: A critical review. Brookhaven National Laboratory, BNL-NCS-51320. New York, USA.

Hurford, J.H. and P.F.Green (1981). A reappraisal of neutron dosimetry and uranium-238 λ_f values in fission track dating. Nuclear Tracks, 5, 53-61.

Hurford, J.H. and P.F.Green (1982). A user's guide to fission track dating calibration. Earth and Planetary Science Letters, 59, 343-354.

I.A.E.A. (International Atomic Energy Agency) (1970). Neutron fluence measurements. Technical Reports Series No 107, Vienna, 184 pp.

- I.C.R.U. (International Commission on Radiation Units and Measurements) (1969). Neutron spectra and Kerna. ICRU Report, 13, Washington, D.C., 57pp.
- Iunes, P.J. (1989). SSNTD: A distribuição espacial dos traços nos detetores, um teste estatístico. Exame de Qualificação para o Mestrado, IFGW-Unicamp, Campinas-SP, Brazil.
- Kirn, F.S. (1963). Neutron detection with an absolute fission counter. Proceedings of I.A.E.A. Symposium on Neutron Dosimetry, Vienna, II, 497-512.
- McKevrow, W.S., R.S.Lambert and V.E.Chamberlain (1980). The Ordovician, Silurian and Devonian Timescales. Earth and Planetary Science Letters, 51, 1-8.
- Price, P.B. and R.M.Walker (1982a). Observation of fossil particle tracks in natural micas. Nature, 196, 732-734.
- Price, P.B. and R.M.Walker (1982b). Observation of charged particle tracks in solids. Journal of Applied Physics, 33, 3400-3408.
- Price, P.B. and R.M.Walker (1982c). Chemical etching of charged particle tracks in solids. Journal of Applied Physics, 33, 3407-3412.
- Price, P.B. and R.M.Walker (1982d). A new track detector for heavy particle studies. Physics Letters, 3, 113-115.
- Price, P.B. and R.M.Walker (1983). Fossil tracks of charged particles in mica and the age of the minerals. Journal of Geophysical Research, Vol. 68, No 16, 4847-4862.

Roberts, J.H., F.H.Ruddy and R.Gold (1984). Optical efficiency for fission fragments track counting in muscovite solid state track recorders. Nuclear Tracks, 8, 365-369.

Ruddy, F.H. (1986). Neutron dosimetry in high intensity fields: a review. Nuclear Tracks and Radiation Measurements, Vol. 11, No. 4/5, 197-200.

Ruddy, F.H. and J.H.Roberts (1986). Solid state track recorder fission rate measurements at high neutron fluence and high temperature. Nuclear Tracks and Radiation Measurements, Vol. 11, No. 4/5, 193-196.

Schreurs, J.W.H., A.M.Friedman, D.J.Rokop, M.W.Hair and R.M.Walker (1971). Calibrated U-Th glasses for neutron dosimetry and determination of uranium and thorium concentrations by the fission track method. Radiation Effects, 7, 231-233.

Segrè, E. and C.Wiegand (1948). Stopping power of various substances for fission fragments. Physics Review, 70, No. 11, 808.

Storzer, D. and G.A.Wagner (1982). The application of fission track dating in stratigraphy: a critical review. In: G.S.Odin (Editor), Numerical Dating in Stratigraphy. Wiley, Chichester, 199-221.

Suzuki, T. and K. Tomura (1988). Neutron dosimetry for fission track dating: A inter-reactor comparison. Nuclear Tracks and Radiation Measurements, Vol. 15, No. 1/4, 487-490.

Tagami, T. and S.Nishimura (1989). Intercalibration of thermal neutron dosimeters glasses NBS-SRM612 and Corning 1 in some irradiation facilities: a comparison. Nuclear Tracks and Radiation Measurements, Vol. 16, No 1, 11-14.

- Thiel, K. and W.Herr (1976). The ^{238}U spontaneous fission decay constant redetermined by fission tracks. Earth and Planetary Science Letters, 30, 50-58.
- Van den Haute, P., R. Jonckheere and F. De Corte (1988). Thermal neutron dosimetry for fission track dating with metal activation monitors: a reinvestigation. Chemical Geology (Isotope Geoscience Section), 73, 233-244.
- Wagner, G.A., G.M.Reimer, B.S.Carpenter, H.Faul, R.Van der Linden and R.Giybels (1975). The spontaneous fission rate of U-238 and fission track dating. Geochimical and Cosmoquimical Acta, 39, 1279-1286.
- Wall, T. (1970). A measurement of the fission track recording efficiency of mica. Australian Atomic Energy Commission, Report TM 541.
- Wall, T. (1986). Use of alternative neutron dosimetry standard for fission track dating. Nuclear Tracks, 12, 887-890.
- Westcott, C.H. (1957). Effective cross section values for well moderated thermal reactor spectra. Atomic Energy of Canada Limited. AECL report 407.
- Westcott, C.H., W.H.Walker and T.K.Alexander (1958). Effective cross-sections and cadmium ratios for the neutron spectra of thermal reactors. Proceedings of International Conference on Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, 17, 70-89.
- Westcott, C.H. (1960). Effective cross-section values for well-moderated thermal reactor spectra. Atomic Energy of Canada Limited, (3rd edition corrected). AECL report 1101.
- Yagoda, H. (1949). Radioactive measurements with nuclear emulsions. John Wiley and Sons, New York, USA.