



AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**AVALIAÇÃO EXPERIMENTAL DO FLUXO DE NEUTRONS DE
UM IRRADIADOR COM FONTES DE AmBe E SUA
POSSIBILIDADE DE USO EM ANÁLISE DE MATERIAIS**

RUY BARROS DE LIMA

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

**Orientador:
Dr. Tufic Madi Filho**

**São Paulo
2003**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia Associada à Universidade de São Paulo

**AVALIAÇÃO EXPERIMENTAL DO FLUXO DE NÊUTRONS DE UM
IRRADIADOR COM FONTES DE AmBe E SUA POSSIBILIDADE
DE USO EM ANÁLISE DE MATERIAIS.**

RUY BARROS DE LIMA



**Dissertação apresentada como parte
dos requisitos para obtenção do Grau
de Mestre na Área de Tecnologia
Nuclear**

**Orientador:
Dr. Tufic Madi Filho**

São Paulo

2003

A meus pais, Manoel (in memorian)
e Judith

AGRADECIMENTOS

- Ao CENTRO DE ENERGIA NUCLEAR (CEN) do INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES – IPEN – SP – pela utilização das instalações e apoio material que tornaram possível a realização deste trabalho.
- Ao Dr. Tufic Madi Filho pelo apoio, incentivo e orientação.
- À minha mãe, Judith de Moraes Lima, pelo seu carinho e incentivo.
- À jornalista Genha Auga pelo incentivo, paciência e apoio na formatação dos textos.
- À Dra. Cibele Bugno Zamboni pela atenção, colaboração e valiosas críticas e sugestões.
- Ao Dr. Admir dos Santos pelo apoio e sugestões no cálculo das secções de choque.
- Ao Dr. Helio Yoriyaz pela colaboração na aplicação do Método Monte Carlo.
- Ao Ms. Antonio Carlos Hernandes pela colaboração na aplicação do Método Monte Carlo.
- À Ms. Graciete P. Simões pela contribuição na determinação das secções de choque.
- Ao Dr. Ulysses D’Utra Bitelli pelas sugestões na determinação da razão de cádmio.
- Ao Sr. Sabino pela dedicação na confecção de alguns acessórios indispensáveis na utilização do irradiador.
- Aos colegas, do Grupo Experimental do CENTRO DE ENERGIA NUCLEAR (CEN), Laura Cristina Oliveira e Guilherme Soares Zahn pela colaboração na irradiação de materiais e determinação de resultados e a todos que direta e indiretamente contribuíram para a realização deste trabalho.

**AVALIAÇÃO EXPERIMENTAL DO FLUXO DE NÊUTRONS DE UM
IRRADIADOR COM FONTES DE AmBe E SUA POSSIBILIDADE
DE USO EM ANÁLISE DE MATERIAIS**

Ruy Barros de Lima

RESUMO

Este trabalho teve por objetivo determinar o fluxo de nêutrons subcádmio (Térmico) e sobre-cádmio (Epitérmicos e Rápido) do irradiador, do Laboratório de Experimentação Nuclear do Centro de Energia Nuclear (CEN) do Instituto de Pesquisas Energética e Nucleares – IPEN, e verificar a possibilidade de sua utilização para Análise de Ativação por Nêutrons (NAA) pelo método absoluto. A quantificação do fluxo de nêutrons foi realizada indiretamente usando detectores de ativação, pela técnica de ativação de folhas de ouro nuas e cobertas com cádmio. Foram determinados os fluxos de nêutrons para duas situações: (a) com bloco de polietileno de 5,0 cm de espessura e (b) sem o bloco de polietileno. A quantificação dos elementos presentes nas amostras irradiadas foi obtida após a determinação experimental do fluxo de nêutrons incidente na posição de irradiação da amostra. Foram determinados valores de fluxo ao longo do eixo do irradiador. Foram analisados alguns materiais que apresentaram boa concordância com valores de referência.

EXPERIMENTAL EVALUATION OF THE NÊUTRONS FLUX OF A IRRADIADOR WITH AmBe SOURCES AND ITS POSSIBILITY OF USE IN MATERIALS ANALYSIS

ABSTRACT

Ruy Barros de Lima

This work had as a target to determine the irradiator thermal and over-cadmium (epithermal and fast) nêutrons flux , of the Nuclear Experimental Laboratory of the Nuclear Energy Center (CNEN) – IPEN, and the possibility of its use for Neutron Activation Analysis (NAA) by the absolute method. The nêutrons flux quantification was performed indirectly by the gold naked and cadmium-covered foils activation technique. The nêutrons flux was determined for two situations: (a) with polyethylene block 5.0 cm thick and (b) without the polyethylene block. The quantification of the elements present in the irradiated samples was obtained after the experimental determination of the incident nêutrons flux in the irradiation position of the sample. Flux values along the irradiator axis were determined. Some materials were analyzed, presenting good agreement with reference values.

SUMÁRIO

	Página
1 – INTRODUÇÃO	01
1.1 Classificação das fontes de nêutrons	10
1.1 Objetivo do trabalho	11
2 – MATERIAIS E MÉTODOS.	12
2.1 Equipamentos e materiais utilizados na irradiação	12
2.1.1 Irradiador	13
2.1.2 Caracterização do irradiador	15
2.1.3 Vantagens e desvantagens no uso do irradiador	16
2.1.4 Detector HPGe, eletrônica associada e esquema de blindagem	16
2.1.5 Fontes utilizadas	18
2.1.6 Termalização dos nêutrons	18
2.1.7 Posicionamento da Amostra no Irradiador	20
2.1.8 Medida da atividade induzida	20
2.2 Eficiência	21
2.3 Cálculo da atividade induzida por nêutrons	21
2.4 Medidas para a determinação do fluxo de nêutrons	23
2.4.1 Fatores de correção para a determinação do fluxo de nêutrons	24
3. RESULTADOS	26
3.1 Eficiência do sistema de medidas gama.	26
3.2 Medidas para determinação do fluxo de nêutrons do Irradiador	28
3.3 Comparação da análise dos constituintes com a literatura	35
4. DISCUSSÃO	36
5. CONCLUSÃO	40

APÊNDICE I	42
APÊNDICE II	46
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	47

1 INTRODUÇÃO

Um sistema gerador de nêutrons é um tipo de instalação importante, uma vez que essa partícula vem sendo utilizada em análise de materiais e fornecendo dados significativos e precisos nas várias áreas onde é aplicado. Essa instalação poder ser desde um reator nuclear até pequenos sistemas utilizando fontes de nêutrons.

Na industria pode-se avaliar o desgaste e durabilidade de máquinas aplicando o método de ativação com nêutrons em produtos resultantes do efeito tribológico⁽¹⁾ (efeito tribológico corresponde à fricção entre peças de uma engrenagem em movimento, cujo produto resultante desse efeito é a limalha). Técnicas como espalhamento de nêutrons em pequenos ângulos, reflectometria e radiografia, vem sendo usadas para análise de materiais, tais como: (a) análise de textura e estresse de materiais; (b) medida de estresse intenso dentro de metal e cerâmica; (c) determinação de estratos superficiais; (d) na análise de lâminas de turbinas⁽²⁾.

O método de análise por ativação com nêutrons (NAA)^(3,4) é uma técnica não destrutiva altamente sensível para a determinação da composição elemental em amostras. Tem sido particularmente útil na determinação simultânea de elementos químicos em amostras complexas de diversas naturezas, tais como: de alimentos, de amalgamas, biológicas, do meio ambiente, isto é, de vários produtos nos quais seja necessário conhecer seus constituintes. O método consiste basicamente em submeter o material a ser analisado a um fluxo de nêutrons gerados por reatores, aceleradores ou por fontes radioativas, e após a irradiação do material realizar a espectrometria gama da radiação induzida identificando e quantificando, desse modo, os componentes da amostra. É um método aparentemente simples, mas exige

conhecimento do tempo de irradiação em função do material a ser analisado, do fluxo de nêutrons, da calibração, das condições operacionais do sistema de medidas e do procedimento da análise espectral do decaimento radioativo, além de alguns parâmetros inerentes ao nuclídeo identificado.

Esse método vem sendo utilizado há décadas, numa diversificação de análises em variedades de amostras de diversas procedências.

A técnica da Análise por Ativação com nêutrons (NAA) é realizada, em grande parte, com amostras de pequenas massas, submetidas a um elevado fluxo de nêutrons em centrais nucleares. Essa técnica também pode ser empregada em outras instalações que utilizam aceleradores ou fontes radioativas emissoras de nêutrons tais como: AmBe, PuBe e Cf-252.

ÇEITNER, M.A. et al.⁽³⁾, utilizaram a análise de ativação por nêutron instrumental (INAA) e a ativação cíclica por nêutron instrumental (INAAC) para a determinação do fluxo de nêutrons térmicos em folhas de metais e amostras em pó. As folhas e as amostras foram irradiadas no Centro de Treinamento e Pesquisa Nuclear em Ankara Turquia, num sistema com três fontes de AmBe de 592 GBq (16Ci) cada. O valor médio do fluxo de nêutrons térmicos na posição de irradiação, obtidos pelos pesquisadores, foi da ordem de $3,55 \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

KHELIF R., et al.⁽⁴⁾ com o propósito de determinar a taxa de concentração de Ca/Si em amostras de concreto, pelo método comparativo, usaram a técnica de análise de ativação por nêutrons pela medida de raios gama pronto (PGNAA), utilizando uma fonte de nêutrons de AmBe de 185

GBq (5Ci de Am). O Silício e o Cálcio foram também analisados por método químico em amostras de concreto cimento e areia e os resultados apresentaram boa concordância com os resultados da concentração de Si/Ca determinada pela técnica de análise de ativação por nêutrons pela medida de raios gama pronto (PGNAA).

BORSARU M., JENCY Z.⁽⁵⁾, com o objetivo de analisar, em laboratório, amostras de carvão para a indústria australiana, aplicaram a técnica de análise por ativação com nêutrons pela medida de raios gama pronto (PGNAA), utilizando uma fonte de Cf-252. As medidas da radiação gama induzida nas amostras foram realizadas com detector BGO (Bismuto, Germânio e Oxigênio) numa geometria 4π , e os conteúdos do carvão como a cinza, Fe, Si e Al, foram determinados com boa precisão.

SILVA, A.S., CRISPIM, R.V.⁽⁶⁾, com o propósito de desenvolver um sistema nêutronográfico transportável, para aplicação em ensaios não destrutivos, utilizaram uma fonte de Cf-252 por apresentar alta atividade específica ($2,3 \cdot 10^{12} \text{ n s}^{-1} \text{ g}^{-1}$), baixa emissão de radiação gama e alto fluxo de nêutrons térmicos, para obter imagens neutrongráficas com filmes radiográficos. O sistema utilizado é composto por uma fonte de Cf-252 e um colimador divergente.

EISSA, E. A. et al.⁽⁷⁾, utilizaram a técnica de análise de ativação por nêutrons em amostras de fosfatos de minérios do Egito para identificar e determinar a concentração elemental de diversos elementos. As amostras pesando 350g foram irradiadas no Centro de Pesquisa Nuclear, AEA, do Egito, Cairo, com duas fontes de PuBe de 92,5 GBq (2,5 Ci) cada sob um

fluxo de nêutrons térmicos de aproximadamente $8,2 \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ e a medida da espectrometria gama foram realizadas utilizando um detector HPGe.

MUKHERJEE, B.⁽⁸⁾, com o propósito de calibrar dosímetros e monitorar a energia média de nêutrons rápidos, desenvolveu um equipamento para irradiar materiais utilizando uma fonte de 37TBq (1,0 Ci) AmBe e água leve como moderador. O desenvolvimento do equipamento e as irradiações realizadas ocorreram em Camperdown, Austrália e fizeram parte de um programa de segurança e saúde.

Para analisar o espectro de raios gama emitidos por fontes de nêutrons e calcular suas características dosimétricas, VEGA, H. R.⁽⁹⁾, et al., utilizaram fontes de PuBe com atividade de $1,85 \cdot 10^{11} \text{ Bq}$ e AmBe com atividade de $3,7 \cdot 10^9 \text{ Bq}$ (as atividades especificadas são dos emissores alfa). Os espectros foram medidos, utilizando-se um detector de NaI(Tl), e as análises da espectrometria gama, ocorreram na Universidade Autônoma de Zacatecas, México.

A análise de ossos tem uma razão especial, pois os íons de cálcio magnésio e fósforo que são fundamentais no metabolismo, atuam sempre em conjunto com interações recíprocas nas concentrações. Os ossos, ao sofrerem renovação também contribuem no fornecimento desses íons para o metabolismo. A maior concentração de cálcio, magnésio e fósforo está no esqueleto dos mamíferos que serve como reservatórios para estes minerais. A descalcificação dos ossos pode originar algumas doenças como a osteoporose (aumento anormal da porosidade dos ossos), a osteomalácia aguda (ossos

moles) e a osteogênese imperfeita (ocorre acima de 55 anos causando dores, imobilidade e calcificação de tecidos moles), dentre outras⁽¹⁰⁾.

A verificação de elementos em ossos, indicadores de doenças podem ser determinados por meio da técnica de análise instrumental por nêutrons (INAA). SAIKI et al.⁽¹¹⁾ utilizaram essa técnica com curta e longa irradiações em amostras de ossos de costelas selecionadas em autópsias de vítimas de acidentes. Essas irradiações, com fluxo de nêutrons térmicos da ordem de $10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ocorreram no reator IEA-R1 do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN). A análise espectral da concentração dos elementos foi realizada por meio do método comparativo.

A ocorrência de doenças pulmonares causadas pelo pó de carvão é verificada pela ocorrência de determinados metais pesados nos pulmões, nem sempre revelados por exames de raios-X (RX). SAIKI et al.⁽¹²⁾ aplicaram a análise instrumental de ativação por nêutron (INAA), em amostras de pulmões de mineiros obtidas de dois grupos de homens adultos expostos ao pó de carvão no curso de suas profissões. Essas irradiações, com fluxo de nêutrons térmicos da ordem de $10^{12} \text{ n cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ocorreram no reator IEA-R1 do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN). A análise espectral da concentração dos elementos foi realizada por meio do método comparativo.

A ingestão não controlada de qualquer tipo de alimento traz complicações que se manifestam em vários órgãos. Diagnósticos tem revelado, que a maior incidência de concentração de elementos químicos ocorre mais em determinados órgãos do que em outros. No caso de alimentos onde há elementos traço tóxicos, a maior quantidade é retida pelos rins.

Parcela destes é eliminada pela urina e parte não excretada pode ocasionar lesões nos órgãos, como por exemplo, o seu mau funcionamento⁽¹³⁾. ZAMBONI, B.C, et al⁽¹⁴⁾, fizeram um estudo para determinação do efeito toxicológico pela ingestão de urânio por animais, utilizando a técnica de análise por ativação com nêutrons. Amostras de urina de cachorros da raça “Beagle” alimentados com ração dopada com urânio foram objeto desse estudo. Essas amostras foram irradiadas no reator IEA-R1 do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN/SP com um fluxo de nêutrons térmicos da ordem de $10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

A identificação e quantificação de elementos traço em líquens, para posterior uso na avaliação da poluição ambiental, pode ser determinada pela técnica de análise instrumental de ativação por nêutrons (INAA). SAIKI et al.⁽¹⁵⁾, utilizaram essa técnica para análise elemental em amostras de cascas de árvores extraídas no campus da Universidade de São Paulo e na cidade de Ibiúna. Submetendo as amostras a irradiações longa e breve, sob um fluxo de nêutrons térmicos da ordem de $4 \cdot 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ no reator IEA-R1 do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN).

Os solos que desempenham papel fundamental no crescimento de plantas atuam como fonte de nutrientes os quais são considerados essenciais para a sustentação de organismos e seus desenvolvimentos normais. O excesso ou falta de nutrientes podem resultar na inibição do desenvolvimento. Os nutrientes apresentam uma faixa de concentração ideal à vida dos organismos e não são ecologicamente substituíveis. Os micros elementos, em especial, tornam-se tóxicos quando presentes em excesso, desequilibrando o balanço energético.

PINTO et. al.⁽¹⁶⁾, utilizando técnicas de fluorescência de raios X (R-X) e a técnica de análise instrumental por nêutrons ativação (INAA), identificaram e quantificaram os componentes fundamentais em amostras de solos da mata atlântica, do estado de Minas Gerais. A irradiação das amostras ocorreu num reator - TRIGA IPR R1 localizado no CNEN-BH, sob um fluxo de nêutrons térmicos, na posição de irradiação da ordem de $6,6 \cdot 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. A análise espectral dos resultados foi feita pelo método comparativo.

VEADO et al.⁽¹⁷⁾, aplicaram a técnica de análise instrumental por ativação com nêutrons (INAA) para identificar e quantificar elementos em amostras de solo, que poderiam estar intoxicando animais da região e causando doenças nervosas. Foram analisadas também amostras de leite e fezes de gados criados na zona rural da cidade Curvelo no estado de Minas Gerais. As amostras coletadas em fazendas próximas ao Rio das Velhas durante o período de chuvas e inundações e irradiadas num reator - TRIGA MARK I IPR – RI, sob um fluxo de nêutrons da ordem de $6,6 \cdot 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

JONAH S.A., WILLIAMS, I.S.⁽¹⁸⁾, determinaram as concentrações de alguns elementos nutrientes, em chá comercial da Nigéria e de outros países, utilizando a técnica de análise de ativação por nêutron instrumental (INAA). As amostras foram irradiadas com um fluxo de $3,0 \cdot 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, no reator MNSR do Centro de Treinamento e Pesquisa em Energia em Zaria, Nigéria, e no Instituto de Energia Atômica da China (CIAE), num reator tipo MNSR, com mesmo fluxo. A proporção da concentração de potássio e cálcio (K/Ca) foi alta em todas as amostras irradiadas, sugerindo que o cultivo foi feito em solos ricos em potássio.

MAJOLA, J; ZIKOVSKY, L.⁽¹⁹⁾, com o propósito de verificar se elementos tóxicos estavam presentes em amostras de águas minerais, utilizaram a análise de ativação por nêutron instrumental (IAAN). Foram encontrados os seguintes elementos: Al, Ba, Br, Cl, Cu, I, In, K, Mg, Mn, Na, Sb, Sn, Sr, U, V e Zn, em partes por bilhão, (ppb), em diversas amostras de águas minerais do Canadá e de outros países, vendidas no comércio de Montreal. As amostras foram irradiadas num reator “SLOWPOKER” com um fluxo de nêutrons da ordem de $5 \cdot 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

WU D., LANDSBERG S; LARSON, M.S.⁽²⁰⁾, com o objetivo de analisar metais tóxicos em vários componentes do cigarro aplicaram a análise por ativação por nêutron instrumental (INNA) para determinar a concentração desses metais no tabaco, tocos de cigarro, filtros e papel de cigarro. Foram identificados, vários metais pesados, tais como: As, Cd, K, Sb e Zn em cada uma das amostras dos quinze tipos analisados. As amostras foram irradiadas num reator 1.5 MW TRIGA na Universidade de Illinois, sob um fluxo de nêutrons da ordem de $10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

BODE, P.⁽²¹⁾ utilizou a análise instrumental de ativação por nêutrons (INAA), com o objetivo de determinar a composição elemental em materiais com grandes massas. Analisou uma amostra de uma rocha de urânio de 2Kg de massa. A amostra foi submetida a um fluxo de nêutrons de aproximadamente $3 \cdot 10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, na Universidade de Tecnologia de Delft, Holanda.

HULT, M.; FESSLER, A.⁽²²⁾, com a finalidade de determinar a proporção de Sr/Ca em ossos humanos utilizaram a análise de ativação com nêutrons rápidos (FNAA) na determinação dos elementos. Pedacos de ossos de costelas, grandes e pequenos, foram irradiados sob um fluxo de aproximadamente $10^7 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ com energia média de 16 MeV, produzidos no acelerador Van de Graaff do Laboratório Van de Graaff do Instituto para Materiais de Referência e Medidas (IRMM) em Geel, Bélgica. Simulações pelo método Monte Carlo e as medidas mostraram que as reações nucleares $^{88}\text{Sr} (n, 2n) ^{87\text{m}}\text{Sr}$ e $^{44}\text{Ca} (n, p) ^{44}\text{K}$ são bastante úteis para alcançar a finalidade proposta. As medidas foram realizadas utilizando dois detectores HPGe e a análise dos resultados por espectrometria gama.

1.1 Classificação das fontes de nêutrons.

Os nêutrons são classificados de acordo com sua energia⁽³⁵⁾, em:

- . **Térmicos** – nêutrons com energia menor que 0,5eV velocidade correspondente ao movimento dos átomos e moléculas em temperatura ambiente. Da alta velocidade são levados ao nível térmico por moderação em material hidrogenado. Os nêutrons térmicos tem energia mais provável em torno de 0,025eV.
- . **Intermediário ou epitérmico** – nêutrons com energias entre 0,5eV e 10keV.
- . **Nêutrons rápidos** – nêutrons com energias entre 10KeV e 20MeV ou superior.

Para a análise por ativação com nêutrons são utilizados reatores nucleares, aceleradores e fontes de nêutrons⁽¹⁴⁾. As tabelas 1.1, 1.2 e 1.3 apresentam vários tipos de fontes de nêutrons e suas energias de emissão.

Tabela 1.1 – Fontes de nêutrons, reação $\text{Be}(\alpha, n)^{(24)}$

Radioisótopo	Energia Média dos nêutrons (MeV)
^{226}Ra	3,6
^{210}Po	4,3
^{239}Pu	4,5
^{241}Am	4,0
^{238}Pu	4,0
^{242}Cm	4,0

Tabela 1.2 – Fontes fotoneutrônicas, reação $(n, \gamma)^{(24)}$

Radionuclídeo	Alvo	Energia do Nêutron (MeV)
^{24}Na	Be	0,20
	D ₂ O	0,80
^{56}Mn	Be	0,20
	D ₂ O	0,20
^{72}Ga	Be	0,20
	D ₂ O	0,13
^{88}Y	Be	0,16
	D ₂ O	0,30
^{24}Sb	Be	0,02
	^{140}La	Be
D ₂ O		0,15

Tabela 1.3 - nêutrons produzidos em aceleradores $^{(24)}$

Reação Nuclear	Energia Média dos nêutrons
$\text{D}(d, n)^3\text{He}$	2,448 MeV
$\text{T}(d, n)^3\text{He}$	63,9 keV
$\text{T}(d, n)^4\text{He}$	14,05 MeV
$\text{Be}(\alpha, n)^{12}\text{C}$	5,26 MeV
$^{12}\text{C}(d, n)^{13}\text{N}$	3,4 keV
$^{13}\text{C}(d, n)^{16}\text{O}$	2,07 MeV
$^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$	29,9 keV

1.2 OBJETIVO DO TRABALHO

Este trabalho teve por objetivo a avaliação experimental do fluxo de nêutrons de um Irradiador que utiliza duas fontes de AmBe de 592 GBq cada, e verificar sua possibilidade de uso em análise de materiais, sem a necessidade de uso de padrões de referência. A determinação do fluxo de nêutrons foi realizada indiretamente usando detectores de ativação, pela técnica de ativação de folhas de ouro nuas e cobertas com cádmio. Foi utilizada a técnica de ativação, neutrônica, absoluta para a quantificação dos elementos presentes nas amostras irradiadas.

2. MATERIAS E MÉTODOS.

2.1 Equipamentos e materiais utilizados na irradiação

Neste trabalho os equipamentos e materiais utilizados foram:

- Irradiador: arranjo experimental de pequeno porte que opera com fonte de nêutrons de AmBe.
- Detector HPGe, ORTEC- GEM 20200.
- Equipamentos eletrônicos: (a) pré-amplificador ORTEC, Modelo 142A, (b) fonte de alta tensão ORTEC, Modelo 459; (c) amplificador ORTEC, Modelo 570; (d) multicanal - Spectrum Master ORTEC, Modelo 919 e Computador, (e) Osciloscópio Tektronix, Modelo TDS, 220.
- Blindagem de chumbo.
- Duas fontes de nêutrons de AmBe de atividade 592GBq de Amerício (¹⁶Ci) cada.
- Folhas de metais, de diversas espessuras, fabricante GoodFellow.
- Padrão de Bronze de 133,98g, NBS standard reference material.
- Bloco de cobre de 3,5g disponível no mercado.
- Liga para prótese dentária, de Níquel/Cromo e Cromo/Cobalto disponíveis no mercado.
- Sal Comercial para alimentação.

2.1.1 Irradiador

O Irradiador é um arranjo experimental de pequeno porte que opera com fontes de nêutrons, tem forma de um cilindro de aproximadamente 120cm de comprimento por 85cm de diâmetro. Possui um tubo coaxial ao longo de seu comprimento por onde são colocadas as amostras a serem irradiadas e duas cavidades cilíndricas, diametralmente opostas, onde são colocados cilindros de polietileno com as fontes de AmBe. Está Instalado no Laboratório de Experimentação Nuclear (LEN) do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) e desenvolvido para uma utilização de multiproposta, Figura 2.1. As figuras 2.2 e 2.3 apresentam maiores detalhes do Irradiador.

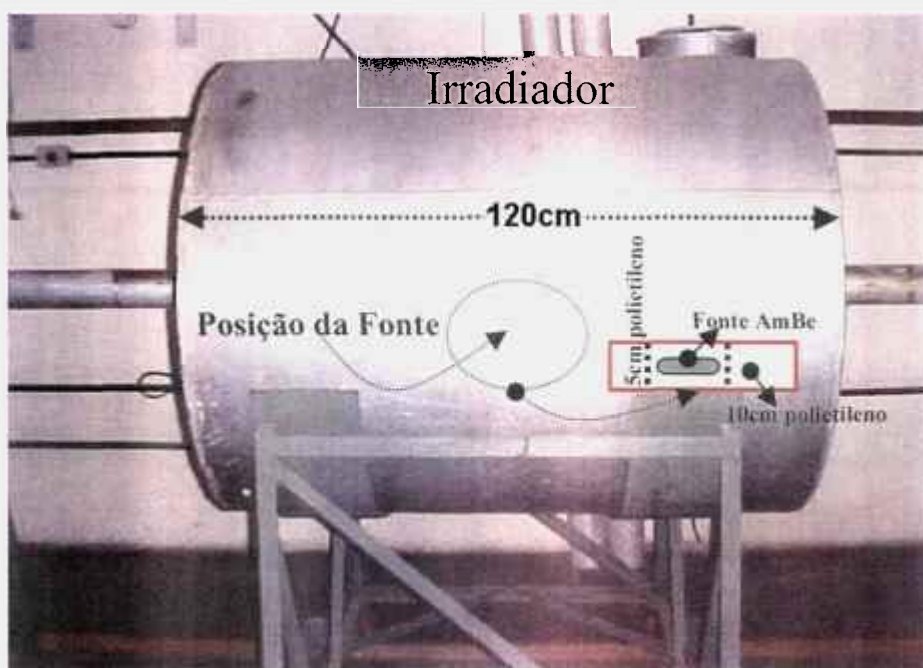


Figura 2.1 – Foto do Irradiador com detalhes da posição e da fonte de nêutrons

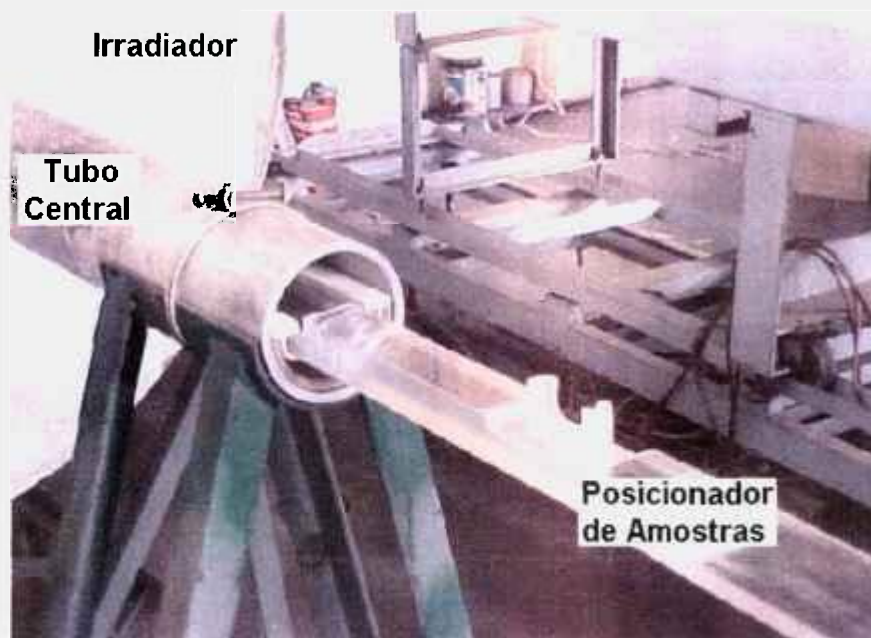


Figura 2.2 – Foto do Irradiador com detalhe do posicionador de amostras

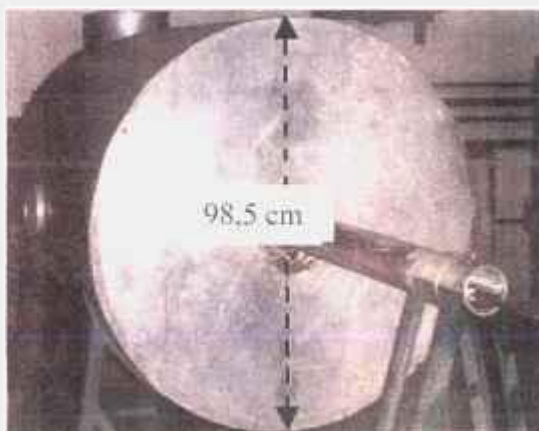


Figura 2.3 – Foto Frontal do Irradiador

2.1.2 Caracterização do Irradiador

Neste trabalho, o fluxo de nêutrons do Irradiador foi determinado pelo método indireto de detectores de irradiação, usando folhas de ouro com e sem cobertura de cádmio. Foi empregado o método absoluto de análise por ativação na determinação da composição de algumas amostras, com o objetivo de verificar sua funcionalidade para análise de materiais.

Na aplicação do método absoluto de análise por ativação, diversas constantes nucleares foram utilizadas e os valores dessas constantes são tabelados e, os utilizados neste trabalho são apresentados na Tabela 2.1.

Tabela 2.1⁽²⁵⁾ – Elementos utilizados neste trabalho, reações, secção de choque, energia e meia-vida dos produtos das reações.

Elemento	Reação de ativação nuclear	Secção de Choque σ (barn)	Meia Vida $T_{1/2}$	Energia Gama de interesse (keV)
Au	$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	98,659	2,69 d	411
Cu	$^{63}\text{Cu}(n, \gamma)^{64}\text{Cu}$	4,506	12,8 h	511
Al	$^{27}\text{Al}(n, \gamma)^{28}\text{Al}$	0,231	2,27 min	1778
Na	$^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$	0,530	15,03 h	1368
Cl	$^{37}\text{Cl}(n, \gamma)^{38}\text{Cl}$	43,60	37,3 min	1642
Ni	$^{60}\text{Ni}(n, p)^{60}\text{Co}$	2,1 mb	5,27 a	1173 1333
Co	$^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$	37,18	5,27 a	1173 1333

2.1.3 Vantagens e Desvantagens no uso do Irradiador

Vantagens	Desvantagens
<ul style="list-style-type: none">➤ Arranjo experimental de pequeno porte;➤ Facilidade de manuseio;➤ Baixo custo operacional;➤ Opera com fontes de nêutrons de fluxo constante;➤ Irradiação de amostras de grande massa;➤ Controle da termalização do fluxo de nêutrons.	<ul style="list-style-type: none">➤ Baixo fluxo de nêutrons.➤ Maior tempo de irradiação.

2.1.4 Detector HPGe e eletrônica utilizada.

A medida da radiação gama emitida pelo material irradiado foi realizada usando um detector HPGe. A eletrônica utilizada apresenta-se no esquema da Figura 2.4. O detector HPGe foi colocado numa blindagem de chumbo para evitar interferência das radiações de fundo na medida da amostra em estudo. Figura 2.5.

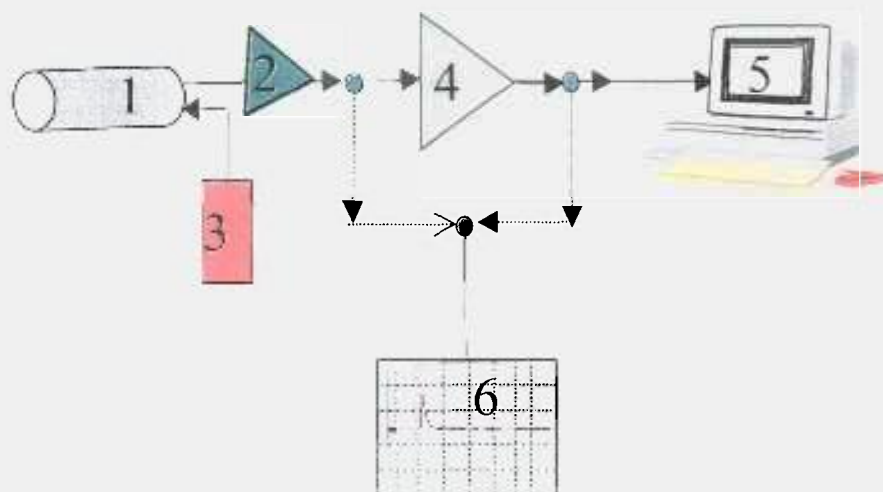


Figura 2.4 – Esquema do detector e eletrônica utilizada – (1) Detector, (2) Pré - Amplificador, (3) Fonte de alta tensão, (4) Amplificador, (5) Sistema multicanal, (6) Osciloscópio.



Figura 2.5 –Foto da montagem do detector HPGe em blindagem de chumbo.

2.1.5 Fontes utilizadas

Neste trabalho foram utilizadas duas fontes de Amerício–Berílio (AmBe) tipo NSR-F com blindagem NCS-YB, com atividade de 16 Ci de Amerício (592 Gbq) cada, enviadas ao IPEN pela empresa Schlumberger Serviços de Petróleo Ltda. A Figura 2.6 apresenta detalhes dessas fontes.

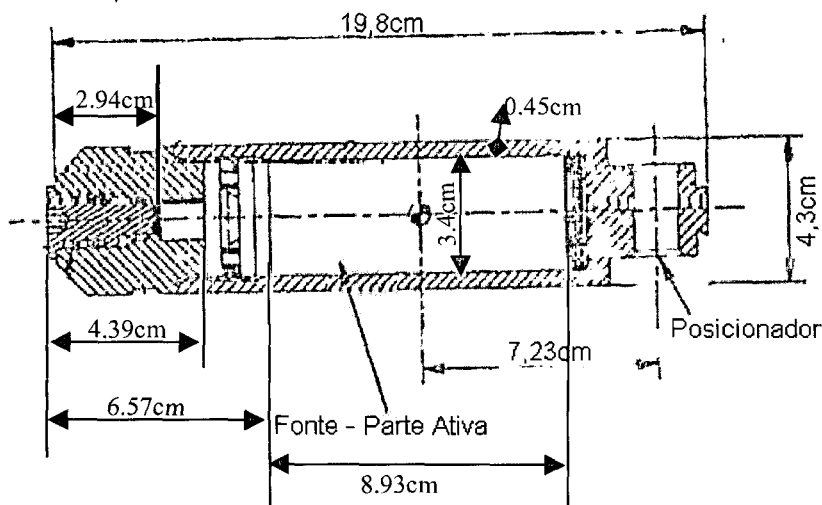


Figura 2.6 - Esquema da fonte de nêutrons de AmBe com detalhes das dimensões.

2.1.6 Termalização dos nêutrons

A fonte de AmBe emite nêutrons no espectro rápido de energia, Figura 2.7, desse modo torna necessário a termalização dos nêutrons, pois, determinados tipos de materiais possuem alta secção de choque para nêutrons térmicos. A termalização é obtida envolvendo a fonte em material hidrogenado. Na Figura 2.8 é apresentada uma relação entre variação do fluxo térmico e espessura de parafina.

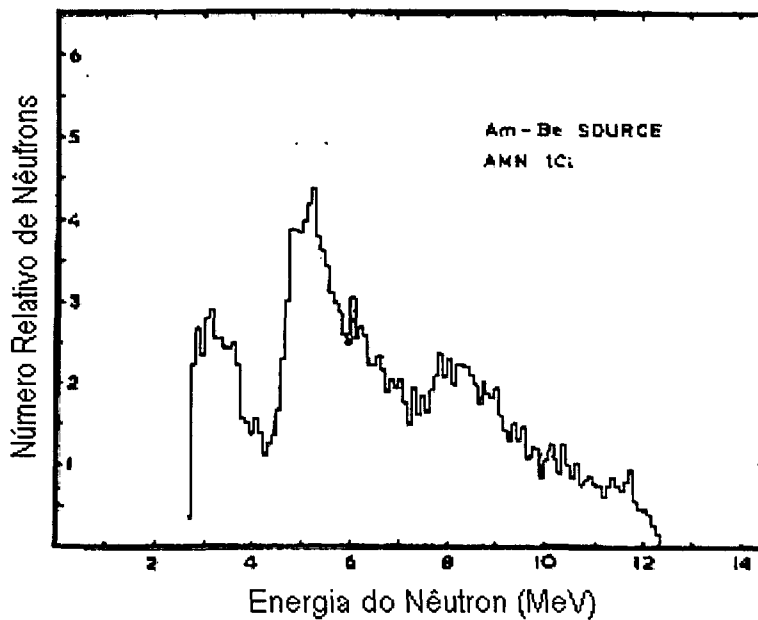


Figura 2.7 - Espectro de energia de nêutrons de uma fonte de Am-Be. Figura de Salgir e Walker²³.

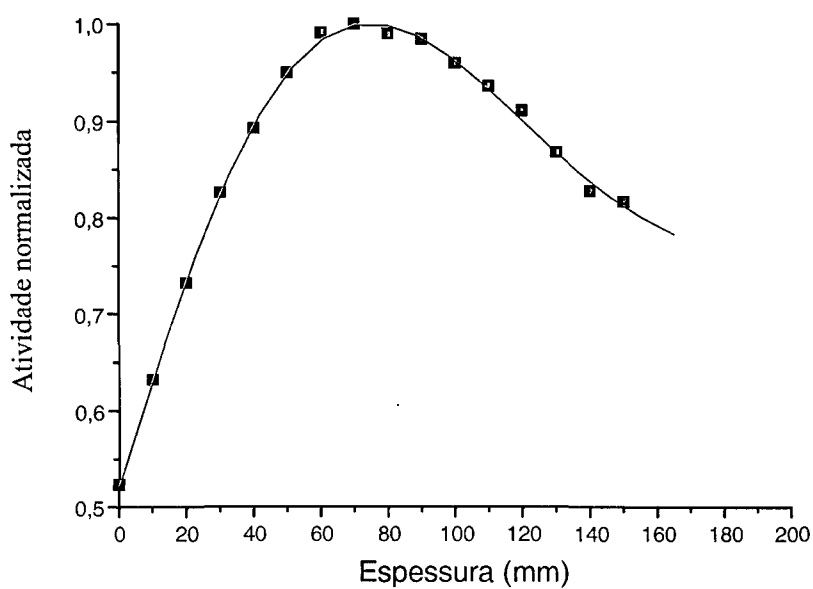


Figura 2.8 – Fluxo de nêutrons térmicos em função da espessura de parafina para uma fonte de AmBe⁽²³⁾.

2.1.7 Posicionamento da amostra no Irradiador

O material a ser irradiado é introduzido no Irradiador por meio de um posicionador de acrílico, com marcadores de distância, que permite colocar a amostra na posição de interesse ao longo do eixo do Irradiador, Figura 2.2.

2.1.8 Medida da atividade induzida

Para a obtenção da atividade induzida foi utilizado um sistema de medidas montado com detector HPGe e eletrônica Figura 2.5. O detector foi colocado interno a uma blindagem de chumbo para evitar interferência de irradiação de fundo.

O sistema de medidas foi calibração em energia utilizando uma fonte de ^{152}Eu que apresenta um espectro de energia na faixa de 121,8 keV a 1408,0 keV, conforme descrito por Madi e Cunha ⁽²⁸⁾. A calibração em energia é realizada para identificação dos emissores gama.

2.2. EFICIÊNCIA

A eficiência de contagem é um fator crítico para a determinação da atividade do foto emissor. Em função dessa quantificação é determinado o fluxo de nêutrons e, posteriormente a fração de massa do elemento de interesse na amostra analisada.

A eficiência do sistema de detecção foi determinada utilizando uma fonte de ^{152}Eu de atividade conhecida.

A equação usada para cálculo da eficiência é dada por:

$$\eta = \frac{C}{A.f_{\gamma}.G.T} \quad (2.1)$$

onde: C = contagens;

A = atividade da fonte de raios gama;

f_{γ} = abundância gama;

G = fator geométrico e

T = tempo de contagem.

2.3. Cálculo da atividade induzida por nêutrons.

A atividade gama induzida no núcleo alvo foi determinada usando a equação 2.2⁽¹⁰⁾. A determinação da atividade induzida é o primeiro passo para determinar a quantidade dos elementos contidos no material irradiado.

$$A_0 = \frac{N.\Phi.\sigma.m.f.F.(1 - e^{-\lambda t_i})}{M} \quad (2.2)$$

onde:

A_0 = atividade absoluta da amostra irradiada (Bq) ao final da irradiação;

N = $6,02 \cdot 10^{23}$ (n° de Avogadro);

ϕ = fluxo de nêutrons em nêutrons $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$.

σ = secção de choque para reação em cm^2 .⁽²¹⁾

m = massa da amostra em gramas;

f = fração do isótopo que irá sofrer ativação;

F = fração do isótopo que irá sofrer ativação quando o alvo é um composto químico;

λ = constante de desintegração do radio nuclídeo formado

t_i = tempo de irradiação;

M = massa atômica do elemento.

O fluxo de nêutrons no Irradiador foi determinado pela técnica de ativação de folhas de ouro usando razão de cádmio. Para isso foram irradiadas folhas de ouro nuas e envolvida em cádmio⁽²⁷⁾.

Se um intervalo de tempo decorrer entre o final da irradiação e o início da contagem, a correção para o decaimento radioativo será feita utilizando-se a Equação 2.3.

$$A = A_0 \cdot e^{-\lambda t_e} \quad (2.3)$$

onde:

A = atividade da amostra após um tempo de decaimento t_e ;

t_e = tempo de decaimento entre o final da irradiação e o final da contagem.

Logo, das equações (2.2) e (2.3), a atividade da amostra, após um intervalo de tempo t_e entre o fim da irradiação e o começo da contagem, é dada pela equação (2.4).

$$A = \frac{N\Phi\sigma m.f.F.(1 - e^{-\lambda.t_i})(e^{-\lambda t_e})}{M} \quad (2.4)$$

Para cálculo da atividade A da amostra, deve-se considerar a eficiência detecção do sistema de contagem usando a equação (2.5).

$$A = \frac{C_{obs} \cdot \lambda}{\eta \cdot f_\gamma \cdot (1 - e^{-\lambda t_c}) \cdot f_g \cdot f_u} \quad (2.5)$$

onde:

C_{obs} = contagem registrada no sistema de detecção; área líquida do fotopico;

η = eficiência de detecção da irradiação gama para a energia observada;

f_{γ} = intensidade da radiação emitida;

t_c = tempo de contagem.

f_g = fator geométrico.

f_u = fator de auto-absorção.

2.4. Medidas para determinação do fluxo de nêutrons.

No processo de análise para a determinação do fluxo de nêutrons, as amostras foram irradiadas nuas e com cobertura de cádmio. Depois de irradiadas elas foram devidamente acondicionadas em castelos de chumbo e imediatamente transportadas para o sistema de contagem.

A determinação do fluxo térmico do Irradiador é um fator crítico para avaliar sua possibilidade de uso em determinadas situações, e para o cálculo da fração de massa do elemento de interesse na amostra analisada. Para a aplicação do método absoluto de análise por ativação o fluxo de nêutrons é um parâmetro essencial. No cálculo do fluxo são usados diversos fatores, entre eles os fatores de correção de distorção de fluxo devido a presença de detectores de ativação e filtros (folhas de ouro e cádmio)⁽²⁷⁾, visto que a introdução de qualquer sensor num campo neutrônico, provoca distorção no fluxo que está sendo avaliado. Das equações (2.4) e (2.5) utilizando os fatores de correção, a equação do fluxo de nêutrons pode ser expressa por:

$$\Phi = \frac{C_{OBS} \cdot M \cdot \lambda}{N \cdot \sigma \cdot \epsilon \cdot m \cdot f \cdot F \cdot f_{\gamma} \cdot (1 - e^{-\lambda_i}) \cdot e^{-\lambda_e} \cdot (1 - e^{-\lambda_c}) \cdot f_g \cdot f_u} \quad (2.6)$$

2.4.1 Fatores de correção para a determinação do fluxo de nêutrons

Todo instrumento de medida quando introduzido num meio onde são efetuadas medidas poderá produzir perturbações que irão afetar os resultados.

Os níveis de perturbação são funções da geometria e das dimensões do instrumento a ser inserido no meio. No caso de uma folha de ativação imersa num campo neutrônico, as perturbações são menores que a dos detectores convencionais por apresentar menores dimensões que estes.

Na determinação do valor absoluto do fluxo neutrônico é necessário conhecer os fatores de correção, para obtenção do mesmo sem os efeitos da perturbação. Esses efeitos podem ser desprezados⁽²⁷⁾ quando o produto da soma das secções de choque macroscópicas de absorção ($\sum a(E)$) e de espalhamento ($\sum s(E)$) pela espessura d da folhas forem inferiores a 1, ou seja,

$$[\Sigma a(E) + \Sigma s(E)]d \ll 1 \quad (2.7)$$

Para os fluxos térmico e epitérmico de nêutrons são definidos os seguintes fatores de perturbação:

1) Fator de perturbação térmico K_t dado por:

$$K_t = F_{1t} \cdot F_2 \quad (2.8)$$

onde

F_{1t} é o fator de autoblindagem térmico e

F_2 é o fator de depressão do fluxo.

2) Fator de perturbação epitérmico que é basicamente dado pelo fator de autoblindagem ressonante é definido por:

$$F_{\text{epit.}} = \frac{1}{\sqrt{2 \sum_r \sigma_r d + 1}} \quad (2.9)$$

onde $\sum_r = N \sigma_r$, onde σ_r é o valor máximo da secção de choque de ressonância, N o número de átomos alvo/cm³.

Para detectores de limiar, devido à pequena magnitude da secção de choque e da mínima espessura do alvo, pode-se desprezar tais fatores de correção. Assim sendo, os fatores de perturbação de fluxo podem ser reduzidos a: fator de autoblindagem (F_{1t}) e fator de depressão de fluxo (F_2).

3 RESULTADOS

A identificação do elemento irradiado foi feita pela sua energia da radiação gama característica. O detector HPGe forneceu uma boa relação entre altura de pulso e energia da radiação gama depositada, fornecendo, assim, uma boa resolução em energia. A relação entre a radiação gama incidente e absorvida pelo detector para várias energias, permitiu o cálculo da eficiência de detecção em função da energia do raio gama incidente.

3.1 Eficiência do Sistema de Medidas Gama

O espectro em energia da fonte de ^{152}Eu usada para calibração do sistema de medidas, é apresentado na Figura 3.1.

Na Figura 3.2 é apresentada a curva da eficiência do sistema de medidas, determinada usando a fonte de ^{152}Eu . A curva ajustada é uma exponencial. A equação 3.1 fornece a eficiência em função da energia. A eficiência apresentada foi calculada para fonte puntiforme. Para as folhas e outros tipos de amostra foi calculada uma correção em função da geometria apresentada.

$$\eta = 0,02 + 0,17.e^{-\frac{E}{200,66}} \quad (3.1)$$

sendo:

η = eficiência do sistema em função da energia

E = energia do raio gama de interesse (keV)

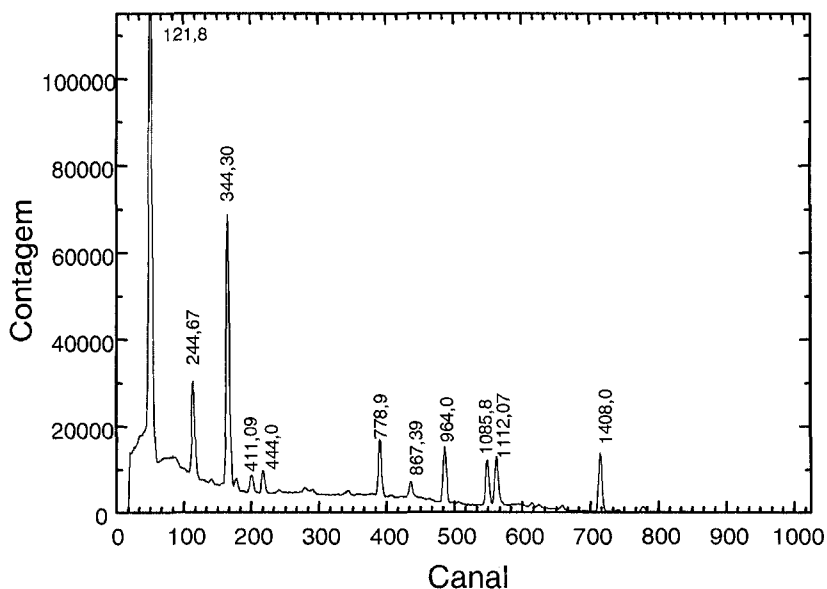


Figura 3.1 – Espectro de energia gama da fonte de ^{152}Eu . Energia em keV

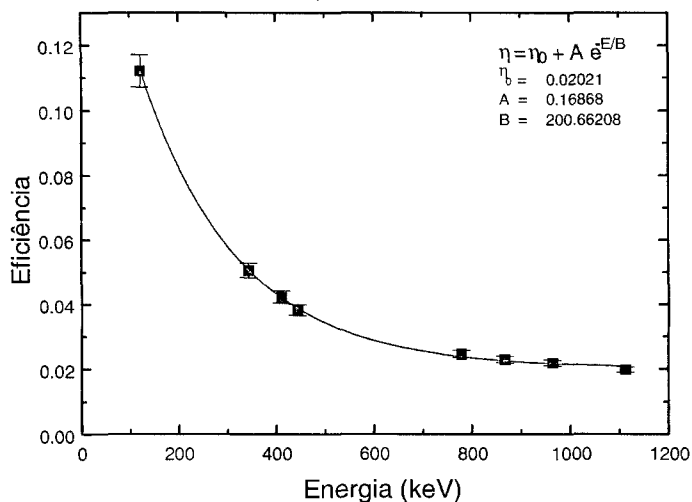


Figura 3.2 - Eficiência de detecção para fonte puntiforme. As barras em torno da representação gráfica dos pontos experimentais são a representação do erro da grandeza ajustada.

3.2. Medidas para determinação do fluxo de nêutrons do Irradiador

Na Figura 3.3 é apresentada a comparação entre os valores obtidos para a irradiação das folhas de ouro nua e coberta com cádmio. Na posição central do Irradiador.

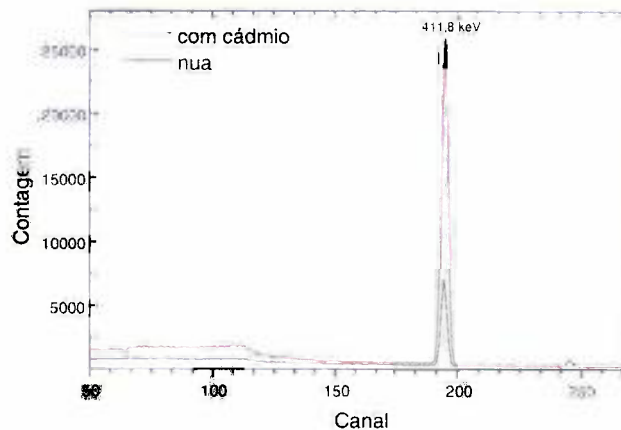


Figura 3.3 – Espectro de energia gama das folhas de ouro irradiada

Para a determinação dos fluxos de nêutrons térmico (sub cádmio) e epitérmico e rápido (sobre-cádmio) foram feitas medidas com folhas de ouro nuas e cobertas com cádmio ao longo do tubo central do Irradiador. Os espectros obtidos nessas irradiações foram semelhantes ao apresentado na Figura 3.3. O fluxo foi calculado para duas geometrias de montagem do Irradiador: (a) com bloco de polietileno entre as fontes e o tubo central e (b) sem o bloco de polietileno. O bloco de polietileno tem a função de moderar os nêutrons emitidos pela fonte. Os valores das contagens integradas no pico do ouro das diversas medidas foram utilizados no cálculo do fluxo de nêutron do Irradiador. O fluxo térmico foi calculado utilizando a equação 2.6. O fluxo de nêutrons sobre cádmio

foi determinado utilizando-se a equação 2.6 ponderada pelo fator de cádmio. Na Figura 3.4 é apresentada a distribuição do fluxo de nêutrons ao longo do Irradiador, usando entre as fontes e o tubo central um bloco de polietileno de 5,0 cm de espessura. As distribuições apresentadas foram obtidas experimentalmente e, calculada usando o método de Monte Carlo.

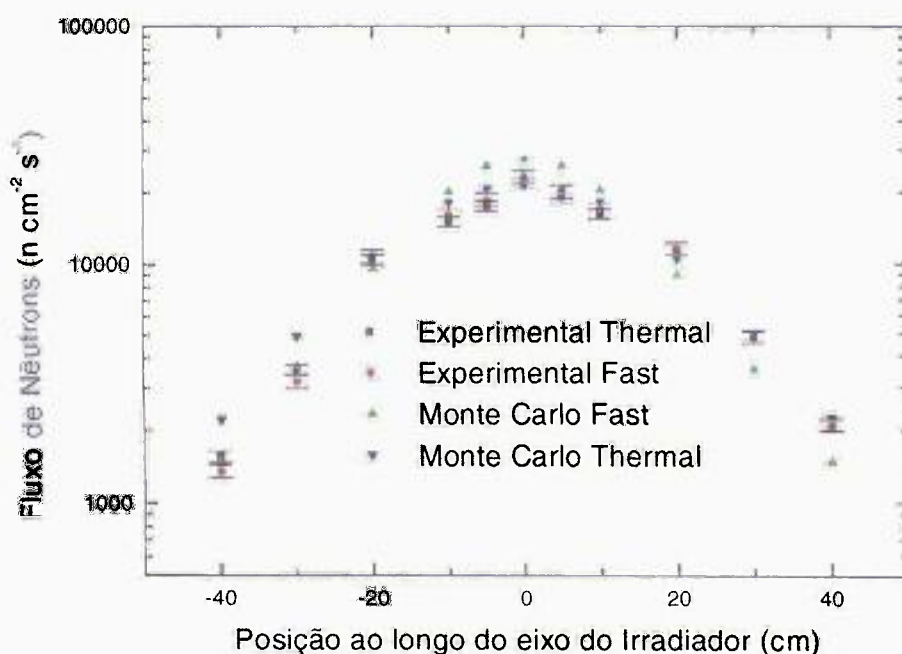


Figura 3.4 - Distribuição dos fluxos de nêutrons ao longo do eixo do Irradiador, com o bloco de polietileno. A barra de erro experimental, estimado pela equação de propagação de erros, está dentro da própria representação gráfica dos pontos experimentais.

Na Figura 3.5 é apresentada a distribuição do fluxo de nêutrons ao longo do eixo do Irradiador, determinada sem o bloco de polietileno entre as fontes e o tubo central. As distribuições apresentadas foram obtidas experimentalmente e calculadas usando o método de Monte Carlo.

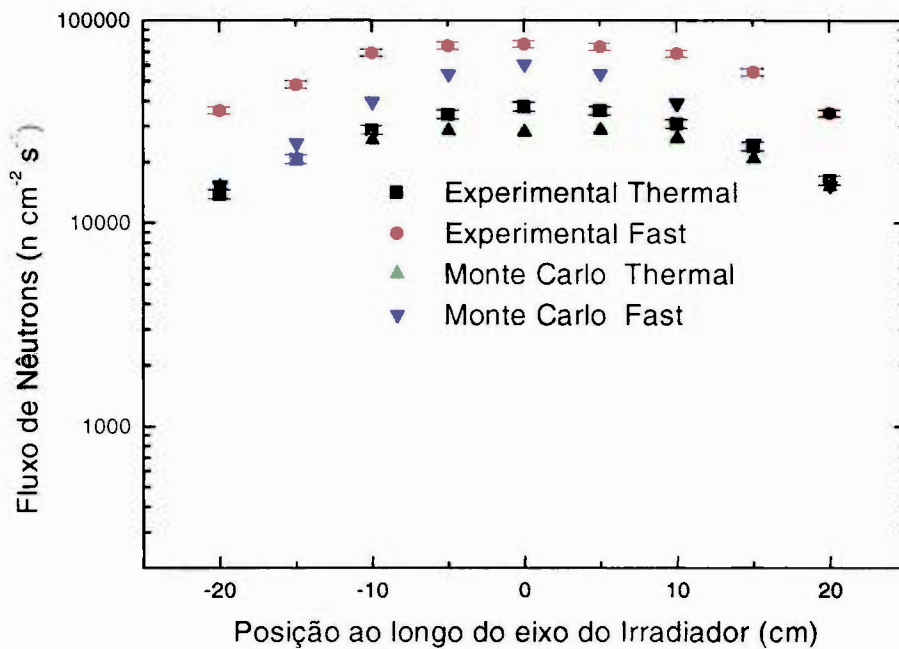


Figura 3.5 - Distribuição dos fluxos de nêutrons ao longo do eixo do Irradiador, sem o bloco de polietileno. A barra de erro experimental, estimado pela equação de propagação de erros, está dentro da própria representação gráfica dos pontos experimentais.

O Irradiador foi modelado nas duas geometrias utilizadas para cálculo dos fluxos de nêutrons pelo método Monte Carlo, utilizando o código computacional MCNP-4B. Os cálculos com o MCNP foram realizados por Dr. Helio Yoriyaz e Msc Antonio Carlos Hernandez⁽²⁹⁾. Os resultados obtidos utilizando o MCNP-4

são apresentados na Tabela 5.1. A Figura 3.6 apresenta o esquema da modelagem do Irradiador.

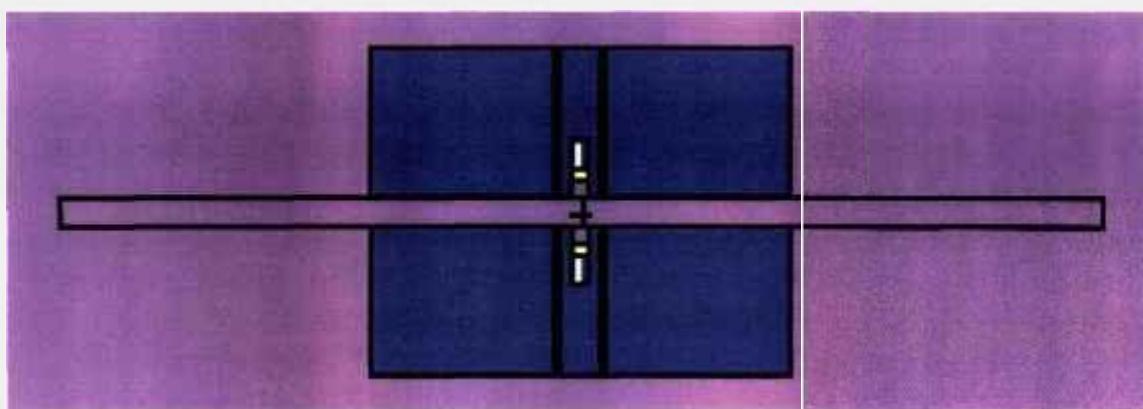


Figura 3.6 - Irradiador modelado usando MCNP, corte passando pelo centro do Irradiador.

Tabela 3.1 – Comparação dos valores dos Fluxos para posição central do Irradiador obtida por simulação, pelo Método Monte Carlo e neste trabalho.

Tipo de Nêutron	Monte Carlo ϕ ($\text{n cm}^{-2} \text{s}^{-1}$)		Este Trabalho ϕ ($\text{n cm}^{-2} \text{s}^{-1}$)	
	Com Polietileno	Sem Polietileno	Com Polietileno	Sem Polietileno
Térmico	$2,19 \cdot 10^4$	$2,81 \cdot 10^4$	$2,11 \pm 0,08 \cdot 10^4$	$3,75 \pm 0,14 \cdot 10^4$
Sobre cádmio	$2,77 \cdot 10^4$	$6,08 \cdot 10^4$	$2,34 \pm 0,09 \cdot 10^4$	$7,63 \pm 0,28 \cdot 10^4$

As figuras 3.7 e 3.8 apresentam os espectros de energia obtidos para amostras irradiadas. Na Figura 3.7, é apresentado o espectro de uma folha padrão de cobre, $m=1,0996\text{g}$. Na Figura 3.8 é apresentado o espectro obtido na irradiação

de um bloco de bronze padronizado, $m=133,98\text{g}$, de diâmetro $\phi=3,18\text{cm}$, altura $h=1,99\text{cm}$ que apresenta a seguinte composição: Cu-90,3%; Zn-9,4%; Fe-0,046%; Sn-0,04%; Ni-0,048%; Pb-0,042%; P-0,002%. Os picos do cobre aparecem bem destacados.

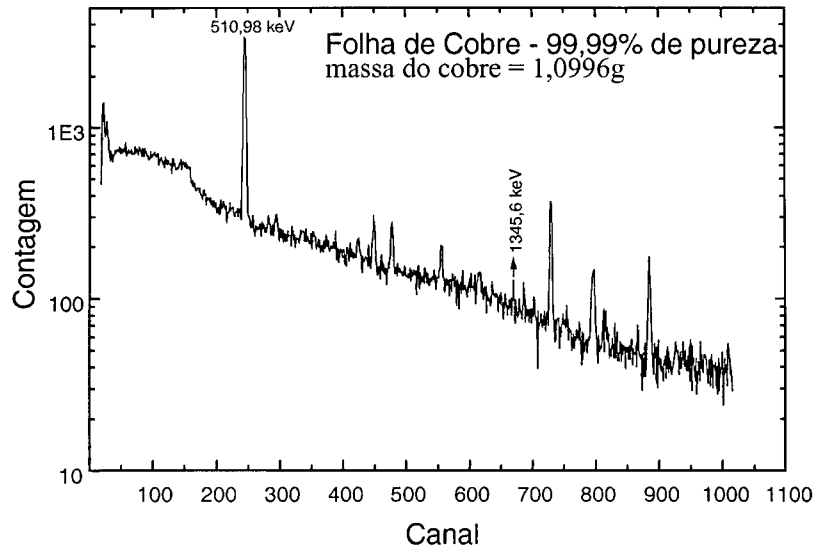


Figura 3.7 - Espectro de energia obtido para padrão de cobre irradiado.

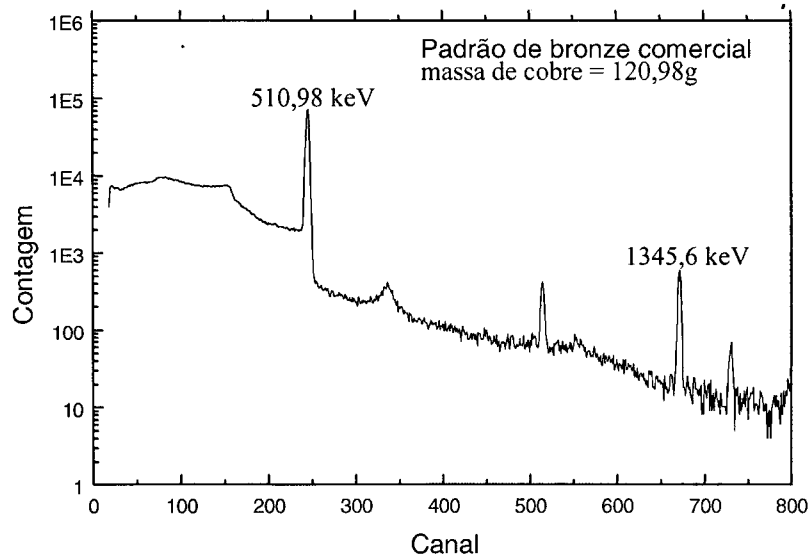


Figura 3.8 - Espectro de energia obtido para padrão de bronze irradiado

O valor do fluxo térmico obtido, para a posição central, foi utilizado para cálculo da fração F , (equação 2.6), de constituintes das amostras. Foram usados materiais padrões como o cobre, bronze, ligas de CrCo e NiCr (aço) e amostras de sal de cozinha comercial.

A Figura 3.9 apresenta o espectro obtido para a liga de CrCo de massa $m=8,5g$, disponível comercialmente. Esse material foi irradiado por 18h e a medida de espectrometria gama foi realizada em 1h.

A Figura 3.10 apresenta o espectro obtido para a liga de NiCr de massa $m=4,4g$, disponível comercialmente. Esse material foi irradiado por 19h e a medida de espectrometria gama pós-irradiação realizada em 1h.

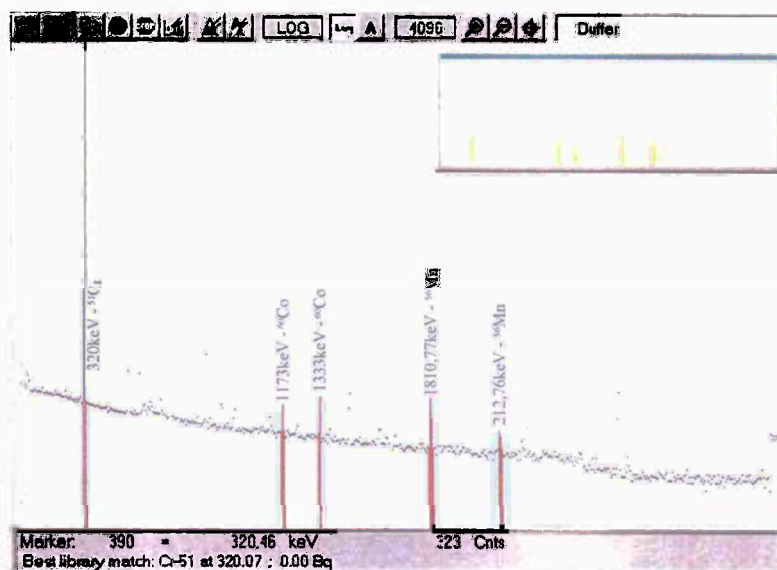


Figura 3.9 Espectro de energia para liga CrCo

O valor do fluxo térmico obtido, para a posição central, foi utilizado para cálculo da fração F , (equação 2.6), de constituintes das amostras. Foram usados materiais padrões como o cobre, bronze, ligas de CrCo e NiCr (aço) e amostras de sal de cozinha comercial.

A Figura 3.9 apresenta o espectro obtido para a liga de CrCo de massa $m=8.5\text{g}$, disponível comercialmente. Esse material foi irradiado por 18h e a medida de espectrometria gama foi realizada em 1h.

A Figura 3.10 apresenta o espectro obtido para a liga de NiCr de massa $m=4.4\text{g}$, disponível comercialmente. Esse material foi irradiado por 19h e a medida de espectrometria gama pós-irradiação realizada em 1h.

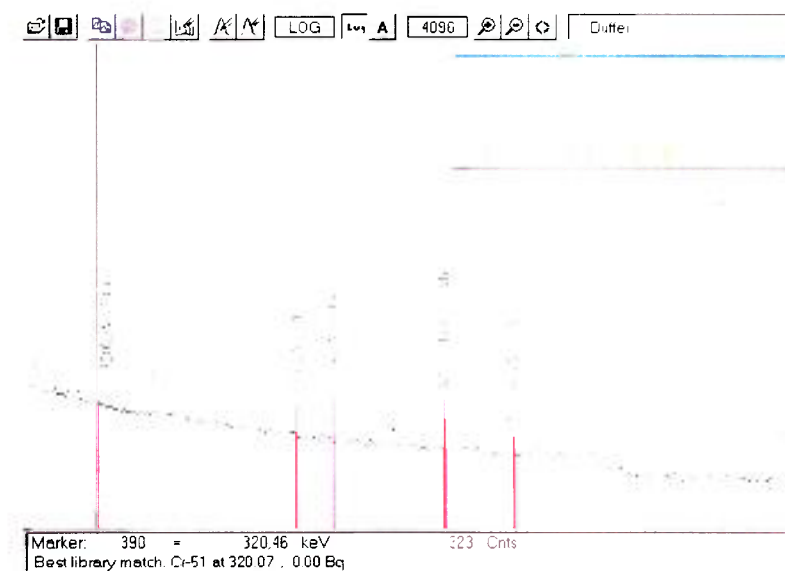


Figura 3.9 Espectro de energia para liga CrCo

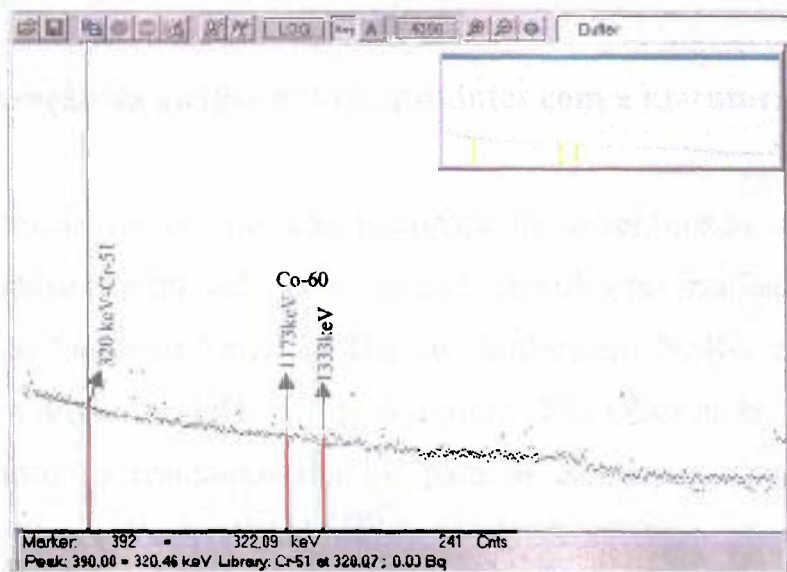
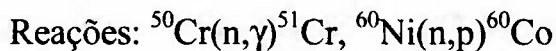


Figura 3.10 – Espectro gama pós-irradiação da liga NiCr.



A Figura 3.11 apresenta o espectro gama obtido após a irradiação do padrão de aço. O padrão de aço irradiado contém 42% de Mn, reação: $^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$.

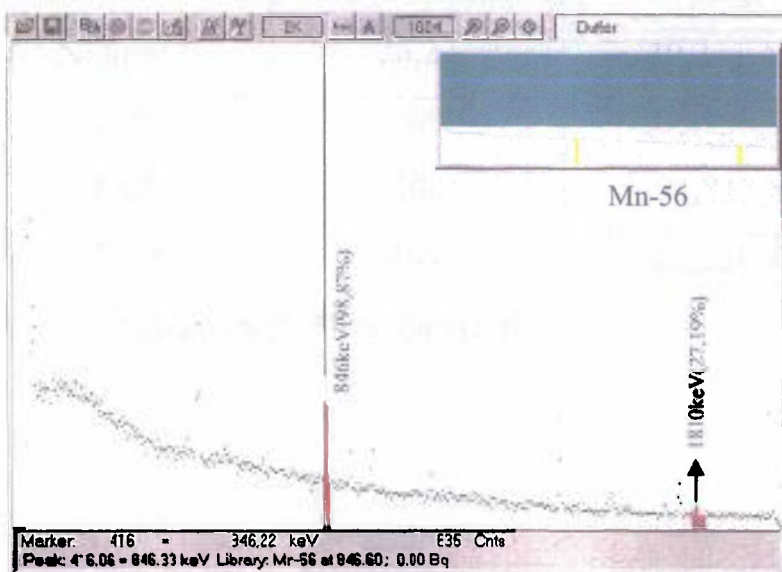


Figura 3.11 – Espectro gama do padrão de aço irradiado, com destaque para os

3.3 Comparação da análise dos constituintes com a literatura

A fração da composição isotópica foi determinada utilizando-se o método de análise por ativação com nêutrons gerados no Irradiador em estudo, que possui duas fontes de Amerício–Berílio (AmBe) tipo NSR-F com blindagem NCS-YB, com atividade de 16 Ci de Amerício (592 Gbq) cada. Na Tabela 3.2 são apresentados os resultados obtidos para os elementos analisados e estes concordam com os valores tabelados⁽²⁵⁾.

Tabela 3.2 – Comparação entre os valores de F tabelado e calculado.

Material	F(%) - Padrão	F(%) - Calculado
Cobre*	90,3	85,4±3,2
Cloro*	38,94	39,9±1,5
Sódio*	24,19	20,8±0,8
Níquel**	26,22	30,2±1,1
Co*	100	100,2±3,7
Co*	100	101,8±3,8
Zn**	48,6	42,2±1,6

* reação (n,γ), ** reação (n,p)

4 DISCUSSÃO

Com o propósito de avaliar um sistema de irradiação que permitisse o uso do método absoluto de análise por ativação com neutrons, foi determinado o fluxo de neutrons em várias posições de um irradiador e testado em análise de alguns materiais padronizados disponíveis no laboratório de Experimentação Nuclear do Centro de Engenharia Nuclear. O método absoluto dispensa o uso de padrões tornando o processo de análise menos dispendioso. A aplicação do método absoluto é possível pois o fluxo de neutrons no irradiador é constante durante todo o período de Irradiação. A Figura 4.1 apresenta uma medida em tempo da fluência de neutrons do Irradiador, feita utilizando um detector BF_3 .

A determinação experimental do fluxo de neutrons foi realizada utilizando a técnica de ativação de folhas de ouro nuas e cobertas com cádmio. O cádmio serve de filtro para neutrons térmicos e a energia de corte do cádmio depende da espessura da folha de cobertura, podendo variar de 0,4 a 0,7 eV⁽³⁶⁾. Para a espessura da folha utilizada neste trabalho (0,5mm) a energia de corte é da ordem de 0,55eV. Em simulações pelo método de Monte Carlo a energia de corte do cádmio utilizada é de 0,625 eV. Os neutrons com energia abaixo desse valor (sub-cádmio) podem ser considerados térmicos e com energia acima foram designados sobre-cádmio⁽³⁶⁾.

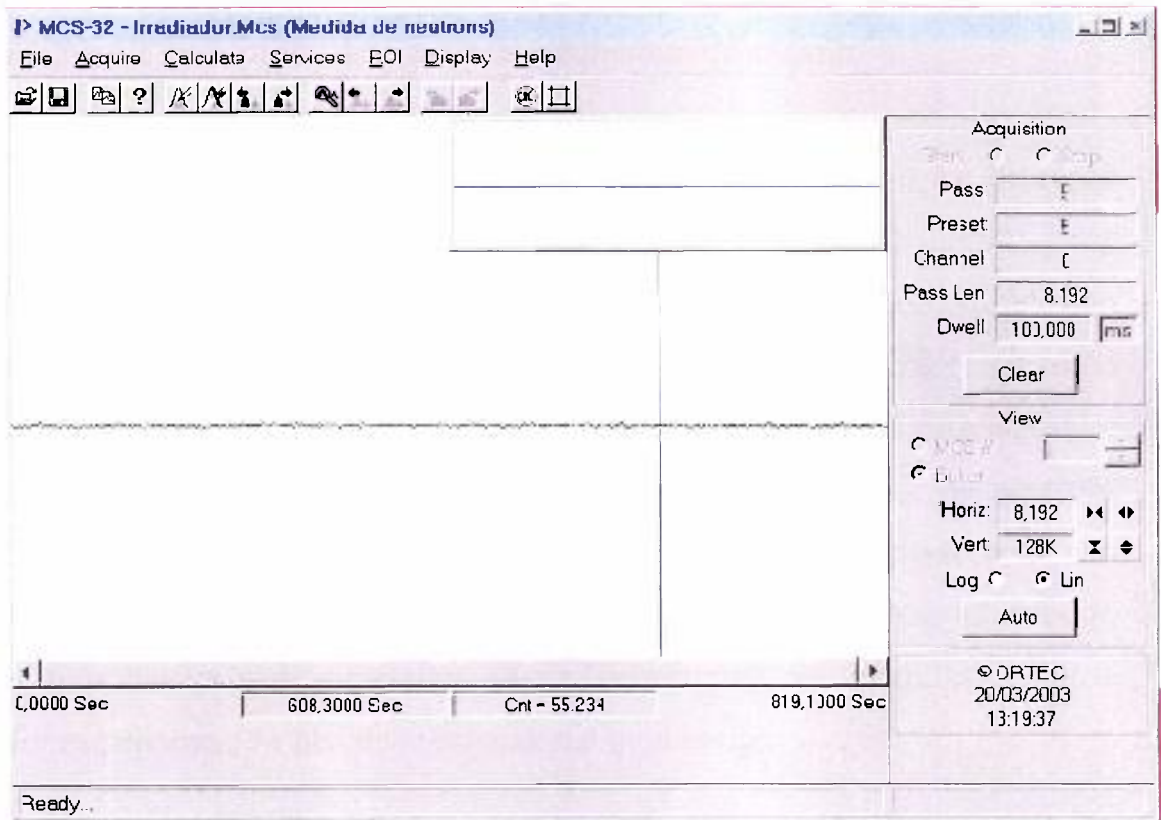


Figura 4.1 – Medida de neutrons do Irradiador, na escala de tempo, usando detector BF_3 .

Para a determinação experimental da atividade induzida nos materiais irradiados, foi feita a calibração em energia e a determinação da eficiência de contagem do sistema de medidas usado descrito em 2.2. A Figura 3.1 apresenta o espectro de energia gama do ^{152}Eu usado na calibração do sistema em energia. A Figura 3.2 apresenta a curva de eficiência do sistema de medidas.

Uma vez calibrado o sistema de medidas foram feitas irradiações de folhas de ouro nuas e cobertas com cádmio, em várias posições do Irradiador

ao longo do tubo central. A Figura 3.3 evidencia a diferença entre as medidas das folhas de ouro irradiadas com e sem cobertura de cádmio.

A performance do Irradiador foi estudada com e sem um bloco de polietileno posicionado entre a fonte e o tubo central. A função desse polietileno era de atenuar os neutrons da fonte de AmBe, que são emitidos no espectro rápido como mostrado na Figura 2.7. Na Figura 2.8 é apresentado o resultado da termalização de neutrons em função de diferentes espessuras de parafina. As medidas foram realizadas utilizando um detector de neutrons (BF_3) cuja sensibilidade é maior para neutrons térmicos. Pode-se notar um acréscimo nas medidas em função do aumento da espessura do moderador, mas após determinada espessura, há um decréscimo nas medidas devido a maior espalhamento e absorção no material moderador.

Nas figuras 3.4 e 3.5 são apresentados os resultados dos fluxos de neutrons obtidos ao longo do tubo central do Irradiador, com e sem o bloco de polietileno respectivamente. Na Figura 3.4 os valores obtidos experimentalmente para os fluxos térmicos e sobre cádmio são comparados com os obtidos pelo método de Monte Carlo. A variação entre os fluxos térmicos é de $\sim -1,4\%$, e para o sobre cádmio temos uma variação de $\sim 18\%$, tomando o experimental como verdadeiro. Na Figura 3.5 os valores obtidos experimentalmente para os fluxos térmicos e sobre cádmio são comparados com os obtidos pelo método de Monte Carlo. A variação entre os fluxos térmicos é de $\sim 25\%$, e para o sobre cádmio temos uma variação de $\sim 20\%$, tomando o experimental como verdadeiro. Os valores obtidos experimentalmente para os fluxos sobre cádmio e térmicos apresentam uma relação de duas vezes, nas medidas sem o moderador de polietileno. Essa

variação foi obtida na simulação feita por Hernandez⁽²⁹⁾. Nas medidas com polietileno os fluxos apresentam uma relação de 1,08, isto é, apresentam pouca variação, assim notamos a influência do bloco de polietileno utilizado como moderador. Era de se esperar uma maior diferença sem o moderador, uma vez que o espectro de emissão da fonte é rápido, Figura 2.7. Mas, a ordem de grandeza de $10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ é mantida, nas duas situações, com e sem o moderador de polietileno. Os valores obtidos experimentalmente e os obtidos usando o método Monte Carlo, apresentam uma discrepância de no máximo 25% (térmico, sem polietileno), mas mantém a ordem de grandeza de $10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Essa discrepância pode ser devida ao processo de modelagem e considerações nas energias de corte do cádmio e nas secções de choque usados para os cálculos experimentais.

As figuras 3.7 e 3.8 apresentam os espectros de energia obtidos para amostras irradiadas. Na Figura 3.7, é apresentado o espectro da folha de padrão de cobre, o pico referente a energia de 511 keV, principal energia do foto emissor aparece bem destacada ($f\gamma=38,6\%$), o pico na energia 1345,6 keV aparece mascarado pelo BG pois a fração de emissão gama nessa energia é pequena ($f\gamma=0,49\%$). Na Figura 3.8 é apresentado o espectro obtido na irradiação de um bloco de bronze de massa 133,98g tendo 90,3 % de cobre. Os picos do cobre aparecem bem destacados, mesmo o pico de 1345 keV. Na Figura 4.2 são apresentadas simulações para a variação da atividade gama de um material com fração e energia gama iguais ao segundo pico do ^{64}Cu , todos os demais parâmetros aplicados nos cálculos são os utilizados na determinação de F. A Figura 4.2.a apresenta a variação da atividade em função da massa (secção de choque do cobre mantida constante), e a Figura 4.2.b em função da secção de choque (massa mantida constante e igual a 0,5g). Da Figura 4.2

podemos notar a dependência do sistema de Irradiação quanto a massa ou secção de choque do material analisado.

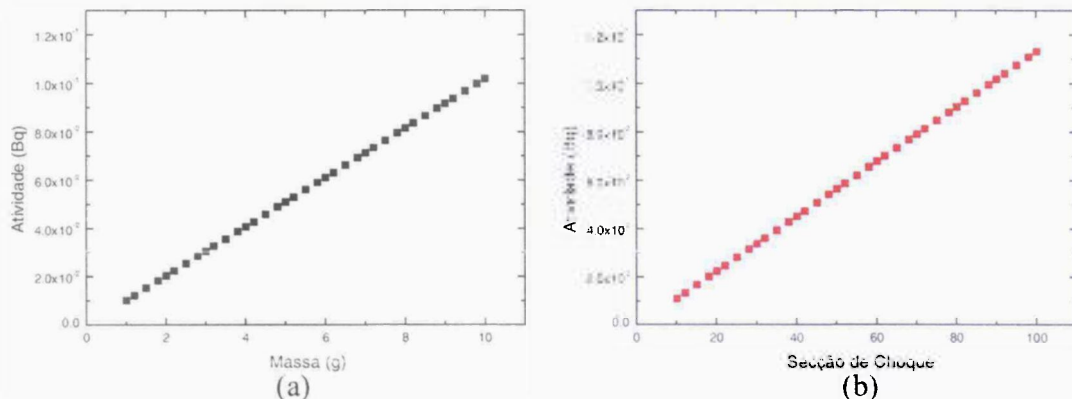


Figura 4.2 – Simulação da variação da atividade de material irradiado com fluxo térmico do Irradiador. (a) Em função da variação da massa, (b) em função da variação da secção de choque.

As figura 3.9, 3.10 e 3.11 apresentam espectros gama de ligas metálicas. Esses resultados indicam a possibilidade de identificar e quantificar componentes das ligas, sendo como já afirmado, dependente da massa e da secção de choque do material irradiado.

A Tabela 3.2 apresenta o resultado da quantificação de alguns produtos irradiados, e a comparação com valores certificados (padrão). As maiores diferenças obtidas entre o padrão e o medido, foram para valores determinados que envolvem reação (n, p). Isso pode ser por que essas reações tem energia limiar, influenciando na diferença da secção de choque e do próprio valor do fluxo usado para cálculo.

5 CONCLUSÃO

Os resultados obtidos para: (a) fluxos de nêutrons térmicos, (b) e fluxos de nêutrons sobre cádmio e (c) para a ativação dos vários materiais usados na avaliação do Irradiador, demonstraram que ele apresenta possibilidades de ser utilizado para análise de materiais por AAN, usando método absoluto. Podendo ser uma opção a reatores de pesquisa quando o material analisado possuir: (i) grande massa ou (ii) alta secção de choque para nêutrons térmicos. Isso pode ser confirmado pelos resultados das medidas de espectrometria apresentados nas figuras 3.7, 3.8, 3.9, 3.10 e 3.11 e pelo resultado de simulação apresentado na Figura 4.1.

Das figuras 3.4 e 3.5 pode-se notar que o fluxo térmico e rápido, das medidas, sem o bloco de polietileno é maior que os valores do fluxo com o bloco de polietileno. Em principio, esperava-se que com o bloco de polietileno houvesse um aumento do fluxo térmico, com mostrado na Figura 2.8, mas essa situação é válida para a fonte no ar. Como no Irradiador as fontes estão envolvidas por polietileno e parafina, tem-se uma termalização dos nêutrons nesses materiais, vindo a serem absorvidos ou re-espalhados no bloco de polietileno.

Os valores dos fluxos sobre cádmio e térmico mostrados na Figura 3.4, com o uso de polietileno, apresentam uma relação de 1.109 vezes, e o calculado por Hernandez pelo método Monte Carlo, simulando o Irradiador em estudo, Figura 3.6, apresentam uma relação de 1.002 vezes. Na situação

sem polietileno, Figura 3.5, a relação entre os fluxos sobre cádmio e térmico determinado neste trabalho foi de 2,034 e o obtido por Hernandez foi de 1,601.

Dos resultados obtidos das medidas de fluxos e das análises de materiais pode-se concluir, que a utilização do Irradiador está limitado a amostras de grande massa ou materiais de alta secção de choque de ativação.

Como trabalhos futuros, sugerimos;

- (a) Uso de detectores limiares, para avaliar o fluxo epitérmico e rápido do Irradiador;
- (b) Uso de mais outras fontes de nêutrons como apresentado no trabalho de ÇEITNER, M.A. et al.⁽³⁾, que utiliza três fontes de 592 GBq (16Ci) cada, obtendo um fluxo semelhante ao obtido nesse trabalho com duas fontes de igual magnitude.

APÊNDICE I

I - ANÁLISE ESTATÍSTICA

Os métodos estatísticos empregados possibilitam:

- a) avaliar o desempenho e condições operacionais do sistema de medidas. Para isso foram aplicado: teste de χ^2 e o teorema do limite central.
- b) determinar o tamanho da amostra para obtenção de determinado nível de precisão nos resultados do método em estudo.
- c) empregar a variabilidade estatística na distribuição amostral e aplicar determinados testes de inferência^(34, 35, 36, 37) como por exemplo o teste t de Student ou o teste F , que tornam possível uma comparação dos resultados nos dois processos de análise por ativação (Irradiador e Reator Nuclear).

I.1 - Testes Realizados para Verificar o Sistema de Medidas

Existem vários métodos⁽³⁸⁾ para verificar se o sistema de medidas está em condições operacionais ou se apresenta algum defeito que impeça comprovar a concordância entre dados observados e a hipótese formulada.

Admitindo como distribuição normal a distribuição das medidas observadas, foram utilizados dois métodos para comprovar a hipótese de que o sistema apresentava nível adequado de funcionamento. Os métodos foram: o teorema do Limite Central e o teste do qui-quadrado (χ^2).

I.1.1 - Teorema do Limite Central (T.L.C.)

Sendo C_i o valor da i -ésima contagem obtida em um número N de medidas realizadas, do T.L.C., temos que se

$$P\left|\bar{C} - \Delta C \leq C_i \leq \bar{C} + \Delta C\right| \cong 68,3\%^{(42)} \quad (\text{A.1})$$

onde

\bar{C} = valor médio

ΔC = desvio padrão

então, a hipótese é verdadeira.

Esse teste foi aplicado em todo início de operação e os resultados obtidos levaram a aceitar a hipótese formulada.

I.1.2 - Teste do Qui-Quadrado (χ^2)

Para confirmar os resultados da aplicação do T.L.C.⁽³⁸⁾ foi aplicado o teste do χ^2 e para um determinado número N de medidas realizadas de valores C_i foi calculado o χ^2 usando a relação:

$$\chi^2 = \sum_i \frac{(C_i - \bar{C})^2}{(\Delta C)^2}, \quad (\text{A.2})$$

sendo

\bar{C} = média das contagens;

ΔC = desvio padrão das contagens.

O valor obtido foi comparado com os valores tabelados/31/. Na tabela, estão relacionados valores da probabilidade P de se obter certos valores de χ^2 para f graus de liberdade (neste caso f = N-1).

Para um valor muito pequeno de P é bem possível que exista algum defeito no sistema de contagem. Analogamente um valor muito alto de P indica uma concordância quase perfeita na obtenção dos valores de χ^2 , o que leva a suspeitar da ocorrência de algum vício sistemático no sistema de contagem.

Na prática para um funcionamento adequado do sistema, P deve estar entre 5% e 95%.^(34, 36). Isso porque para decidir se um resultado é estatisticamente significativo é habitual estabelecer um nível de confiança, que representa a probabilidade com que a hipótese formulada pode ser aceita ou rejeitada, e a hipótese de bom funcionamento, utiliza um nível de significância bi-caudal.

Para o sistema de medida utilizado, obteve-se $\chi^2 = 15,04$ para 23 graus de liberdade. Feita a interpolação linear entre os valores mais próximos da tabela de probabilidades⁽³⁹⁾, o resultado obtido foi: p=11,1%, o que permite afirmar que o sistema de medidas está em condições operacionais.

1.2 - PROPAGAÇÃO DE ERROS

Em medidas, tipicamente nucleares, deve-se ter interesse no modo pelo qual o erro associado com o número de contagens se e é refletido na grandeza derivada.

As medidas de amostras radioativas obedecem à distribuição de Poisson, assim o desvio padrão associado a contagem é dado pela raiz quadrada positiva da mesma, ou seja,

$$\sigma = \sqrt{C} \quad (39) \quad (A.3)$$

Os parâmetros experimentais para a determinação de grandezas de interesse, do mesmo modo que as contagens, são afetados por desvios.

Nesse caso é preciso definir uma expressão geral que possa ser aplicada para qualquer número de variáveis porque o erro associado aos parâmetros propaga-se no cálculo da grandeza. Assim, sendo x, y, z, \dots os parâmetros, e $\sigma_{C1}, \sigma_{C2}, \sigma_{C3}, \dots$ os respectivos desvios padrões, então o desvio-padrão para qualquer grandeza u , derivada de parâmetros experimentais ou tabelados, é dada pela expressão:

$$\sigma_u^2 = \left(\frac{\partial u}{\partial x} \right)^2 \sigma_x^2 + \left(\frac{\partial u}{\partial y} \right)^2 \sigma_y^2 + \left(\frac{\partial u}{\partial z} \right)^2 \sigma_z^2 + \dots \quad (30) \quad (A.4)$$

que é a equação para cálculo de propagação de erro.

O erro encontrado na eficiência do sistema de medidas, η , Equação 3.1 foi da ordem de 17% e o da fração do elemento composto, F , Equação. 3.6, foi de 3,7% %.

APÊNDICE II

II.1 PARÂMETROS

II.1.1. Valores dos Parâmetros utilizados no cálculos dos Fluxos⁽²⁷⁾.

- ❖ Fator de autoblindagem $F_{1t} = 0,983$
- ❖ Fator de depressão de fluxo: $F_2 = 0,994$
- ❖ Fator de perturbação térmico: $K_t = 0,977$
- ❖ Fator de autoblindagem epitérmica para folhas cobertas com cádmio:
 $F_{1e} = 0,347$
- ❖ Espessura da cobertura de cádmio: $e = 0,15\text{cm}$.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. RACOLTA, P. M.; Nuclear Methods for Tribology. Appl. Radiat. Isot. Vol. 46, No. 6/7, pp. 663-672, 1995.
2. JOHNSON, M.W.; The Industrial Uses of Neutrons. Appl. Radiat. Isot. Vol. 46, No.6/7, pp. 673-680, 1995.
3. ÇEITNER, M. et al. Automation of a Pneumatic System by Controlling a Microcomputer Equipped with a Custom Add on Board for Neutron Activation Analysis. Appl. Radiat. Isot. Vol. 48, nº 3, pp. 397-402, 1997.
4. KHELIF, R. et al.; Prompt gama activation analyses of bulk concrete samples with AmBe neutrons source. Appl. Radiat. Isot 51(1999) 9-13.
5. BORSARU, M.; JENCY, Z.; Application of PGNAAs for bulk coal sample in a 4 π geometry. Appl. Radiat. Isot. (2001) 519-526.
6. SILVA, A.S.; CRISPIM, R.V. Desenvolvimento de um sistema neutrográfico transportável para aplicação em ensaios não-destrutivos. XV Congresso Brasileiro de Engenharia Mecânica, 22-26 de Novembro de 1999, Águas de Lindóia, São Paulo.
7. EISSA, N. B. et. al.; Investigation of an Egyptian Phosphate Ore Sample by Neutron Activation Analyses Technique. Radiat. Phys. Chem. Vol. 47.No. 5, pp. 705-708, 1996.
8. MUKHERJEE, B.; Development of a simple neutron irradiation facility with variable average energy using a light water moderated $^{241}\text{Am}/\text{Be}$ source. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 363 (1995) 616-618.
9. VEGA, H. R. et al.; Neutron and gama-ray spectra of $^{239}\text{Pu}/\text{Be}$ and $^{241}\text{Am}/\text{Be}$. Applied and Isotopes 57 (2002) 167-170.
10. BERRETA, J.R. Determinação de Fósforo e Cálcio em amostras biológicas por ativação com nêutrons de 14 MeV. Dissertação de Mestrado – IPEN-CNEN/SP - 102 PÁGINAS (1995).

11. SAIKI, M.; TAKATA, M.K.; KRAMARSKI, S.; BORELLI, A. Instrumental Neutron Activation Analysis of Rib Bone Samples and of Bone Reference Materials. *Biological Trace Element Research Vols. 71-72*, 1999
12. SAIKI, M.; SALDIVA, N.H.P.; ALICE, H.S. Evaluation of Trace Elements in Lung Samples from Coal Miners using Neutron Activation Analysis. *Biological Trace Element Research. Vols. 71-72*.1999.
13. FIGUEIREDO, G.M.A. et al. Neutron activation analysis: an alternative method to perform clinical examination of urine. XXIII Reunião de Trabalho sobre Física Nuclear no Brasil – 23-27 de setembro de 2000.
14. ZAMBONI, B.C.; MEDEIROS, I.M.M.A.; GENEZINI, F.A.; CESTARI, C.A.; ARRUDA, N. T. J. Nuclear Methodology to study kidney anomalies. V encontro Nacional de Aplicações Nucleares, Rio de Janeiro, 15-20 de outubro de 2000.
15. SAIKI, M.; CHAPARRO, C.G.; VASCONCELLOS, M. B. A. Determination of trace elements in lichens by instrumental neutron activation analysis. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 217 (1), 1997, 111-115.
16. PINTO et al. Aplicação da técnica ativação neutrônica paramétrica k_0 , na análise de solos de reflorestamento industrial 4th Meeting on Nuclear Applications – August 18-22 – Poços de Caldas, MG Brazil, 1997.
17. VEADO et al.; INAA as tool for environment biomonitoring. Study of water in sediment interactions in the Das Velhas River, Brazil – Major and trace elements . *Water SA*, 26:255-262, 2000b.
18. JONAH, S.A.; WILLIAMS, I. S.; Nutrient elements of commercial tea from Nigéria by an instrumental neutron activation analysis technique. *The Science of the Total Environment* 25892000 205-208.
19. MAJOLA, J.; ZIKOVSKY, L. Determination of 19 elements in waters by coprecipitation with PbS by neutron activation analysis. Journal of Radioanalytical Chemistry, 217 (1) (1997), 145-147.

20. WU, D.; LANDSBERG, S.; LARSON, S.M. Determination of the elemental distribution in cigarette components and smoke by instrumental neutron activation analysis. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 217(1) (1997) 77-82.
21. BODE, P.; Current Status of Large Sample Neutron Activation Analysis. NUCAR 2001: 5. National symposium on nuclear and radiochemistry. Pune (India) 7-10 Feb 2001. P. 23-24.
22. HULT, M.; FESSLER, A. Sr/Ca Mass Ratio Determination in Bones using Fast Neutron Activation Analysis. *Appl. Radiat. Isot.* Vol. 49, No. 9-11, pp. 1319-1323, 1998.
23. MADI, F. T. Desenvolvimento de detector de nêutrons usando sensor tipo barreira de superfície com conversor (n, p) e conversor (n, α). São Paulo. Tese (Doutoramento) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares. 1999.
24. TRAVESSI, A. Analysis por Activacion Neutrônica, Teoria, Prática y Aplicaciones. JEN-Junta de Energia Nuclear, Madri 1975.
25. JAERI (Japan Atomic Energy Research Institute, endereço eletrônico: <http://www.ndc.tokai.jaeri.go.jp/>). Última modificação, 10/06/2003.
26. MADI, F.T. Determinação não destrutiva da queima de elementos combustíveis no Reator IEA-R1 por espectrometria gama usando detector Ge (Li). São Paulo: Tese – Mestrado – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - 1982.
27. BITELLI, D.U. Medida e cálculo da distribuição espacial e energética de neutrons no núcleo do Reator IEA-R1. São Paulo. Tese – Mestrado – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares. 1988.
28. MADI, F.T.; CUNHA, L.I.I. Determinação de fósforo em amostras de osso por análise por ativação usando nêutrons rápidos. In: CONGRESSO GERAL DE ENERGIA NUCLEAR, T4, 05-09 de Julho 1992, Rio de Janeiro. Anais... Rio de Janeiro: ABEN, 1992. v. 2, pp.857-859.

29. HERNANDES, A.C.; Caracterização do Campo de Radiação numa Instalação para Pesquisa em BNCT utilizando o Método de Monte Carlo. Código – MCNP – 4B. Dissertação de Mestrado – IPEN/CNEN-2002.
30. MOORE, S.D. The Basic statistics. practice of First published in the United States by W.H. Freeman and Company, New York, New York and Basing stoke, 1995.
31. SPIEGEL, M.R. Theory and problems of probability and statistics. Renssealer Polytechnic Institute of Connecticut 1977.
32. KNOLL, G.F. Radiation detection and measurement. 2 ed. John Wiley & Sons. 1986.
33. U. S.. departament of commerce, national bureau of standards. office of standard reference materials Washington, d.c. 20234. NBS standard referential material 1116 december 1965.
34. IAEA-TECDOC-1215.; Use of research reactors for nêutron activation analysis. Report of an Advisory Group meeting held in Vienna, 22-26 June 1998.
35. ACTIVATION FOIL MANUAL. Reactor Experiments inc, 963 terminal way, San Carlos, CA 94070-3278 - 1965.
36. GKSS 84/e/34 – GKSS – Forschungszentrum Geesthacht GmbH Geesthacht – 1984. Adolph j., Estudio para la determinacion experimental de la distribucion de densidad de flujo neutronico em los reactores de investigacion.