

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 ¹; Hélio Yoriyaz ¹ Antonio Carlos Hernandez ², Tufic Madi Filho ^{1,2}

1 - IPEN/CNEN-SP - Divisão de Física de Reatores
Cidade Universitária, Travessa R, 400 CEP: 05508-900 – São Paulo - SP - Brasil

2 - Universidade Cruzeiro do Sul (UNICSUL)
Av. Dr. Ussiel Cirilo 225 – CEP: 08060-070

RESUMO

Este trabalho teve por objetivo determinar o fluxo de neutrons sub cádmio (Térmico) e sobre-cádmio (Epitérmicos e Rápido) do Irradiador, do Laboratório de Experimentação Nuclear do Centro de Energia Nuclear (CEN) do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN, e verificar a possibilidade de sua utilização para Análise de Ativação por Neutrons (NAA) pelo método absoluto. Basicamente, este Irradiador consiste em um cilindro de 120 cm de comprimento e 98,5cm de diâmetro (preenchido com parafina) com duas fontes de AmBe de 592GBq cada. O fluxo estimado ao longo do eixo de Irradiador foi determinado experimentalmente e pelo método de Monte Carlo. Na posição central do irradiador, posição esta utilizada para irradiação de materiais para análise, os valores obtidos para o fluxo foram: (a) com polietileno, térmico $\phi=2,11\pm 0,08 \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ e sobre-cádmio $\phi=2,34\pm 0,09 \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, (b) sem polietileno, térmico $\phi=3,75\pm 0,14\pm 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ e sobre-cádmio $\phi=7,63\pm 0,28 \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. e pelo método de Monte Carlo, (a) com polietileno, térmico $\phi=2,19 \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ e sobre-cádmio $\phi=2,77 \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, (b) sem polietileno, térmico $\phi=2,81 \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ e sobre-cádmio $\phi=6,08 \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. O Irradiador apresenta a vantagem de prover um fluxo de nêutron estável por um longo período e elimina a necessidade do uso de material de padrão, de forma que o processo fica ágil, prático e econômico. Foram analisados alguns materiais que apresentaram boa concordância com valores de referência.

Descritores: NAA, neutrons, irradiador

ABSTRACT

This work had as a target to determine the Irradiator thermal and over-cadmium (epithermal and fast) neutrons 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. Basically, this Irradiator consists of a cylinder of 120 cm long and 98,5 cm diameter (filled with paraffin) with two Am Be sources 592GBq each. Flux values along the irradiator axis were determined, experimentally and by Monte Carlo method. In the irradiator central position, where the materials analysis was done, the flux values obtained, experimentally, were: (a) with polyethylene block, thermal $\phi=(2,11\pm 0,08) \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ and over-cadmium $\phi=2.34 \pm 0,09 \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, (b) without polyethylene block, thermal $\phi=(3.75 \pm 0,14) \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ and over-cadmium $\phi=(7.63 \pm 0,28) \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, and by Monte Carlo method, were: a) with polyethylene block, thermal $\phi=2,19 \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ and over-cadmium $\phi=2,77 \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, (b) without polyethylene block, thermal $\phi=2,81 \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ and over-cadmium $\phi=6,08 \cdot 10^4 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. The irradiator presents the advantage of supplying a stable neutron flux for a long period, eliminating the need of the use of standard material, so that the process becomes agile, practical and economic. Some materials were analyzed, presenting good agreement with reference values.

Key Words: NAA, neutrons, irradiator

INTRODUÇÃO

O método de análise por ativação com neutrons (NAA) é uma técnica não destrutiva altamente sensível para a determinação da composição elemental em amostras. Tem sido particularmente útil na determinação simultânea de elementos em amostras complexas de diversas naturezas. Consiste basicamente em submeter uma amostra a um fluxo de neutrons, gerados por reatores ou de fontes radioativas e após, realizar espectrometria gama do material irradiado identificando e quantificando, desse modo, os componentes da amostra. É um método aparentemente simples, mas exige conhecimento do fluxo de neutrons, da calibração e das condições operacionais do sistema de medidas e do procedimento da análise espectral e do decaimento radioativo, além de alguns parâmetros inerentes ao nuclídeo identificado[1].

Alguns métodos de NAA são utilizados em vários laboratórios[2-3-4-5]. Dentre os métodos utilizados podemos citar:

- (a) Método Comparativo. Neste método a amostra e o padrão, são irradiados simultaneamente sob o mesmo fluxo de neutrons. A concentração dos elementos de interesse é calculada por comparação entre a atividade da amostra e do padrão. Essas atividades são obtidas sob as mesmas condições de medidas[6].
- (b) Método Absoluto. Este método consiste em submeter o elemento a ser irradiado a um fluxo de neutrons conhecido e estável, durante o período de irradiação. Ele é válido para análise de amostras irradiadas nas mesmas condições de determinação do fluxo de neutrons. A atividade é determinada em um sistema de espectrometria gama de eficiência de detecção bem estabelecida [7].
- (c) Método Instrumental (INAA). É um método de análise de ativação sem separação química elemental pós irradiação e as medidas da radioatividade induzida são realizadas por espectrometria gama[6].
- (d) Método Químico (RNAA). Este método envolve a separação radioquímica após a irradiação da amostra a ser analisada, para isolar um ou um grupo de elementos ou para eliminar nuclídeos interferentes. Os resultados são obtidos por análise espectral gama[6].

Neste trabalho, foi utilizado o método absoluto de análise por ativação com neutrons, para análise de amostras irradiadas. Para obtenção do fluxo de neutrons foi utilizada a técnica de ativação de folhas de ouro. O fluxo obtido experimentalmente foi comparado com o obtido por simulação usando o método de Monte Carlo.

MATERIAIS E MÉTODOS

Equipamentos e materiais utilizados na irradiação

Para o desenvolvimento deste trabalho utilizados foram utilizados os seguintes equipamentos e materiais.

- Irradiador: arranjo experimental de pequeno porte, com duas fontes de neutrons de AmBe de atividade 592GBq de Amerício (¹⁶Ci) cada .
- 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.
- Folhas de ouro e de cádmio, fabricante GoodFellow;
- Padrão de Bronze de 133,98g, NBS standard reference material
- Bloco de cobre de 3,5g
- Liga para prótese dentária, de Níquel/Cromo e Cromo/Cobalto disponíveis no mercado.
- Sal Comercial para alimentação, marca Cisne.

Irradiador

O irradiador é um arranjo experimental de pequeno porte que opera com fontes de neutrons, tem forma de um cilindro de aproximadamente 1,20m de comprimento e 0,85m 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). Foi desenvolvido para uma utilização de multiproposta, Figura 1.

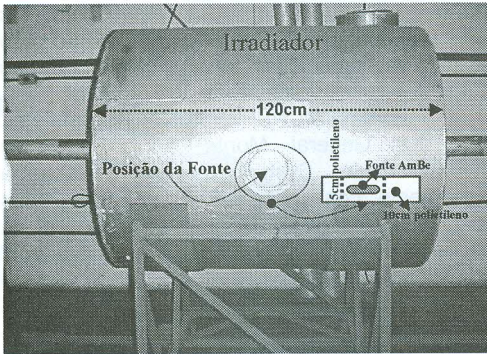


Figura 1 – Foto do Irradiador com detalhes da posição e da fonte de neutrons

Determinação do fluxo de neutrons.

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 do elemento de interesse na amostra analisada. Para a aplicação do método absoluto de análise por ativação o fluxo de neutrons 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) [8], visto que a introdução de qualquer sensor num campo neutrônico, provoca distorção no fluxo que está sendo avaliado. A equação do fluxo de neutrons, utilizando os fatores de correção (Fc), pode ser expressa por:

$$\Phi = \frac{C_{OBS} \cdot M \cdot \lambda}{N \cdot \sigma \cdot \epsilon \cdot m \cdot f \cdot F \cdot (1 - e^{-\lambda t_i}) \cdot e^{-\lambda t_c} \cdot (1 - e^{-\lambda t_c}) \cdot F_c} \quad (1)$$

sendo:

C_{obs} = Contagem observada;

M = massa atômica do elemento;

λ = constante de desintegração;

ϵ = eficiência do sistema de medidas;

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

σ = seção de choque para reação em cm^2 ;

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;

f_γ = fração de decaimento gama;

t_i = tempo de irradiação

t_e = tempo de espera

t_c = tempo de contagem.

RESULTADOS

A identificação do elemento irradiado foi feita pela sua energia 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 (ϵ) em função da energia do gama incidente, equação 2.

O espectro em energia da fonte de ^{152}Eu usada para calibração do sistema de medidas, é apresentado na Figura 2.

Na Figura 3 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 2, 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.

$$\epsilon = 0,02 + 0,17 \cdot e^{-E/200,66} \quad (2)$$

sendo:

ϵ = eficiência do sistema em função da energia

E = energia gama de interesse (keV)

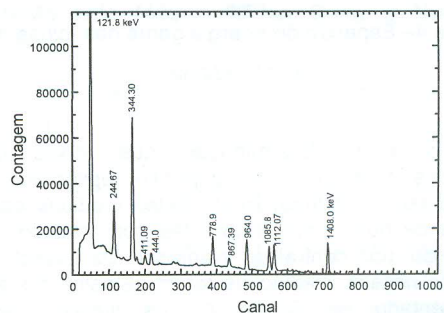


Figura 2 – Espectro de energia gama da fonte de ^{152}Eu

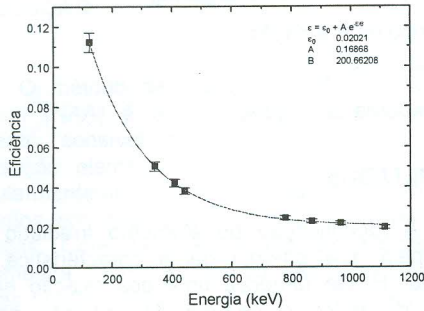


Figura 3.- Eficiência de detecção para fonte pontiforme. As barras em torno da representação gráfica dos pontos experimentais são a representação do erro da grandeza ajustada.

Na Figura 4 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.

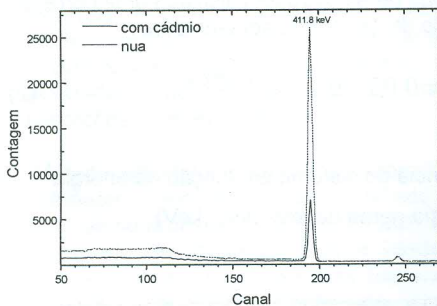


Figura 4– Espectro de energia gama das folhas de ouro irradiada

Para a determinação dos fluxos de neutrons: 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 4. Os fluxos foram calculados 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 neutrons emitidos pela fonte. Os valores das contagens integradas no pico do ouro das diversas medidas foram utilizados nos cálculos dos fluxos de neutrons do irradiador.

O Programa MCNP, versão 4B [Briemeister, 1997] (A General Monte Carlo N-Particle Transport Code System) é um programa mundialmente conhecido e utilizado em vários tipos de projetos e pesquisas em transporte de radiação envolvendo neutrons, fótons e elétrons. Este código possui um potencial que permite trabalhar com geometrias tridimensionais genéricas, que o torna uma ferramenta muito poderosa em cálculos onde a geometria não pode ser representada por formas regulares como cubos, esferas e cilindros.

O programa trabalha com bibliotecas de dados nucleares em energia contínua ou discreta dependendo das necessidades de cálculo, e permite também ao usuário, especificar uma variedade bem ampla de fontes, inclusive especificar distribuição de probabilidades independentes para os parâmetros de fonte, tais como: energia, posição e direção.

O código permite basicamente dois processos de simulação que são: o método análogo e o não-análogo. No método análogo os cálculos são realizados simulando-se as interações da partícula com a matéria de acordo com as probabilidades de ocorrência de cada tipo de interação como ocorreria na natureza. Entretanto, em alguns casos este tipo de simulação pode se tornar altamente dispendioso, de forma que, o código oferece uma vasta opção de técnicas não-análogas, que objetivam aumentar a eficiência de cálculo, reduzindo-se o tempo de processamento computacional, através das técnicas de redução de variância [Booth, 1985].

No presente cálculo de distribuição de fluxo e doses no irradiador modelou-se o irradiador bem como as fontes de Am-Be como mostrado na Figura 5. O espectro de emissão das fontes de neutrons para a simulação da emissão das partículas de fonte foi extraída de [J. W. Marsh et al. , 1995].

Na Figura 6 são apresentadas as distribuições dos fluxos de neutrons 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.

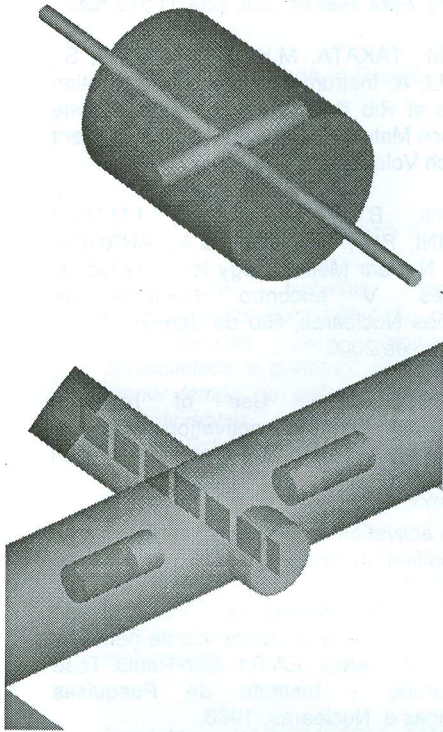


Figura 5 - Irradiador modelado usando MCNP, corte passando pelo centro do irradiador

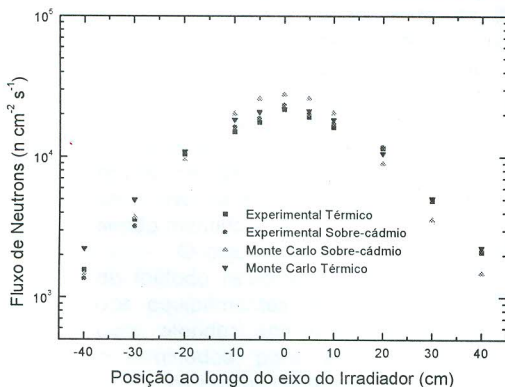


Figura 6 - Distribuição dos fluxos de neutrons ao longo do eixo do Irradiador, com o bloco de polietileno

Na Figura 7 são apresentadas as distribuições dos fluxos de neutrons ao longo do Irradiador, determinada sem o bloco de polietileno entre as fontes e o tubo central. As distribuições apresentadas foram obtidas experimentalmente e calculada usando o método de Monte Carlo.

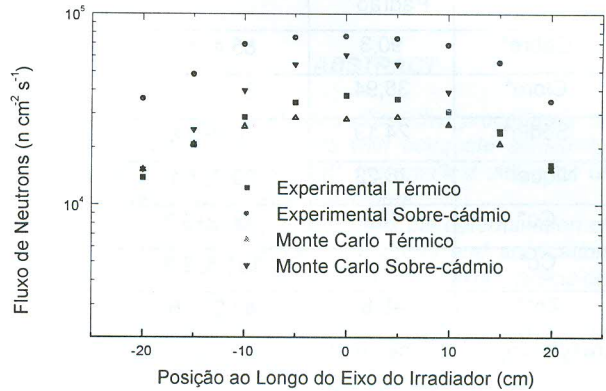


Figura 7 - Distribuição dos fluxos de neutrons ao longo do eixo do Irradiador, sem o bloco de polietileno

Os valores experimentais e os valores obtidos usando o método de Monte Carlo são apresentados nas figuras 6 e 7 e na Tabela 1.

Tabela 1 – Comparação dos valores dos Fluxos para posição central do Irradiador obtidos por Simulação pelo Método Monte Carlo e Neste Trabalho.

| Tipo de Nêutron | Monte Carlo ϕ ($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$) | | Este Trabalho ϕ ($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$) | |
|-----------------|--|-------------------|--|----------------------------|
| | Com Polietileno | Sem Polietileno | Com Polietileno | Sem Polietileno |
| Térmico | $6,176 \cdot 10^4$ | $6,19 \cdot 10^4$ | $2,11 \pm 0,08 \cdot 10^4$ | $3,75 \pm 0,14 \cdot 10^4$ |
| Sobre cádmio | $6,191 \cdot 10^4$ | $9,91 \cdot 10^4$ | $2,34 \pm 0,09 \cdot 10^4$ | $7,63 \pm 0,28 \cdot 10^4$ |

O valor do fluxo térmico obtido, para a posição central, foi utilizado para cálculo da fração F de constituintes de amostras. Foram usados materiais padrões como o bronze, níquel, prata, cobre, ligas e amostras de sal de cozinha comercial, para a avaliação de uso do irradiador.

Comparação da análise dos constituintes entre os obtidos neste trabalho e os valores padrão são apresentados na Tabela 2.

Tabela .2 – Comparação entre os valores padrão e calculado de F.

| 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)

CONCLUSÃO

Os resultados obtidos para: (a) fluxos de neutrons térmico, (b) e fluxos de neutrons 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.

Das figura 6 e 7 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, Desse modo pode-se trabalhar com o sistema mais simples. Os valores obtidos experimentalmente apresentam boa relação com os obtidos por simulação pelo método de Monte Carlo.

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

REFERÊNCIAS

- [1] RACOLTA, P. M.; Nuclear Methods for Tribology. Appl. Radiat. Isot. Vol. 46, No. 6/7, pp. 663-672, 1995.
- [2] 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.

- [3] BORSARU, M.; JENCY, Z.; Application of PGNA for bulk coal sample in a 4 π geometry. Appl. Radiat. Isot. (2001) 519-526.
- [4] 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
- [5] 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.
- [6] IAEA-TECDOC-1215; Use of research reactors for neutron activation analysis. Report of an Advisory Group meeting held in Vienna, 22-26 June 1998.
- [7] Neutron activation analysis; reactor@wpi.edu. Last modified: 02 june 2000.
- [8] 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.