

DETERMINAÇÃO DOS PARÂMETROS NUCLEARES α , f E TEMPERATURA DE NÊUTRONS NO REATOR TRIGA MARK I IPR R1.

Milton Batista Franco e Claudia de Vilhena S. Sabino

Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear – CDTN-CNEN/MG
Rua Mário Werneck S/N – Campus da UFMG – Pampulha – Belo Horizonte –MG.
CP 941 - CEP 30123-940

RESUMO

Este trabalho teve como objetivo determinar os parâmetros f , α , índice espectral e temperatura de nêutrons na mesa giratória e no tubo central do REATOR IPR-R1, para a implantação da metodologia paramétrica k_0 no CDTN. Os parâmetros foram determinados na mesa (girando e parada) e no tubo central: α foi determinado através do método de três monitores nus usando ^{197}Au , ^{94}Zr e ^{96}Zr , a determinação de f foi feita pelo método monitor bi-isotópico nu também usando o ^{94}Zr e ^{96}Zr , a temperatura de nêutrons foi calculada através do método direto usando ^{176}Lu , ^{94}Zr , ^{96}Zr e ^{197}Au , calcula-se a função $g(T_n)$ de Westcott para o ^{176}Lu e o resultado é interpolado na Tabela de GRINTAKIS et al [40], determinando assim a temperatura dos nêutrons.

Keywords: neutrons activation, parametric method, k_0 .

I. INTRODUÇÃO

A ativação neutrônica é uma técnica nuclear analítica qualitativa e quantitativa para determinação de elementos estáveis, baseada na transmutação nuclear provocada pela colisão de nêutrons com o núcleo e posterior medida da radiação produzida.

O processo envolve a preparação de amostras para irradiação, irradiação com nêutrons (geralmente térmicos e epitérmicos), detecção da radiação produzida (geralmente raios gama) e processamento de dados.

Inicialmente eram utilizados na medida e identificação de raios gama, detectores de cintilação de NaI (TI) que apresentavam baixa resolução em energia, o que devido ao grande número de radionuclídeos gerados, tornava necessária a separação radioquímica dos elementos para se eliminar a superposição de picos do espectro.

A partir da década de 60, com o advento dos detectores semicondutores de germânio de alta resolução aliado ao uso dos analisadores multicanais, houve um grande avanço na determinação de muitos elementos, eliminando em grande parte a necessidade e os erros do tratamento radioquímico.

Atualmente, estão disponíveis sofisticados programas de análise espectral, ferramentas poderosas na ativação neutrônica.

A técnica apresenta entre outras vantagens: a excelente sensibilidade (níveis de ppm, ppb ou mesmo ppt) que se consegue para muitos elementos, os sólidos fundamentos teóricos no qual está baseada, ser uma técnica não destrutiva, analisar vários tipos de matrizes e determinar vários elementos simultaneamente sem o uso de

reagentes químicos e manipulações com a amostra. É uma técnica analítica extremamente poderosa, onde todas as fontes de variação sistemáticas e aleatórias são facilmente identificáveis de maneira que entre outras aplicações é muito conveniente para certificação de materiais de referência.

Apesar de tudo isso, existem algumas desvantagens como a dependência de facilidades de irradiação (um reator nuclear) e as limitações impostas para manipulação de materiais radiativos.

Um outro obstáculo a seu uso, especialmente no caso de aplicações industriais, é o demorado procedimento de análise.

Na análise de traços e ultra-traços principalmente onde radionuclídeos de meia vida longa são envolvidos, os períodos de irradiação de muitas horas ou mesmo dias e tempos de medidas de até dezenas de horas por amostra são freqüentemente necessários (não esquecer também, períodos longos de espera que são ocasionalmente necessários para reduzir efeitos de matriz quando a análise é não destrutiva).

Muitos avanços têm sido alcançados dentro da técnica ao longo do tempo, visando principalmente ampliar o número de elementos analisados, realizando uma determinação com boa precisão e exatidão. Assim, métodos que se baseiam na produção de elementos de meia vida curta (na faixa de microssegundos a segundos), ativação com produção de raios gama prontos e os métodos paramétricos surgiram como ferramentas especiais dentro da técnica.

Entre os métodos paramétricos, o método de um simples comparador tem sido amplamente avaliado e

criticado desde 1965 e ao longo desse tempo tem demonstrado que é tão preciso e exato quanto o método relativo (análise por ativação neutrônica com o uso de padrões).

O método monopadrão foi inicialmente aplicado por FUKAI e MEINKE [4] na análise de amostras biológicas, mais tarde GIRARDI et al. [5] fizeram uma avaliação crítica do método e estabeleceram um fator para cada elemento usando dados relativos à irradiação e detecção obtidos com um comparador de cobalto. Esse método, no entanto, utilizava detectores de cintilação de NaI (Tl), adotava a convenção simples desenvolvida por HÖGDAHL [7] na qual não se considera desvios da lei $1/v$ para cálculo de secção de choque efetiva e limitava-se à uma posição de irradiação com baixo fluxo epitérmico, onde a distribuição de nêutrons não sofresse variações. Além disso, usava uma determinada geometria de detecção, de forma que a secção de choque efetiva para nêutrons (probabilidade da reação nuclear (n, g)) e a eficiência de detecção não variassem.

Posteriormente DE CORTE et al. [1,2] propuseram o método do comparador triplo, um método mais flexível que permitia a reavaliação do fator estabelecido para cada elemento, em relação à posição de irradiação usando comparadores de ouro, cobalto e índio. Paralelamente, DUBINSKAYA [3] estudou a aplicação de monitores de irradiação de cobre, mantendo a flexibilidade em relação à posição de irradiação.

Numa tentativa de tornar o método do comparador triplo ainda mais flexível em relação às condições de irradiação e também de medida, SIMONITS et al. [9,10] propuseram o método intitulado k_0 . Esse novo fator estabelecido independia do espectro de nêutrons na posição de irradiação e das características do detector utilizado, ou seja, o fator não incluía a secção de choque efetiva e a eficiência de detecção. Subseqüentemente trabalhos desenvolvidos procuraram aperfeiçoar esse método, testando novos monitores para determinação da razão entre fluxo térmico e epitérmico, corrigindo os desvios do fluxo epitérmico que afetam a integral de ressonância, publicando compilações de fatores nucleares, atualizando valores de integrais de ressonância e promovendo intercomparações.

Também KIM e STÄRK [8], tomando como base o método do comparador triplo, introduziram anteriormente ao método k_0 , uma outra versão do método monopadrão substituindo a convenção de Högdahl pela convenção de Wescott [11]

Através dos anos, muitas variantes dos métodos absolutos e de um simples comparador, vem sendo propostos e aplicados, e não há nenhuma dúvida de suas utilidades em muitos campos de aplicação da AAN (Análise por Ativação Neutrônica). Esses esforços, entretanto, não levaram a um procedimento combinando os méritos da simplicidade experimental, exatidão, excelente flexibilidade (irradiação e contagem) e conveniência para computação.

Estes quatro aspectos foram os principais responsáveis pelo surgimento em 1974 da idéia do método k_0 .

Este trabalho tem como objetivo determinar parâmetros nucleares em diversas posições de irradiação do reator TRIGA MARK I IPR R1 do CDTN com a finalidade

de utilização no método k_0 . Os parâmetros a serem calculados são:

- Relação f entre os fluxos de nêutrons térmicos (j_t) e epitérmicos (j_e);
- Fator a de correção para integrais de ressonância pela não idealidade da distribuição do fluxo de nêutrons epitérmicos;
- \rightarrow Temperatura de nêutrons, fator determinante na medida do desvio de comportamento da secção de choque na região térmica.

II. PARTE EXPERIMENTAL

As experiências foram feitas em oito posições simétricas da mesa giratória (mesa girando) e no tubo central. Para a determinação desses parâmetros, foram feitas 3 experiências na mesa e 4 no tubo central: a foi determinado através do método de três monitores nus usando ^{197}Au , ^{94}Zr e ^{96}Zr , a determinação de f foi feita pelo método do monitor bi-isotópico nu também usando o ^{94}Zr e ^{96}Zr , a temperatura de nêutrons foi calculada através do método direto usando ^{176}Lu , ^{94}Zr e ^{197}Au . Calcula-se a função $g(\text{Tn})$ de Westcott para o ^{176}Lu e o resultado é interpolado na tabela de GRINTAKIS et al [6] determinando assim a temperatura dos nêutrons.

Padrões e materiais de referência usados.

- ZrO_2 - óxido de zircônio JMC - Johnson Matthey Chemicals Limited.
- Zr - zircônio metálico 99,99% - JMC - Johnson Matthey Chemicals Limited.
- Zry-4, Zircaloy-4, 98,14% de Zr - NBS - National Bureau of Standards.
- LuO_2 , óxido de Lutécio 99 - JMC - Johnson Matthey Chemicals Limited.

Solução padrão de Au, concentração: 500 $\mu\text{g/mL}$ (a partir de folhas de ouro - NBS - National Bureau of Standards).

Solução padrão mista de elementos terras raras, concentração 100 $\mu\text{g/mL}$ - GFS Chemicals - Multielement Standard.

Amostras de referência de solos GXR-2, GXR-5 e GXR-6 da United States Geological Survey (USGS).

Amostras de referência SL-1 (sedimento de lago), Soil-5 e Soil-7 da International Atomic Energy Agency (IAEA).

Todos os resultados são expressos em base seca (secagem em estufa a 120^o por 24 horas).

A Tabela 1 abaixo apresenta as condições experimentais para determinação dos parâmetros

TABELA 1 - Condições Experimentais para Determinação de α , f e T

Experiência	Mesa giratória	Irradiação	Tubo central	Irradiação
01	<ul style="list-style-type: none"> • 50mg de Zr (ZrO₂) • 25µg de Lu • 2,5µg de Au 	4 Horas	<ul style="list-style-type: none"> • 50mg de Zr (ZrO₂) • 2µg de Lu • 2,5µg de Au 	1 Hora
02			<ul style="list-style-type: none"> • 450 mg de Zr • 30µg de Lu • 5µg de Au 	1 Hora
03	<ul style="list-style-type: none"> • 600mg de Zry-4 • 40µg de Lu • 6µg de Au 	4 Horas	<ul style="list-style-type: none"> • 225 mg de Zry-4 • 30µg de Lu • 2,5µg de Au 	2,5 Horas
04	<ul style="list-style-type: none"> • 510mg de Zr • 60 µg de Lu • 12,5 µg de Au 	4 Horas	<ul style="list-style-type: none"> • 255mg de Zr • 30 µg de Lu • 6 µg de Au 	2,5 Horas

Determinação de α . Os métodos para determinação experimental de α podem ser classificados em três grandes grupos fundamentais: medida da razão de cádmio e irradiação com e sem cobertura de cádmio, incluindo uma série de conjuntos de monitores de ativação com determinadas características. Foi usado no nosso trabalho o **método de tres monitores sem cobertura de cádmio.**

Este método consiste em irradiar três monitores descobertos. α pode ser determinado usando a seguinte equação:

$$(a - b)Q_{0,1}(\acute{a}) - aQ_{0,2}(\acute{a}) + bQ_{0,3}(\acute{a}) = 0 \quad (1)$$

com

$$a = \frac{1}{1 - \frac{A_{sp,2} k_{0,Au(1)} e_{p,1}}{A_{sp,1} k_{0,Au(2)} e_{p,2}}} \quad (2)$$

e

$$b = \frac{1}{1 - \frac{A_{sp,3} k_{0,Au(1)} e_{p,1}}{A_{sp,1} k_{0,Au(3)} e_{p,3}}} \quad (3)$$

Os índices 1, 2 e 3 se referem ao ⁹⁷Zr, ⁹⁵Zr e ¹⁹⁸Au, respectivamente.

$$Q_0(\mathbf{a}) = \frac{I_0(\mathbf{a})}{s_0} \quad (4)$$

I_0 e s_0 são a integral de ressonância e secção de choque respectivamente

Determinação de f . Entre os vários métodos para determinação da razão entre os fluxos térmico e epitérmico, o mais usado de forma experimental, em qualquer canal de um reator é o multiisotópico utilizando um monitor que contenha ao menos dois isótopos com boas características de medição isto é: não apresentem desvios significativos da lei $1/v$ e que seus valores de $Q_0 = I_0/\sigma_0$ sejam bastante afastados entre si. O zircônio com seus dois isótopos fundamentais, ⁹⁵Zr e ⁹⁷Zr, é um dos monitores que melhor atende a essas características [1,7,9]

$$f = \frac{j_t}{j_e} \quad (5)$$

$$= \frac{F_{abe,1} \frac{k_{0,c}(1) e_{g,1}}{k_{0,c}(2) e_{g,2}} Q_{0,1}(\mathbf{a}) - F_{abe,2} \frac{A_{esp,1}}{A_{esp,2}} Q_{0,2}(\mathbf{a})}{F_{abt,2} \frac{A_{esp,1}}{A_{esp,2}} - F_{abt,1} \frac{k_{0,c}(1) e_{g,1}}{k_{0,c}(2) e_{g,2}}} \quad (6)$$

onde F_{abe} e F_{abt} são fatores de correção pela auto blindagem dos nêutrons epitérmicos e térmicos respectivamente, que são sempre menores ou igual a 1.

Determinação do índice espectral e da temperatura de nêutrons. Seguindo os procedimentos de De Corte et al [1,6,11], o índice espectral ou índice de Westcott

$r(\mathbf{a}) \sqrt{\frac{T}{T_0}}$ é uma medida da relação entre o fluxo epitérmico e total definido por:

$$r(\mathbf{a}) \sqrt{\frac{T}{T_0}} = \frac{\sqrt{p} j_e}{2 j_t} \quad (7)$$

onde T e T_0 são as temperaturas neutrônica e 293,6 K respectivamente.

Constitui um parâmetro único, podendo ser determinado experimentalmente pelo método das razões de cádmio, ou pela correlação entre pares de monitores bi-isotópicos, por exemplo o zircônio. A equação a aplicar neste caso é:

$$r(\mathbf{a})\sqrt{\frac{T}{T_0}} = \frac{\frac{k_{0,1} \mathbf{e}_{g,1}}{k_{0,2} \mathbf{e}_{g,1}} g(T)_1 - \frac{A_{esp,1}}{A_{esp,2}} g(T)_2}{\frac{A_{esp,1}}{A_{esp,2}} S_{0,2}(\mathbf{a}) - \frac{k_{0,1} \mathbf{e}_{g,1}}{k_{0,2} \mathbf{e}_{g,1}} S_{0,1}(\mathbf{a})}} \quad (8)$$

Os índices 1, 2 e 3 se referem a ^{97}Zr , ^{95}Zr e ^{198}Au , respectivamente.

Para a medida da temperatura neutrônica foi utilizado um método absoluto, isto é sem usar nenhum sítio de irradiação com temperatura conhecida como referência.

A determinação é baseada na simples co-irradiação de Lu e um monitor “ $1/v$ ” [$g(T)=1$], seguida de subsequente medida das atividades induzidas em um detector de germânio, calibrado em eficiência

$$\frac{\left[\frac{A_{esp} M}{\mathbf{q}_g \mathbf{S}_0 \mathbf{e}_g} \right]_{Lu}}{\left[\frac{A_{esp} M}{\mathbf{q}_g \mathbf{S}_0 \mathbf{e}_g} \right]_{1/v}} = \frac{g_{Lu}(T)+r(\mathbf{a})\sqrt{\frac{T}{T_0}} S_{0,Lu}(\mathbf{a})}{g_{1/v}(T)+r(\mathbf{a})\sqrt{\frac{T}{T_0}} S_{0,1/v}(\mathbf{a})} \quad (9)$$

onde

$$S_0 = \frac{2I'}{\sqrt{ps_0}}, \quad I' \text{ é a integral de ressonância reduzida}$$

Os resultados encontrados estão apresentados na **Tabela 2**

TABELA 2 - Parâmetros Determinados no Reator TRIGA IPR R1: Considerando os Valores de α

Parâmetro	a	f (f_t/f_e)	Fluxo térmico (f_t)	Fluxo epitérmico (f_e)	Índice espectral	Tempe- ratura de nêutrons ($T, ^\circ\text{C}$)
Mesa giratória	$0,037 \pm 0,004$	24 ± 2	$6,0 \times 10^{11}$ \pm $7,0 \times 10^{10}$	$2,5 \times 10^{10}$ $2,9 \times 10^9$	$0,036 \pm 0,002$	40 ± 3
Tubo central	$0,017 \pm 0,003$	18 ± 4	$2,9 \times 10^{12}$ \pm $9,8 \times 10^{11}$	$1,6 \times 10^{11}$ \pm $4,0 \times 10^{10}$	$0,051 \pm 0,009$	

III. CONCLUSÕES

Uma das vantagens do reator IPR-R1 para uso de metodologias paramétricas entre elas o método k_0 é a estabilidade de fluxo. Além disso, por ser um reator de pesquisa de baixa potência (100 keV), o índice espectral apresenta um valor baixo, resultado justamente de fluxos menos energéticos, sendo minimizadas, por esta razão, as chances de reações de limiar: (n, α), (n, p) e de fissão (n, f) além de prováveis desvios do fluxo da idealidade (lei 1/E).

O envolvimento de vários parâmetros e variáveis como vimos permite uma visão ampla do método e ao mesmo tempo exige um maior controle dos dados desde a preparação das amostras até o processamento de dados.

O método além de oferecer a vantagem de determinação em faixas variadas de teores (ppb a %) e elementos adicionais se comparado ao método relativo, o método é capaz de elucidar problemas de interferências e limitações que possam ocorrer na determinação de qualquer elemento, garantindo dessa forma confiabilidade nos resultados produzidos.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] DE CORTE, F. **The k_0 standardization method**; a move to the optimization of neutron activation analysis. Gent: Ryksuniversiteit Gent, Faculteit Van de Wetenschappen, 1986. 464 p.
- [2] DE CORTE, F.; SPEECKE, A.; HOSTE, J. Reactor neutron activation analysis by a triple comparator method, **Journal of Radioanalytical Chemistry**. v. 3 p. 205-215, 1971.
- [3] DUBINSKAYA, N. A.; PELEKIS, L. L. The application of monitors in neutron activation analysis. **Journal of Radioanalytical Chemistry**. v. 9, p. 61-72, 1971.
- [4] FUKAI, R.; MEINKE, W. W., Some activation analysis of six Trace elements in marine biological ashes. **Nature**, v. 184, p. 815-816, 1959
- [5] GIRARDI, F.; GAUZZI, G.; PAULY, J. Reactor neutron activation analysis by the single comparador

method. **Analytical Chemistry**. v. 37, n. 9, p. 1085-1092, 1965.

[6] GRYNTAKIS, E. M.; KIM, J. I. Absorption, activation and fission $g(T_n)$ functions for non $1/V$ nuclides. **Radiochimica Acta**, v. 22, p. 128-147, Dec. 1975.

[7] HØGDAHL, T. Radiochemical methods of analysis, proceeding series, **International Atomic Energy Agency**, Vienna. V. 1, p. 23-40, 1965.

[8] KIM, J. I., STARK, H. Proceeding in activation analysis in geochemistry and cosmochemistry, **NATO**, advanced study institute, Kjeller, Norway, 7-12 Sept. 1970.

[9] SIMONITS, A.; DE CORTE, F.; HOSTE, J. Single comparison methods in reactor neutron activation analysis. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 24, p. 31-46, Mar. 1975.

[10] SIMONITS, A.; DE CORTE, F.; HOSTE, J. Zirconium as a multi-isotopic flux ratio monitor and a single comparator in reactor-neutron activation analysis, **Journal of Radioanalytical Chemistry**. v. 31, p. 467-486, 1976.

[11] WESTCOTT, C. H.; WALKER, W. H.; ALEXANDER, T. K. Effective cross sections and cadmium ratios for the neutron spectra of thermal reactors. In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON PEACEFUL USES OF ATOMIC ENERGY, 2, 1958, Geneva. **Proceedings** Geneva: United Nations, 1958. v. 16, p. 70-76.

ABSTRACT

This research intends to determine the nuclear parameters \mathbf{a} , \mathbf{f} and neutron temperature in several irradiations positions of the TRIGA MARK I IPR-R1 reactor, to implant the parametric method \mathbf{k}_0 of neutrons activation analysis in the CDTN. At the time the parameters were determined at the rotatory rack, lower layer and in the central thimble: \mathbf{a} was calculated applying the three bare monitor method using ^{197}Au , ^{94}Zr and ^{96}Zr ; \mathbf{f} determination was done according to the bare bi - isotopic method; neutron temperature was calculated through the direct method using ^{176}Lu , ^{94}Zr , ^{96}Zr and ^{197}Au and the Westcott's $\mathbf{g}(T_n)$ function for the ^{176}Lu was calculated and the result was interpolated in the GRINTAKIS Table [6], determining the neutron temperature.