Medida Da Taxa de Fluência De Nêutrons No Reator IEA-R1 Pela Técnica de Ativação De Folhas , Utilizando Um Sistema De Coincidências  $4\pi\beta$ - $\gamma$ 

# Professores Responsáveis

Mauro S. Dias e Marina F. Koskinas

#### **Participantes**

Ademir Xavier da Silva (COPPE/UFRJ), Elmer Baz Alcon Quisbert (UFRJ),

Juan Yury Zevallos Chavez (IFUSP), Marcelo Filadelfo (IFUSP),

Marisa de Moraes Cunha (IEAv/CTA), Ruy Morgado de Castro (IFUSP),

Sabrina Metairon (IPEN)

#### **RESUMO**

As taxas de fluência de nêutrons térmicos, epitérmicos e rápidos foram determinadas experimentalmente pelo método de ativação de folhas na posição 14B, próxima ao núcleo do reator IEA-R1. As reações utilizadas foram:  $^{197}$ Au(n, $\gamma$ ) $^{198}$ Au, para nêutrons térmicos e epitérmicos e  $^{27}$ Al(n, $\alpha$ ) $^{24}$ Na, para nêutrons rápidos. As atividades das folhas foram determinadas pelo Método de Coincidências  $4\pi\beta$ - $\gamma$ . Os resultados das taxas de fluência de nêutrons foram comparados com aqueles obtidos em medidas anteriores.

# INTRODUÇÃO

O conhecimento da taxa de fluência de nêutrons é de importância fundamental em qualquer experimento que venha a ser efetuado em um reator de pesquisa, especialmente na produção de radioisótopos, no estudo de danos de radiação ou em cálculos de blindagem.

Para o caso do reator IEA-R1 do IPEN, os nêutrons apresentam um espectro amplo de energias, desde milésimos de eV até vários milhões de eV. Os nêutrons com energias abaixo de 0,6 eV são chamados *térmicos*, aqueles entre 0,6 eV e 0,5 MeV, *epitérmicos*, e os nêutrons com energias acima de 0,5 MeV, *rápidos*.

Um dos métodos mais importantes para a determinação da taxa de fluência de nêutrons é o método de ativação de folhas. Neste método, uma reação nuclear induzida pelos nêutrons produz um núcleo final que é radioativo. A atividade obtida está diretamente relacionada com a taxa de fluência de nêutrons, sob a qual a amostra foi irradiada.

No presente trabalho, as taxas de fluência de nêutrons térmica e epitérmica foram determinadas pelo método de diferença de cádmio [1], por meio da reação  $^{197}$ Au $(n,\gamma)^{198}$ Au. A taxa de fluência de nêutrons rápidos foi determinado pela reação de limiar:  $^{27}$ Al $(n,\alpha)^{24}$ Na.

As atividades do radionuclídeos  $^{198}$ Au e  $^{24}$ Na foram determinadas pelo método de coincidências  $4\pi(PC)\beta-\gamma$  [2], que é um dos mais exatos, podendo atingir incertezas inferiores a 0,1 %.

#### PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

# 1. IRRADIAÇÃO DAS AMOSTRAS

Para a medida das taxas de fluência térmica e epitérmica foram utilizadas folhas de liga ouro-alumínio, contendo 0,13% de ouro. As folhas possuiam massa

da ordem de 1 mg e área em torno de 3 mm². A espessura efetiva de ouro resultante é de aproximadamente 40 μg/ cm². A fim de separar a contribuição na ativação ocasionada pelos nêutrons epitérmicos, as folhas foram irradiadas formando um par, ficando uma delas no interior de uma cápsula de cádmio com 0,5 mm de espessura de parede. A depressão no fluxo térmico, ocasionada pela presença do cádmio, foi evitada mantendo-se as folhas de ouro a uma distância de 4 cm entre si.

Para a medida da taxa de fluência de nêutrons rápidos, utilizou-se uma folha de alumínio com 12 mm de diâmetro e massa da ordem de 20 mg. Para reduzir a ativação das impurezas presentes (≤ 0,004% de Mn,Fe e Cu), esta amostra também foi encapsulada em cádmio.

As amostras foram irradiadas durante 30 min na posição 14B (prateleira 6), localizada próxima ao núcleo do reator IEA-R1, conforme indica a figura 1.

# 2. **DETERMINAÇÃO DAS ATIVIDADES**

As atividades dos radionuclídeos  $^{198}$ Au e  $^{24}$ Na foram determinadas de modo absoluto em um Sistema de Coincidências  $4\pi(PC)\beta-\gamma$ , instalado no Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN-CNEN/SP. Este sistema utiliza um detector proporcional a gás fluente em geometria  $4\pi$ , acoplado a dois cintiladores de NaI(Tl) de 3"x 3"[2]. O diagrama da parte eletrônica é apresentado na figura 2.

Este tipo de sistema de medidas permite a determinação da atividade da amostra, sem necessidade do conhecimento das eficiências dos detectores. O valor da atividade específica é dado pela seguinte relação:

$$\mathbf{A}_{0} = \frac{\mathbf{N}_{\beta} \mathbf{N}_{\gamma}}{\mathbf{N}_{C}} \cdot \frac{1}{\mathbf{m} \ (1 + \mathbf{K}_{\varepsilon})} \tag{1}$$

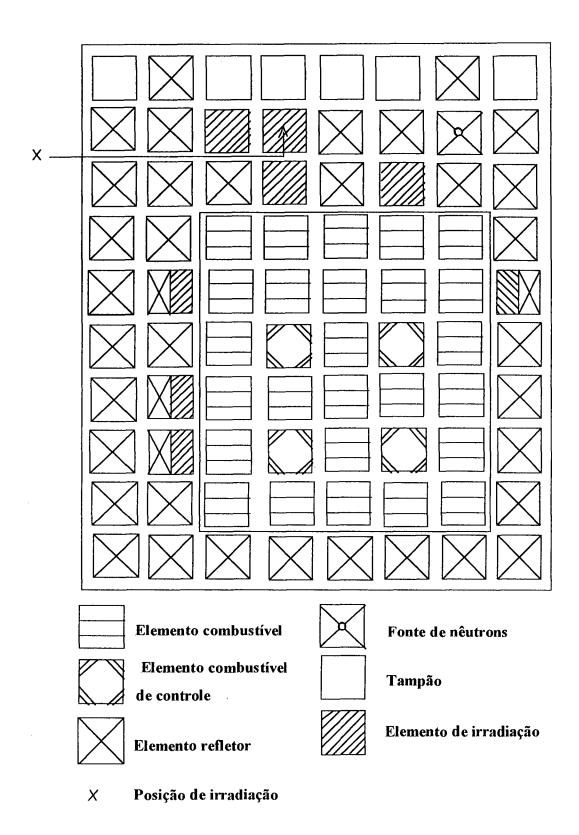


Figura 1 Configuração do núcleo do Reator IEA-R1

 $|||\cdot||| \leq \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{n} \frac{1}{i} \sum_{i=1}^{n} \frac{1}{i} \sum_{i=1}^{n} \frac{1}{i} \sum_{i=1}^{n} \frac{1}{i} \sum_{i=1}^{n} \frac{1}{i}$ 

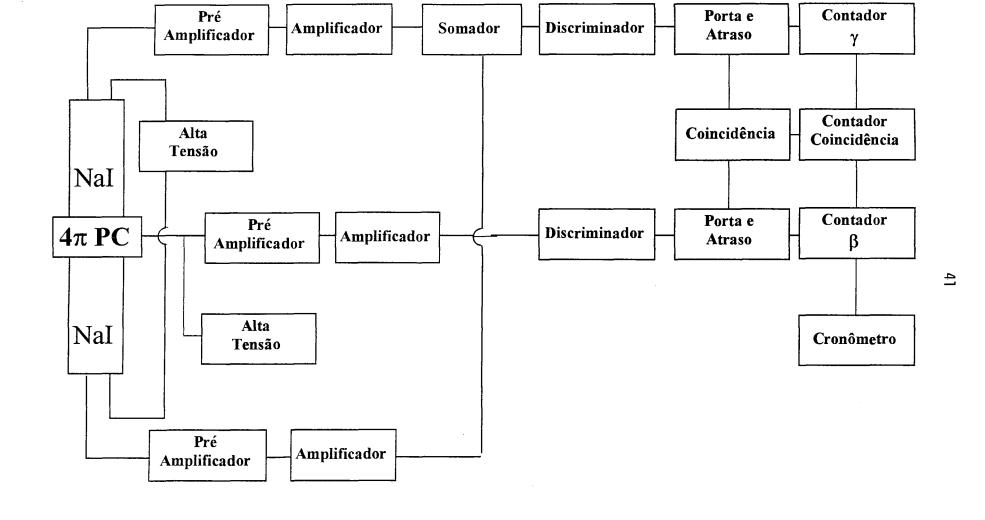


Figura 2 Diagrama de blocos do sistema de coincidências  $4\pi$  (PC) β-γ

Onde:

 $\mathbf{A_0}$ 

é a atividade específica da amostra (Bq/g);

 $N_{\beta}$ ,  $N_{\gamma}$ ,  $e N_{c}$ 

são as taxas de contagens observadas nas vias beta, gama e coincidência, respectivamente, corrigidas para contagem de fundo, tempo morto, tempo de resolução [3] e decaimento da amostra;

Kε

é a correção para o esquema de desintegração e

m

é a massa da amostra (g).

A meia-vida adotada para o  $^{198}$ Au foi de (2,695  $\pm$  0,002) d [4] e para o  $^{24}$ Na foi de (14,960  $\pm$  0,006) h [4].

### 3. CÁLCULO DA TAXA DE FLUÊNCIA DE NÊUTRONS

#### 3.1 TÉRMICO

Para a determinação taxa de fluência de nêutrons térmicos, foi suposta uma distribuição de energias do tipo Maxwelliana a uma temperatura de nêutron de 30 °C. Para o tipo de folha de ativação utilizada no presente experimento, as equações para o fluxo de nêutrons térmicos descritas na referência [5] simplificam-se na seguinte equação:

$$\Phi_{T} = \frac{\left(A_{S} - A_{C}\right)}{F N_{T} \sigma_{\theta} \sqrt{\frac{\pi T_{\theta}}{4 T}} \left(1 - e^{-\lambda t_{1}}\right)}$$
(2)

onde:

A<sub>s</sub> e A<sub>c</sub> correspondem, respectivamente, às atividades das folhas sem e com revestimento de cádmio (em Bq/g), no instante do final da irradiação;

**F = G.H** é o fator que inclui as correções para auto-blindagem (G) [6] e depressão de fluxo (H) [7].

 $σ_0$  é a secção de choque de absorção para a velocidade de nêutron de 2200 m/s,  $(98.8 \pm 0.3)$  b [8];

T é a temperatura efetiva do nêutron no meio moderador.

N<sub>T</sub> é o número de átomos/grama da folha de ativação.

t<sub>i</sub> é o tempo de irradiação.

### 3.2 EPITÉRMICO

Na região epitérmica, a distribuição de energia dos nêutrons adotada foi do tipo 1/E. O fluxo de nêutrons epitérmicos é dado pela expressão [5]:

$$\Phi_{\text{epi}} = \frac{A_{\text{C}} \ln(E_{2}/E_{1})}{N_{\text{T}} G_{\text{epi}} I(1-e^{-\lambda t_{i}})}$$
(3)

onde:

A<sub>c</sub> é a atividades das folha com revestimento de cádmio (em Bq/g), no instante do final da irradiação;

G<sub>epi</sub> é o fator de auto-blindagem para a região epitérmica [9]

é a integral de ressonância para a reação  $^{197}$ Au $(n,\gamma)^{198}$ Au, igual a  $(1560 \pm 40)$  b [8];

E<sub>1</sub> e E<sub>2</sub> são as energias no corte de cádmio (0,6 eV) e na região rápida (1 MeV).

### 3.3 RÁPIDO

Na região de nêutrons rápidos foi suposta uma distribuição de Watt, correspondendo ao espectro de energia dos nêutrons prontos emitidos no processo

$$\Phi_{R} = \frac{A_{C}}{N_{T} < \sigma > (1 - e^{-\lambda t_{I}})}$$
(4)

onde:

A<sub>c</sub> é a atividades das folha com revestimento de cádmio (em Bq/g), no instante do final da irradiação;

 $\sigma$ é a secção de choque média no espectro de Watt, igual a  $(0.706 \pm 0.028)$  b [10], para a reação:  $^{27}$ Al $(n,\alpha)^{24}$ Na.

### 4 RESULTADOS E CONCLUSÕES

A Tabela 1 mostra os resultados obtidos para as atividades específicas do <sup>198</sup>Au e <sup>24</sup>Na, no instante do final da irradiação, obtidas no primeiro e no segundo experimento, respectivamente.

As variações nas atividades específicas das amostras podem ser atribuídas a variações na taxa de fluência de nêutrons, uma vez que as condições de irradiação foram as mesmas para os dois experimentos. As incertezas nas atividades específicas do  $^{198}\mathrm{Au}$  foram causadas predominantemente pela incerteza na massa das folhas ( $\pm$ 15 µg). Para o caso do  $^{24}\mathrm{Na}$ , a principal causa de incerteza foi a estatística de contagem.

A Tabela 2 mostra os resultados obtidos para as as taxas de fluência de nêutrons térmico, epitérmico e rápido, obtidas em um experimento anterior, juntamente com aquelas obtidas no primeiro e segundo experimentos da escola, respectivamente.

As fontes principais de incerteza na taxa de fluência de nêutrons térmicos e epitérmicos foram as incertezas nas atividades específicas e no tempo de

Tabela 1 Resultados obtidos para as atividades específicas. Os números indicados entre parênteses correspondem à incerteza nos últimos algarismos (um desvio padrão).

Faixa de Energia do Nêutron	Radionuclídeo	Atividade Específica (MBq/g) 1ª Irradiação	Atividade Específica (MBq/g) 2ª Irradiação
Térmico	<sup>198</sup> Au	12,87 (21)	11,37 (20)
Epitérmico	<sup>198</sup> Au	2,463 (19)	2,348 (18)
Rápido	<sup>24</sup> Na	0,2497 (7)	0,2920 (9)

Tabela 2 Resultados obtidos para as taxas de fluência de nêutrons térmicos, epitérmicos e rápidos. Os números indicados entre parênteses correspondem à incerteza nos últimos algarismos (um desvio padrão).

Faixa de Energia do \ Nêutron	Taxa de Fluência Nêutrons ( x10 <sup>12</sup> n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )		
	Medida Anterior	1° Experimento	2° Experimento
Térmico	4,93 (15)	5,68 (18)	4,93 (16)
Epitérmico	0,89 (4)	1,10 (5)	1,05 (5)
Rápido	0,763 (18)	0,744 (20)	0,870 (20)

irradiação. Para a taxa de fluência de nêutrons rápidos, a causa principal foi a incerteza no tempo de irradiação.

As variações no valor da taxa de fluência de nêutrons em datas diferentes podem ser explicadas por diversas causas, tais como: variação na posição das barras de controle durante o período de operação do reator , interferência de outros materiais localizados em regiões vizinhas às amostras e flutuações na potência do reator ao longo do tempo.

#### 5 AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem a Eliane Pocobi pela preparação das amostras e aos operadores do reator IEA-R1 pela colaboração durante as irradiações.

### 5 REFERÊNCIAS

- 1) INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Neutron fluence measurements. Vienna, 1970 (Technical Report Series 107).
- 2) MOURA, L.P.. Método de coincidência generalizado para a medida absoluta da atividade de radionuclídeos - aplicação na determinação do coeficiente de conversão interna da transição de 279 keV do <sup>203</sup>Tl. São Paulo, 1969 (Tese de Doutoramento, Universidade de Campinas).
- 3) **COX,D.R., and ISHAM,V.,** A bivariate point process connected with electronic counters, Proc. Roy. Soc, <u>A 356</u>, (1977) 149.
- 4) **COMMISSARIAT À L'ENERGIE ATOMIQUE**. Bureau National de Métrologie. *Table de Radionucléides.*, Gif-sur-Yvette, France, 1983.
- 5) **KOSKINAS,M.F.,** Medida do fluxo térmico, epitérmico e rápido no Reator IEA-R1, pelo Método de Ativação de Folhas. São Paulo, 1978 (Dissertação de Mestrado, Instituto de Energia Atômica).
- 6) **FLEMING,R.F**. Neutron Self-shielding Factors for Simple Geometries. Int. J. Appl. Radiat. Isot. **33** (1982) p.1263.
- 7) DALTON, G.R. and OSBORN, R.K, Flux perturbations by thermal neutron detectors. Nucl. Sci. Eng. 9 (1961) 198.
- 8) **ZIJP,W.L. and BAARD, J.H.** Nuclear Data Guide for Reactor Neutron Metrology. Brussels, Commission of the European Communities, 1981. (EUR-7164).
- 9) BAUMANN, N.P., Resonance integrals and self-shielding factors for detector foils. Aiken, South Carolina, DuPont de Nemours, 1963 (DP-817).

10) MANNHART, W.: Spectrum-Average Neutron Cross Section Measured in the U-235 Fission-Neutron Field in MOL, Proc. 5th ASTM-EURATOM Symp. on Reactor Dosimetry, Geesthacht, FRG, 1984, Genthon, J.P., Rottger, H., Eds, D Reidel Publishing Company, Dordrecht (1985).