

UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS

DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA NUCLEAR

Programa de Pós-Graduação em Ciências e Técnicas Nucleares

**ESTUDO DA VIABILIDADE DE APLICAÇÃO DO MÉTODO *PROMPT GAMMA*
NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS (PGNAA) NO REATOR TRIGA IPR-R1**

Bruno Teixeira Guerra

BELO HORIZONTE

2016

Bruno Teixeira Guerra

**ESTUDO DA VIABILIDADE DE APLICAÇÃO DO MÉTODO *PROMPT GAMMA*
NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS (PGNAA) NO REATOR TRIGA IPR-R1**

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Ciências e Técnicas Nucleares da Escola de Engenharia da Universidade Federal de Minas Gerais, como requisito parcial para à obtenção do título de Doutor em Ciências e Técnicas Nucleares.

Área: Ciência das Radiações

Orientador: Dra. Maria Ângela de Barros
Correia Menezes

Coorientador: Dr. Alexandre Soares Leal

Escola de Engenharia da UFMG

Belo Horizonte

2016

G934e	<p>Guerra, Bruno Teixeira.</p> <p>Estudo da viabilidade de aplicação do método Prompt Gamma Neutron <u>Activation Analysis</u> (PGNAA) no reator TRIGA IPR-R1 [manuscrito]. / Bruno Teixeira Guerra. – 2016. xii, 112 f., enc.: il.</p> <p>Orientadora: Maria Ângela de Barros Correia Menezes. Coorientador: Alexandre Soares Leal.</p> <p>Tese (doutorado) Universidade Federal de Minas Gerais, Escola de Engenharia.</p> <p>Anexos: f. 111-112. Bibliografia: f. 100-110.</p> <p>1. Engenharia nuclear - Teses. 2. Análise por ativação nuclear - Teses. 3. Método de Monte Carlo - Teses. 4. Reatores nucleares - Teses. I. Menezes, Maria Ângela de Barros Correia. II. Leal, Alexandre Soares. III. Universidade Federal de Minas Gerais. Escola de Engenharia. IV. Título.</p> <p style="text-align: right;">CDU: 621.039(043)</p>
-------	--



FOLHA DE APROVAÇÃO

ESTUDO DA VIABILIDADE DE APLICAÇÃO DO MÉTODO PROMPT GAMMA NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS (PGNA) NO REATOR TRIGA IPR-R1

BRUNO TEIXEIRA GUERRA

Tese submetida à Banca Examinadora designada pelo Colegiado do Programa de Pós-Graduação em CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES, como requisito parcial para obtenção do grau de Doutor em CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES, área de concentração CIÊNCIAS DAS RADIAÇÕES.

Aprovada em 05 de dezembro de 2016, pela banca constituída pelos membros:

Dra. Maria Ângela de Barros Correia Menezes - Orientadora
PCTN - CDTN/CNEN

Dr. Alexandre Soares Leal - Co-orientador
CDTN/CNEN

Profa. Cláudia Pereira Bezerra Lima
Departamento de Engenharia Nuclear - UFMG

Dra. Telma Cristina Ferreira Fonseca
CDTN/CNEN

Dr. Luiz Claudio Andrade Souza
CDTN/CNEN

Dr. Amir Zacarias Mesquita
CDTN/CNEN

Belo Horizonte, 5 de dezembro de 2016.

AGRADECIMENTOS

Agradeço primeiramente a DEUS por ter colocado os desafios no meu caminho e, juntamente com eles, pessoas maravilhosas com as quais pude contar.

À Profa. Dra. Maria Ângela de Barros Correia Menezes pela orientação, apoio, incentivos e amizade.

Ao Prof. Dr. Alexandre Soares Leal pela coorientação, oportunidade e estímulo.

À Profa. Dra. Cláudia Pereira Bezerra Lima por sua generosidade em compartilhar seu conhecimento e, assim, tendo um papel fundamental na conclusão deste estudo.

À minha mãe, Andréa; aos meus irmãos, Fernando e Flávia, por me apoiarem em mais uma etapa de minha vida.

Ao meu avô Maurilo em quem procuro me espelhar e minha avó Maria Aparecida por ter sido peça fundamental na minha criação e educação.

Aos meus padrinhos Antônio Márcio e Vera Lúcia, que me deram grande apoio durante toda minha formação acadêmica.

Aos meus amigos, irmãos por escolha, Leandro, Leo, Raquel, Guilherme, Francisco Wagner, Quirino e Farnese.

Aos professores e funcionários do Departamento de Engenharia Nuclear da UFMG, Prof^a Ângela, Prof^a Maria Auxiliadora, Prof^a Antonella, Prof. Arno Heeren, Prof. Clarysson Alberto, Aline, Nanci e Thales. Aos amigos de trabalho Marinho, Danilo, Fabiano, Arione, Barbara, André, Campolina, Francisco Muniz, Flávia, Regina, Paulinho, Jean, Rochkhudson, Carlos, Telma e Janine.

E tantos outros familiares e colegas que porventura não citei, mas que estiveram comigo ao longo desta jornada, aos quais também dedico este trabalho e apreço.

Ao CNPq, CAPES, FAPEMIG, CNEN pelo financiamento dos projetos de interesse deste trabalho e ao CENAPAD-MG pela utilização do cluster.

RESUMO

O reator de pesquisa TRIGA Mark I IPR-R1 está localizado no Centro de Desenvolvimento de Tecnologia Nuclear (CDTN), Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), em Belo Horizonte, Brasil. O reator opera a 100 kW, mas a configuração do seu núcleo permite o aumento da potência para até 250 kW. Ele tem sido usado em pesquisas, treinamento de operadores de reator e na produção de radioisótopos. O estabelecimento da análise por ativação neutrônica pelo método *Prompt Gamma* (PGNAA) no reator TRIGA IPR-R1 aumentará significativamente os tipos de matrizes analisadas, bem como o número de elementos químicos. Além disso, complementar a análise de ativação de nêutrons.

Este trabalho apresenta um modelo proposto de uma instalação do PGNAA a ser instalado no TRIGA IPR-R1. O modelo proposto é baseado em um tubo quase vertical como um guia de nêutrons do núcleo do reator, dentro da piscina do reator, 6 m abaixo do nível da sala de onde deve ser localizado o rack que contém o conjunto de amostra/detector /blindagem. Assim, o objetivo deste estudo é verificar a viabilidade de estabelecer o método PGNAA no IPR-R1 através do estudo teórico aplicado ao código de Monte Carlo.

A viabilidade do estabelecimento do método PGAA foi avaliada através dos cálculos do fluxo de nêutrons, das taxas de reação de captura radioativa e dos limites de detecção para alguns isótopos que foram realizados. De acordo com os resultados obtidos, pode-se concluir que é possível estabelecer o método PGAA no reator IPR-R1, mesmo com algumas restrições em seu modelo teórico calculado pelo MCNP.

Palavras-chave: Análise de Ativação Neutrônica por Gamas Pronto, PGNAA; Análise por Ativação Neutrônica, reator TRIGA; MCNP.

ABSTRACT

The TRIGA Mark I IPR-R1 research reactor is located at Nuclear Technology Development Centre (CDTN), Brazilian Commission for Nuclear Energy (CNEN), in Belo Horizonte, Brazil. The reactor operates at 100 kW but the core configuration allows the increasing of the power up to 250 kW. It has been applied research, training and radioisotopes production. The establishment of the Prompt Gamma Neutron Activation Analysis (PGNAA) method at the TRIGA IPRR1 reactor will significantly increase the types of matrices analysed as well as the number of chemical elements. Additionally it will complement the neutron activation analysis.

This work presents a proposed design of a PGNAA facility to be installed at the TRIGA IPR-R1. The proposed design is based on a tube as a neutron guide from the reactor core, inside the reactor pool, 6 m below the room's level where shall be located the rack containing the set sample/detector/shielding. Thus, the aim of this study is to verify the feasibility to establish the PGNAA method in IPR-R1 through theoretical study applying the Monte Carlo code.

The feasibility of establishing the PGAA method at the IPR-R1 installations was evaluated through of the calculations of neutron flux, radioactive capture reaction rates and detection limits for some isotopes. According to the obtained results, it can be concluded that is possible to establish the PGAA method at the IPR-R1 reactor, even with some restrictions in its theoretical design calculated by MCNP.

Keywords: Prompt Gamma Neutron Activation Analysis, PGNAA, Neutron Activation Analysis; TRIGA Research Reactor; MCNP.

SUMÁRIO

LISTA DE FIGURAS.....	ix
LISTA DE TABELAS.....	xi
LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS	xii
1 INTRODUÇÃO.....	1
1.1 JUSTIFICATIVA	4
1.2 OBJETIVOS	6
2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA	7
2.1 O reator de pesquisa TRIGA Mark I IPR-R1	7
2.2 Análise por Ativação Neutrônica.....	13
2.2.1 <i>Características da análise por ativação neutrônica em relação a outros métodos de análise.....</i>	<i>14</i>
2.3 ANÁLISE POR ATIVAÇÃO NEUTRÔNICA - GAMAS PRONTO – PGNAA	22
2.3.1 <i>Aplicações.....</i>	<i>30</i>
2.4 O Método de Monte Carlo	36
2.4.1 <i>Monte Carlo N-Partículas – MCNP</i>	<i>37</i>
3 METODOLOGIA.....	41
3.1 Modelagem do reator TRIGA IPR-R1 com extrator vertical	41
3.2 Modelagem do sistema proposto para a aplicação do PGNAA.....	44
3.3 Validação da metodologia	47
3.4 Cálculos de fluxo de nêutrons no sistema proposto para a aplicação do PGNAA	50
3.5 Cálculos de fluxo de nêutrons, taxa de reação e limite de detecção em amostras.....	51
3.6 Comparação dos limites de detecção	53
3.7 Dose na sala do reator TRIGA IPR-R1 com a instalação do sistema PGNAA.....	53
4 RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	55
4.1 Modelagem do reator TRIGA IPR-R1 com extrator vertical	55
4.2 Modelagem do sistema proposto para a aplicação do PGNAA.....	56
4.3 Validação da metodologia	59
4.4 Cálculos de fluxo de nêutrons no sistema proposto para a aplicação do PGNAA	62
4.5 Cálculos de fluxo de nêutrons, taxa de reação (n , γ) e limite de detecção em amostras.....	68
4.6 Comparação dos limites de detecção	82
4.7 Dose na sala do reator TRIGA com a instalação do sistema PGNAA	88
5 CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS FUTURAS.....	91
6 REFERÊNCIAS.....	93
ANEXO.....	104

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 – Reator de pesquisa TRIGA IPR-R1 (MESQUITA, 2005).....	8
Figura 2 – Configuração do núcleo do reator TRIGA IPR-R1 (MESQUITA, 2005)	9
Figura 3 – Foto do Extrator de Nêutrons (AMORIM, 1987)	11
Figura 4 – Esquema do Extrator de Nêutrons instalado no poço do Reator TRIGA IPR-R1, vista lateral (COSTA <i>et al.</i> , 2002b).....	12
Figura 5 – Vista de cima do Extrator de Nêutrons mostrando as duas posições possíveis do mesmo: descanso e operação (COSTA <i>et al.</i> , 2003b)	12
Figura 6 – Diagrama simplificado ilustrando a sequência de eventos de uma típica reação ...	14
Figura 7 – Tubo guia e detectores do PGNAA do Instituto de Isótopos da Hungria.....	27
Figura 8 – Detalhes do porta-amostra e detector do PGNAA, Instituto de Isótopos da Hungria	28
Figura 9 – Diagrama esquemático do sistema PGNAA do Instituto de Isótopos da Hungria..	28
Figura 10 – PGNAA no NIST , Texas, EUA	29
Figura 11– Sistema do PGNAA, no NIST adaptado de MOLNAR (2004)	29
Figura 12 – Histórico de vida de um nêutron interagindo com um meio material.....	39
Figura 13 – Vista axial do IPR-R1, desenvolvido no MCNP por DALLE (2004)	42
Figura 14 – Vista axial do IPR-R1, desenvolvido no MCNP por GUERRA (2011)	42
Figura 15 – Poço do Reator TRIGA IPR-R1 (VELOSO, 2005)	43
Figura 16 – Extrator de Nêutrons instalado no poço do Reator TRIGA IPR-R1, vista lateral (COSTA <i>et al.</i> , 2002b)	43
Figura 17 – Sistema PGNAA proposto: vista de perfil no interior do poço do IPR-R1	45
Figura 18 – Vista axial do poço do reator IPR-R1 com o extrator de nêutrons angulado.....	45
Figura 19 – Esquema proposto: vista superior do sistema PGNAA, no IPR-R1	46
Figura 20 – Esquema proposto: sistema PGNAA, no IPR-R1	46
Figura 21 – Seção de choque microscópica de captura ENDF/B-VII.1 (NDS-IAEA, 2016) ..	52
Figura 22 – Modelo da estrutura do reator TRIGA IPR-R1 com extrator vertical, MCNP5 ...	56
Figura 23 – Modelo do sistema PGNAA, MCNP5	57
Figura 24 – Modelo do sistema PGNAA, VISED.....	59
Figura 25 – Fluxo de nêutrons térmicos ($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$) no extrator de nêutrons vertical.....	62
Figura 26 – Modelo do sistema PGNAA, MCNP5	63
Figura 27 – Fluxo de nêutrons ($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$) ao longo do extrator de nêutrons angulado no reator IPR-R1.....	65
Figura 28 – Caracterização do Fluxo de nêutrons ($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$) longo do extrator de nêutrons angulado no IPR-R1	65
Figura 29 – Espectro do fluxo de nêutrons ao longo do extrator angulado (10 cm)	66
Figura 30 – Fluxo de nêutrons térmicos longo do extrator de nêutrons vertical e angulado....	68
Figura 31 – Câmaras de Irradiação do Sistema PGNAA proposto	69
Figura 32 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^1H	70
Figura 33 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^1H	70
Figura 34 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^1H	70

Figura 35 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{23}Na	71
Figura 36 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{23}Na	71
Figura 37 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{23}Na	71
Figura 38 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{27}Al	72
Figura 39 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{27}Al	72
Figura 40 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{27}Al	72
Figura 41 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{28}Si	73
Figura 42 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{28}Si	73
Figura 43 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{28}Si	73
Figura 44 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{40}Ca	74
Figura 45 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{40}Ca	74
Figura 46 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{40}Ca	74
Figura 47 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{45}Sc	75
Figura 48 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{45}Sc	75
Figura 49 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{45}Sc	75
Figura 50 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{48}Ti	76
Figura 51 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{48}Ti	76
Figura 52 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{48}Ti	76
Figura 53 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{51}V	77
Figura 54 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{51}V	77
Figura 55 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{51}V	77
Figura 56 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{57}Fe	78
Figura 57 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{57}Fe	78
Figura 58 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{57}Fe	78
Figura 59 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{58}Ni	79
Figura 60 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{58}Ni	79
Figura 61 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{58}Ni	79
Figura 62 – Limite de detecção da amostra de ^1H	82
Figura 63 – Limite de detecção da amostra de ^{23}Na	83
Figura 64 – Limite de detecção da amostra de ^{27}Al	83
Figura 65 – Limite de detecção da amostra de ^{28}Si	84
Figura 66 – Limite de detecção da amostra de ^{40}Ca	84
Figura 67 – Limite de detecção da amostra de ^{45}Sc	85
Figura 68 – Limite de detecção da amostra de ^{48}Ti	85
Figura 69 – Limite de detecção da amostra de ^{51}V	86
Figura 70 – Limite de detecção da amostra de ^{57}Fe	86
Figura 71 – Limite de detecção da amostra de ^{58}Ni	87
Figura 72 – Modelo 1 do reator IPR-R1, sem extrator de nêutrons, MCNP5	89
Figura 73 – Modelo 2 do reator IPR-R1 com a inserção do sistema PGNAA – MCNP5	89

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 – Valores dos fluxos de nêutrons na mesa giratória do reator TRIGA IPR-R1	10
Tabela 2 – Lista Cronológica de instalações do PGNAA utilizando reatores.....	30
Tabela 3 – Projetos de pesquisa e desenvolvimento em métodos nucleares ligados à segurança	33
Tabela 4 – Fração atômica típica em algumas substâncias	33
Tabela 5 – Resumo de alguns dos Laboratórios que aplicam a AAN e/ou PGNAA	34
Tabela 6 – Aplicações de geradores de nêutrons.....	35
Tabela 7 – Códigos baseados no Monte Carlo	37
Tabela 8 – Fluxos de nêutrons térmicos determinados experimentalmente (MENEZES <i>et al.</i> , 2008) e por simulação (GUERRA, 2013a) em posições de irradiação na mesa giratória.....	60
Tabela 9 – Fluxo de nêutrons térmicos no extrator de nêutrons vertical.....	61
Tabela 10 – Fluxo de nêutrons e o fator f, ao longo do extrator de nêutrons angulado no IPR-R1 (5 cm - 100 kW).....	64
Tabela 11 – Fluxo de nêutrons e o fator f, ao longo do extrator de nêutrons angulado no IPR-R1 (10 cm - 100 kW).....	66
Tabela 12– Fluxo de nêutrons ($n \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) ao longo do extrator de nêutrons angulado no IPR-R1 (10 cm - 250 kW).....	67
Tabela 13 – Fluxo de nêutrons ($10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) ao longo da amostra.....	80
Tabela 14 – Taxa de reação (reação $\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$) de captura radioativa (n, γ) ao longo da amostra	81
Tabela 15 – Limite de detecção (g)	87
Tabela 16 – Dose de radiação gama ($\mu\text{Sv/h}$).....	90
Tabela 17 – Dose de nêutrons ($\mu\text{Sv/h}$)	90

LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

AAN	Análise por Ativação Neutrônica
BNCT	<i>Boron Neutron Capture Therapy</i>
CDTN	Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear
CENAPD-MG Gerais	Centro Nacional de Processamento de Alto Desempenho para Minas Gerais
CNEN	Comissão Nacional de Energia Nuclear
DGNAA	<i>Delayed-gamma neutron activation analysis</i> ou análise por ativação neutrônica pelo método <i>Delayed-gamma</i>
IPR-R1	Instituto de Pesquisas Radioativas – Reator 1
NIST	<i>National Institute of Standards and Technology</i>
PGNAA	<i>Prompt Gamma Neutron Activation Analysis</i> ou análise por ativação neutrônica pelo método <i>Prompt Gamma</i>
RNI	Radionuclídeo Indicador
TP	Terminal Pneumático
TRIGA	Training Research Reactor Isotope General Atomic

1 INTRODUÇÃO

Reatores de fissão são dispositivos que permitem iniciar, manter e controlar reações de fissão nuclear. Eles podem ser projetados para diversos fins, como por exemplo, os reatores nucleares de potência que são utilizados na produção de energia elétrica. Os reatores nucleares de pesquisa são mais comumente usados como fontes de nêutrons para pesquisas científicas e no uso de técnicas analíticas nucleares (SNOJ *et al.*, 2011). Além disso, eles têm sido utilizados como uma ferramenta de produção de radionuclídeos para vários estudos em radiobiologia, medicina nuclear (EHRHARDT *et al.*, 1998), também no meio ambiente, bem como em química analítica, através da técnica de análise por ativação neutrônica, AAN (DE SOETE *et al.*, 1972).

Eles são utilizados por diversas áreas da ciência para investigação das propriedades da matéria, desenvolvimento de novos materiais, neutronografia, produção de radioisótopos, aplicações industriais e na agricultura além de tratamentos e exames médicos (DALLE, 2005).

A aplicação da técnica de análise por ativação neutrônica pode ser descrita como realizada em duas etapas, sendo a primeira a irradiação por nêutrons de uma amostra havendo a produção de radioanuclídeos e, a segunda, a medida dos raios gama característicos emitidos por esses radionuclídeos. Quando a medida é a do raio gama emitido pela perda de excitação do núcleo composto formado logo após a captura do nêutron é chamado de gama pronto ou *prompt gamma*, a técnica é classificada como *Prompt Gamma Neutron Activation Analysis* (PGNAA) ou análise por ativação neutrônica pelo método *Prompt Gamma* (MOLNAR, 2004). Quando é medido o raio gama de decaimento do radionuclídeo formado, a técnica é classificada como *Delayed-gamma neutron activation analysis* (DGNAA) ou análise por ativação neutrônica pelo método *Delayed-gamma* ou apenas AAN (De SOETE *et al.*, 1972).

Há vários tipos de fontes de nêutrons (reatores nucleares, aceleradores de partículas, as fontes naturais) que podem ser utilizados para realizar tanto a AAN como o PGNAA. No entanto, a utilização destes métodos com reatores nucleares representam mais de 90% de todas as suas aplicações (KELLNER *et al.*, 2004).

No Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear/Comissão Nacional de Energia Nuclear (CDTN/CNEN), em Belo Horizonte, está instalado o reator de pesquisa TRIGA IPR-R1 do tipo Mark I, fabricado pelo General Atomics – Califórnia, que está em operação desde 1960 (TÓFANI e PAIANO, 1989; DALLE, 2005).

Vários estudos têm sido desenvolvidos com o propósito de ampliar cada vez mais a utilização do reator IPR-R1. Dentre os principais estudos estão: ampliação da aplicação do método k_0 de ativação neutrônica, a investigação dos mecanismos envolvidos para a melhoria das gemas brasileiras, treinamento de operadores de centrais nucleares e de reatores de pesquisa, aplicações neutrônicas e em termo-hidráulica, produção de radioisótopos para indústrias e produção de radiofármacos para estudos em bancada (GONÇALVES *et al.*, 2011; GUERRA, 2011; JACIMOVIC *et al.*, 2002; LEAL *et al.*, 2011; LEAL *et al.*, 2006a; LEAL *et al.*, 2006b; LEAL *et al.*, 2006c; LEAL *et al.*, 2007; REIS *et al.*, 2015; SALOMÉ, 2012; SOARES *et al.*, 2012; ZAMBONI, 2007).

O IPR-R1 dispõe de diversos dispositivos de irradiação, sendo um no núcleo do reator, denominado tubo central, outro ao redor do núcleo, que é a mesa giratória e dois terminais pneumáticos, TP1 e TP2. O tubo central é um dispositivo onde o fluxo de nêutrons no reator IPR-R1 é máximo.

Um tubo vertical já foi instalado no poço do reator nos anos 80 para extrair o fluxo de nêutrons (extrator de nêutrons vertical) e utilizá-lo em diversos experimentos. Entretanto, desde a sua instalação, ele tem sido pouco usado por razões diversas (COSTA *et al.*, 2002a; COSTA *et al.*, 2002b; COSTA *et al.*, 2002c; COSTA *et al.*, 2003a; COSTA *et al.*, 2003b).

O estabelecimento do método de ativação de “gama pronto” (*prompt gamma*), está entre as metas de ampliação da utilização do reator IPR-R1, que complementaria o leque de aplicações da análise por ativação neutrônica (DE SOETE *et al.*, 1972), pois possibilitaria a análise de elementos leves (H, B, C, N, Si, P, S) que não são determinados pela AAN (SZENTMIKLÓSI, 2006, SZENTMIKLÓSI *et al.*, 2010).

A AAN apresenta diversas vantagens como, por exemplo, independência do estado do elemento, não tem influência da matriz, é técnica multielementar, além de ser precisa e exata, porém, não realiza a análise de alguns elementos, como H, B, C, Si, Pb e outros, devido às suas propriedades nucleares que não são favoráveis à análise por AAN. No entanto, tem havido um aumento na demanda, evidenciando a necessidade de determinação dos elementos que não são analisados pela AAN, principalmente em amostras ambientais.

Neste cenário, o estabelecimento do método PGNAA no CDTN seria uma possibilidade de expandir a utilização do reator IPR-R1, de complementar a utilização da técnica AAN e de atender à demanda de análise dos elementos não determinados pela AAN. É importante mencionar que, além disso, o PGNAA é um método de análise multi-elementar

rápido, não destrutivo e eficiente (MOLNAR, 2004; PAUL, LINDSTROM, 2000; NAQVI, NAGADI, KHATEEB-UR-REHMAN, 2003). Uma vantagem adicional da aplicação do PGNAA é o desenvolvimento de tecnologias mais eficientes na identificação e ao combate do tráfico e contrabando de produtos ilícitos tais como explosivos, contaminantes químicos e material físsil, devido ao fato de ser eficiente na análise desses materiais.

Com a combinação dos dois métodos (DGNAA e PGNAA) seria possível a determinação de quase todos os elementos da Tabela Periódica (IAEA, 2007), ampliando as medidas realizadas pelo no CDTN, atendendo, assim, aos mais diversos setores da pesquisa e produção.

Visando avaliar a viabilidade do estabelecimento do PGNAA no CDTN, foi realizada uma visita, em setembro de 2007, ao Laboratório de PGNAA do Instituto de Isótopos (*Hungarian Academy of Sciences Centre for Energy Research*) em Budapeste/Hungria, laboratório de referência na Europa neste método (MTAEK, 2016). Nesta visita, foram observadas as instalações, os equipamentos, o funcionamento do sistema e os custos associados.

Em contrapartida, em 2008, o Prof. Zsolt Revay veio ao CDTN para conhecer as instalações do reator IPR-R1 e avaliação das possibilidades de instalação do PGNAA. Através do extrator de nêutrons vertical do reator IPR-R1, foi realizada a análise preliminar do fluxo de nêutrons térmicos ao longo do tubo. O fluxo de nêutrons térmicos obtido na posição mais distante do reator foi de $5,2 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Devido à comparação da medida obtida dentro do extrator de nêutrons vertical, em sua posição mais distante do núcleo do reator, com a posição proposta para a irradiação das amostras foi possível estimar um fluxo equivalente de $1,0 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, aceitável para aplicações em PGNAA (LEAL *et al.*, 2011; MOLNAR, 2004).

Observou-se que os laboratórios de outros países que aplicam o método PGNAA, utilizam como fonte de nêutrons um reator nuclear que geralmente, tem design estrutural que permite a extração do fluxo de nêutrons de forma horizontal (NAQVI *et al.*, 2003).

Para estabelecer o PGNAA no CDTN, diversas dificuldades teriam que ser contornadas, pois o reator IPR-R1, está localizado abaixo do nível do solo. Devido às normas de radioproteção, o sistema de detecção não poderia ser instalado sobre a grade do poço (GUERRA *et al.*, 20013a, GUERRA *et al.*, 2013b, GUERRA *et al.*, 2015). Assim, o extrator de nêutrons para a aplicação do PGNAA no reator IPR-R1 foi idealizado como sendo um cilindro oco inserido sobre o centro do reator e angulado (chamado extrator de nêutrons

angulado), extraindo assim os nêutrons gerados no reator para fora do poço de maneira que todo o sistema de detecção contendo as blindagens, a amostra e o detector não ficassem localizados diretamente sobre o poço do reator.

Um dos principais objetivos deste estudo foi avaliar se o fluxo de nêutrons que estivesse alcançando a posição sugerida para analisar as amostras seria adequado para a aplicação do método PGNAA, mesmo com as restrições estruturais acima mencionadas. O menor fluxo de nêutrons encontrado para aplicação do PGNAA nas instalações que utilizam reatores nucleares como uma fonte de nêutrons é de aproximadamente $10^5 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, de acordo com a literatura MOLNAR (2004), PAUL e LINDSTROM (2000).

A extração do fluxo de nêutrons do poço do reator tem como finalidade a indução da reação de captura radioativa na amostra, pois esta é a principal reação para a aplicação do método PGNAA. Portanto, outro objetivo deste estudo foi calcular as taxas de reação de captura radioativa e os limites de detecção para alguns isótopos. Por meio destes cálculos, pode ser avaliada a viabilidade da aplicação do método PGNAA nas instalações do reator TRIGA IPR-R1. Para executar esses estudos, optou-se por fazer um estudo teórico de viabilidade aplicando o Código MCNP.

1.1 JUSTIFICATIVA

Ao longo dos anos, o reator IPR-R1 tem sido estudado e modelado utilizando o código MCNP (Monte Carlo N-partículas), BRIESMEISTER, 2003. Esses estudos foram validados por meio de comparação dos resultados obtidos em simulações do reator IPR-R1 com dados experimentais (DALLE, 2005; GUERRA, 2011; GUERRA *et al.*, 2013; SALOMÉ *et al.*, 2014; SILVA *et al.*, 2011, SILVA *et al.*, 2014).

O código MCNP é uma ferramenta empregada nas mais diversas áreas nucleares, como por exemplo, calcular o K_{eff} , a fluência de nêutrons, a dose de diferentes tipos de radiação, a taxa de reação, dentre outros. Portanto, através do MCNP5 é possível realizar todos os cálculos mencionados anteriormente e verificar a viabilidade da instalação do sistema proposto para a aplicação do método PGNAA.

O CDTN tem condições estruturais para que seja instalado o PGNAA, pois parte dos equipamentos necessários para montagem estão disponíveis ou poderão ser alocados nele. Nessa montagem fazem parte, blindagens, extrator de nêutrons e detector gama. O material restante poderá ser adquirido através de recursos obtidos de agências de fomento.

Além disso, o emprego e desenvolvimento de tecnologias utilizando feixes de nêutrons têm vasto campo de aplicações, o que permitirá a ampliação das pesquisas que necessitam de feixes de nêutrons caracterizados, como a neutronografia, análise de DNA, proteínas e outras estruturas biológicas (COSTA, 2002a; COSTA *et al.*, 2002b; COSTA *et al.*, 2002c; COSTA, 2003a; COSTA, 2003b).

O desenvolvimento de uma metodologia teórica para um estudo mais aprofundado da viabilidade de aplicação do método PGNAA, se fez necessário. Esta pesquisa é de relevância, devido não só ao fato de a aplicação deste método ser de tecnologia inédita no Brasil, como também por ser estabelecida com uma configuração única no mundo, por se basear em um extrator de nêutrons angulado utilizado para a aplicação do PGNAA. O emprego e desenvolvimento de tecnologias utilizando feixes de nêutrons, como o PGNAA, que tem vasto campo de aplicações, permitirá a análise de um leque maior de elementos, como o H, B, C, N, Si, Ni, P e S.

1.2 OBJETIVOS

Constituiu o objetivo principal deste estudo, verificar a viabilidade de ser estabelecido um sistema para a aplicação do método PGNAA no reator de pesquisa TRIGA IPR-R1, por meio do estudo teórico utilizando o código de Monte Carlo N-partículas - MCNP.

Os objetivos específicos foram:

- Estudar o modelo do reator TRIGA IPR-R1 já desenvolvido por DALLE (2005), GUERRA (2011), SILVA (2011) e SALOMÉ (2014);
- Modelar: o poço e a sala do reator, o extrator de nêutrons vertical e angulado, a mesa giratória, as amostras (nas posições da mesa giratória e no local para a aplicação do PGNAA) e as blindagens necessárias;
- Validar este modelo ajustado: através da comparação dos resultados do fluxo de nêutrons na mesa giratória e no extrator de nêutrons vertical obtidos utilizando o MCNP5 com dados experimentais;
- Calcular o fluxo de nêutrons, utilizando o MCNP5, no extrator de nêutrons angulado, a fim de avaliar se o fluxo que chega à posição de irradiação da amostra seja suficiente para a aplicação do PGNAA;
- Calcular a taxa de reação de captura para alguns elementos e assim determinar seus respectivos limites de detecção e compará-los com modelos encontrados na literatura;
- Calcular as doses: gama e de nêutrons na sala do reator com e sem a inserção do extrator de nêutrons angulado.

2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

2.1 O reator de pesquisa TRIGA Mark I IPR-R1

Reatores nucleares de pesquisa são equipamentos empregados na análise das propriedades de materiais, produção de radioisótopos, análises químicas por ativação neutrônica, criação de novos materiais e treinamento e formação de pessoal. Com isso, eles são ferramentas eficientes para utilização nas mais variadas linhas de pesquisa e prestação de serviços (LEAL *et al.*, 2006b; LEAL *et al.*, 2006c; LEAL *et al.*, 2007; MENEZES *et al.*, 2003; MENEZES *et al.*, 2006a; MENEZES *et al.*, 2006b).

O reator nuclear utilizado no desenvolvimento desta pesquisa é o reator TRIGA IPR-R1 do tipo Mark I, fabricado pela *General Atomic*, San Diego, Califórnia, adquirido pelo antigo Instituto de Pesquisas Radioativas (IPR), da Escola de Engenharia da UFMG. Este instituto atualmente é o Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear/Comissão Nacional de Energia Nuclear (CDTN/CNEN).

O reator IPR-R1 teve sua primeira criticalidade em 6 de novembro de 1960. Inicialmente, ele operava a uma potência máxima de 30 kW e no ano de 1973, passou a ser operado a 100 kW. Atualmente, sua potência máxima pode atingir 250 kW, mas ainda está sendo utilizado em uma potência de 100 kW, aguardando ser licenciado para operar na potência mais elevada (DALLE, 2005; GUERRA, 2011; MENEZES *et al.*, 2003; REVAY, 2008; MESQUITA, 2005; SALOMÉ *et al.*, 2014; SILVA *et al.*, 2011; SILVA *et al.*, 2014; ZANGIROLAMI, 2009; ZANGIROLAMI *et al.*, 2010).

Reatores do tipo *Training Research Isotope General Atomic* (TRIGA) se caracterizam por terem um sistema de segurança intrínseco devido, principalmente, ao seu coeficiente pronto-negativo. Outra característica de segurança é a retenção elevada dos produtos de fissão no combustível, mesmo que o revestimento venha a sofrer falha. Além disso, há um sistema passivo de remoção de calor no núcleo durante as operações de acordo com o fabricante (GA, 2015).

O IPR-R1 tem o núcleo situado abaixo do piso, no fundo de um poço cilíndrico, cujo topo encontra-se a 25 cm abaixo do nível da sala e possui um diâmetro interno de 1,92m a uma profundidade de 6,62 m, conforme mostrado na Figura 1 (MESQUITA, 2005).

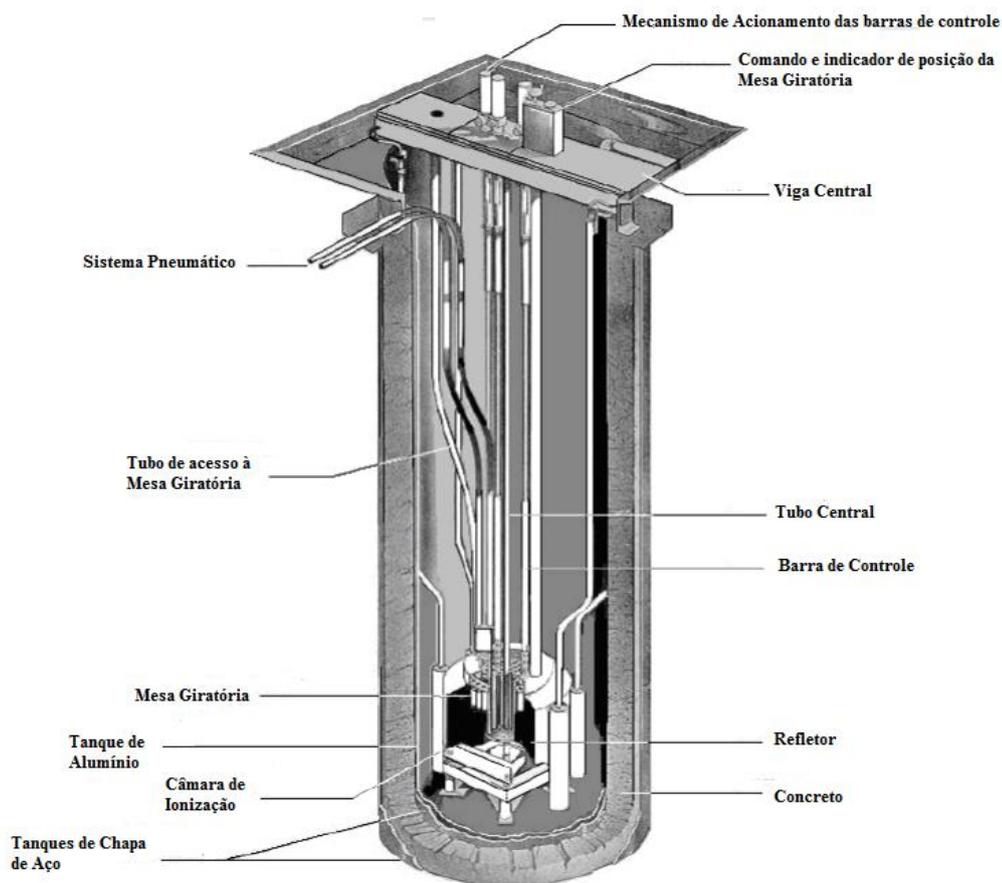


Figura 1 – Reator de pesquisa TRIGA IPR-R1 (MESQUITA, 2005)

O poço é ocupado por cerca de 18.000 litros de água desmineralizada que atua como refrigerante do reator, cooperando no processo de moderação e reflexão dos nêutrons e também servindo como blindagem biológica às radiações provenientes do núcleo.

Atualmente, o núcleo do reator é formado por 91 cilindros, onde são distribuídos 63 elementos combustíveis-moderadores (59 revestidos com alumínio e 4 com aço inoxidável), 23 elementos refletores de grafita, três barras de controle, uma fonte de nêutrons (Ac-Be) e um tubo central de irradiação. A Figura 2 mostra a configuração atual do núcleo do reator.

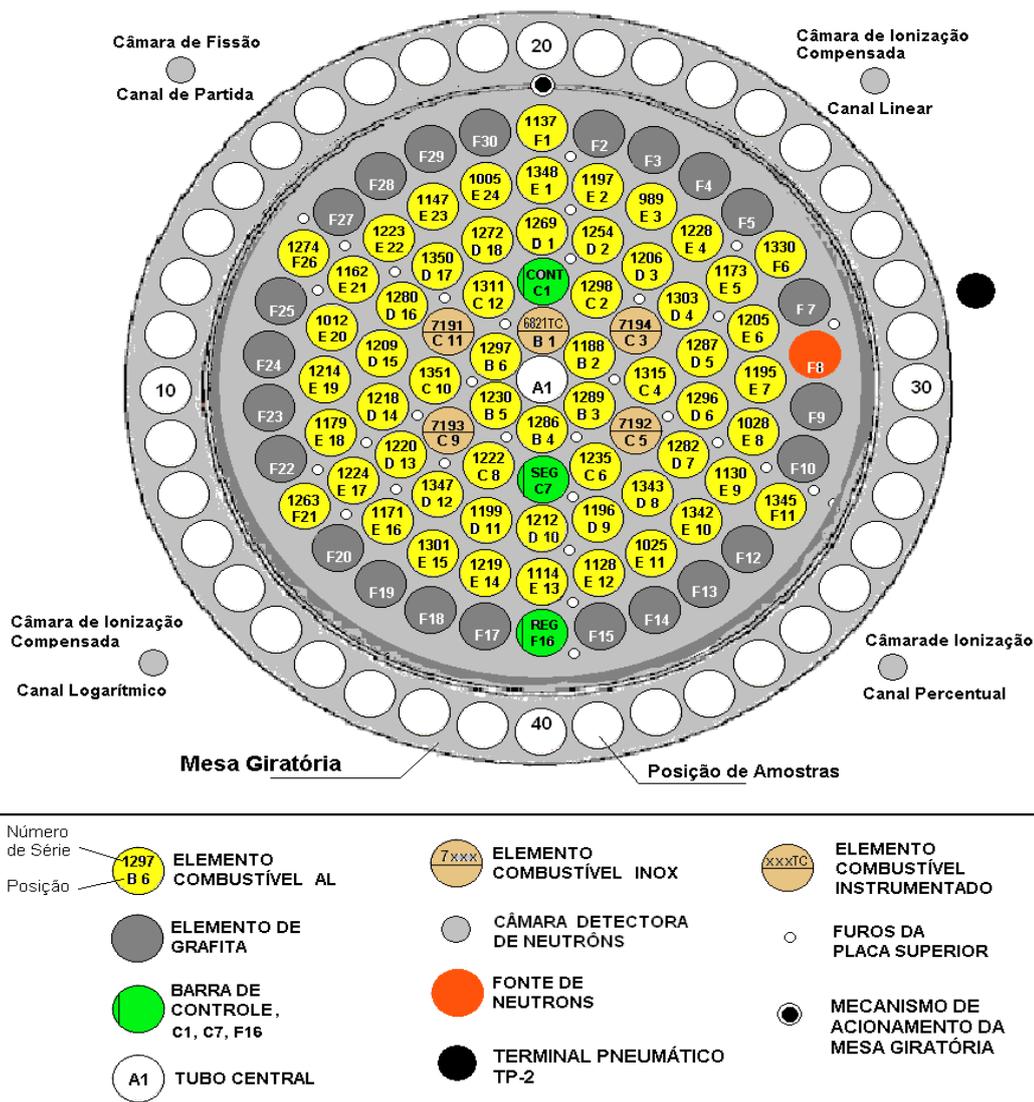


Figura 2 – Configuração do núcleo do reator TRIGA IPR-R1 (MESQUITA, 2005)

No reator TRIGA IPR-R1 há vários dispositivos de irradiação: tubo central, mesa giratória e dois terminais pneumáticos. As principais utilizações atuais do reator são a produção de radioisótopos, a análise por ativação neutrônica (MENEZES *et al.*, 2003; MENEZES *et al.*, 2006a; MENEZES *et al.*, 2006b; MENEZES, JACIMOVIC, 2006c; JACIMOVIC *et al.*, 2003b) e também tem sido utilizado para a produção de radiofármacos em estudos de bancada (LEAL *et al.*, 2006b; LEAL *et al.*, 2006c).

O tubo central é um dispositivo imerso em água, que permite irradiar pequenas amostras na posição onde o fluxo de nêutrons no reator IPR-R1 é máximo (Figura 2).

Já a mesa giratória, é constituída por 40 posições de irradiação na camada inferior e de 40 na camada superior, perfazendo um total de 80 posições.

O cálculo dos fluxos de nêutrons é imprescindível para a aplicação da técnica AAN e por este motivo os fluxos no IPR-R1, principalmente na mesa giratória, têm sido determinados ao longo dos anos, como se pode observar na Tabela 1.

Tabela 1 – Valores dos fluxos de nêutrons na mesa giratória do reator TRIGA IPR-R1

Ano	Autor	Amostra	Potência (kW)	Fluxo Térmico ($10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)	Fluxo Epitérmico ($10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)
1962	FERREIRA, 1962	Au, com e sem cobertura de Cd (experimental)	30	4,5	Não informado
			100	15	
1975	SANTORO, 1975	Detector de Cobalto (experimental)	100	42	Não informado
1985	GUIMARÃES, 1985	Detector de Cádmiio (experimental)	100	6,7	Não informado
2005	DALLE, 2005	Cilindro de ar (simulado, MCNP)	100	8,0	Não informado
			250	20	
1995	FRANCO, 2006	ZrO ₂ ; LuO ₂ ; Au (experimental)	100	5,9	2,7
2003	MENEZES, 2006	Liga de Al-Au (0,1%) e Zr, com e sem cobertura de Cd (experimental)	100	6,30	2,91
2009	ZANGIROLAMI, <i>et al.</i> , 2010	Liga de Al-Au (0,1%) (experimental)	100	8,1	3,4
2011	GUERRA, 2011	Liga de Al-Au (0,1%) (simulado, MCNP)	100	6,65	Não informado
2012	SALOMÉ, 2012	Liga de Al-Au (0,1%) (simulado, MCNP)	100	6,52	Não informado

Além do tubo central e da mesa giratória, há dois terminais pneumáticos, sendo um dedicado à dosagem de urânio pelo método de nêutrons retardados de fissão, o TP2, e o outro está sendo adaptado para irradiações de curta duração, TP1 (GUERRA, 2011). O terminal pneumático é um sistema de sucção de ar que permite a introdução e retirada rápida de amostras para ativação e análise de elementos com meia-vida curta. O terminal de irradiação se aloja na periferia do refletor.

Na década de 70, iniciaram-se no CDTN, pesquisas para o desenvolvimento do extrator de nêutrons (colimador), com o objetivo de conduzir para a saída do poço do reator um feixe de nêutrons a fim de utilizá-lo para vários fins, como (COSTA, 2003a):

- desenvolver e aplicar novas técnicas de irradiação;
- realizar medidas de seções de choque microscópicas de diversos isótopos;
- implementar a técnica de neutrongrafia;

- implementar técnicas para aplicações futuras na área de medicina;
- medir parâmetros característicos de física nuclear e de reatores;
- aplicações didáticas.

Na década de 80, o extrator de nêutrons foi instalado, mas desde então tem sido pouco utilizado, com apenas um trabalho encontrado na literatura sobre sua aplicação em neutrongrafia (COSTA *et al.*, 2002c). O extrator de nêutrons (cilindro vertical) está instalado sobre a mesa giratória. Através dele é possível extrair o fluxo de nêutrons do poço, Figuras 3 a 5.



Figura 3 – Foto do Extrator de Nêutrons (AMORIM, 1987)

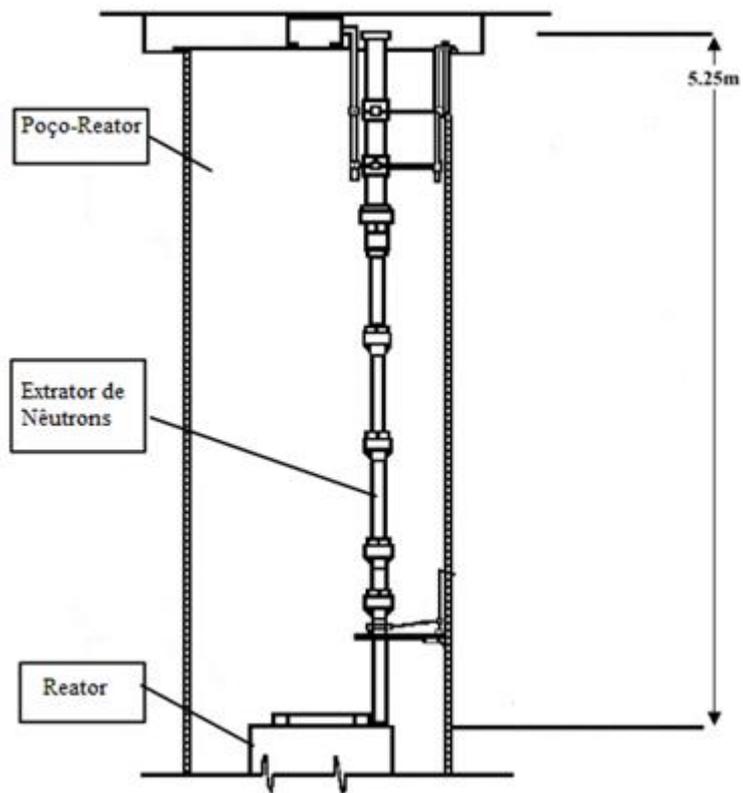


Figura 4 – Esquema do Extrator de Nêutrons instalado no poço do Reator TRIGA IPR-R1, vista lateral (COSTA *et al.*, 2002b)

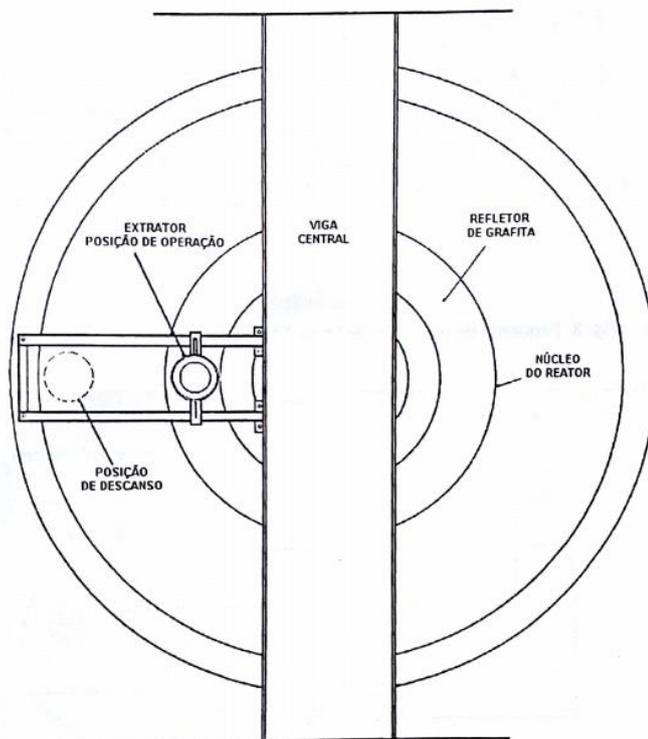


Figura 5 – Vista de cima do Extrator de Nêutrons mostrando as duas posições possíveis do mesmo: descanso e operação (COSTA *et al.*, 2003b)

O extrator de nêutrons do CDTN é um colimador composto por dois cilindros de alumínio de 2 mm de espessura de parede, com diâmetros de 10 e 15 cm e comprimento de 525 cm. Os nêutrons passam pelo cilindro de 10 cm e emergem pelo cilindro de 15 cm. Ao longo do tubo, anéis de chumbo revestidos com chapa de alumínio estão fixados. Um fator que limitou as dimensões do extrator foi a segurança física do reator, pois maiores dimensões exigiriam maior blindagem e aumentariam riscos de acidentes durante a movimentação do sistema sobre o poço reator.

Diversos testes foram realizados (AMORIM, 1987) na época da instalação do extrator, quando foi concluído que o uso do extrator de nêutrons não acarretaria alterações na rotina de operação do reator e não modificaria os parâmetros de segurança e funcionamento do mesmo.

2.2 Análise por Ativação Neutrônica

Em 1934, Enrico Fermi descobriu a ativação de elementos químicos por meio da exposição desses elementos a um fluxo de nêutrons. Em seguida, a técnica de Análise por Ativação Neutrônica - AAN – foi fundamentada na descoberta por Hevesy e Levi em 1936. Eles observaram que amostras contendo terras raras tornavam-se radioativas após serem expostas a uma fonte de nêutrons e que a atividade induzida decrescia em diferentes matrizes com diferentes constantes de decaimento, sugerindo que esta técnica poderia ser utilizada para a obtenção de informações sobre a composição das amostras (DE SOETE *et al.*, 1972; PARRY, 2003; ZAMBONI, 2007).

Ao longo do tempo, a AAN foi sendo consolidada como uma técnica multielementar, com elevada exatidão e precisão na concentração da ordem de traços a percentagem. Hoje em dia, com um expressivo aumento em seu campo de aplicações, passou a ser reconhecida como uma técnica primária na certificação de amostras de referência certificadas (BODE *et al.*, 2009).

Mesmo com o surgimento de novas técnicas analíticas não nucleares, a ativação neutrônica continua sendo uma técnica analítica muito utilizada, por ser capaz de determinar muitos elementos da Tabela Periódica, cerca de 50 - dependendo das condições técnicas do laboratório - necessitando apenas de uma fonte de nêutrons, uma pequena amostra e detectores, sem destruí-la.

A técnica se baseia na indução da radioatividade artificial, quando uma amostra é submetida a um fluxo de nêutrons. Esses nêutrons, ao sofrerem interação com uma fração dos núcleos dos átomos da amostra, podem ser capturados tornando o núcleo que os absorveu em um núcleo composto (isótopo radioativo ou radioisótopo). O núcleo ao absorver um nêutron, transformando assim em um radioisótopo, passa a um estado de maior energia. Como tudo na natureza tende a voltar para seu estado fundamental (estado de menor energia), ele sofre um rearranjo em sua estrutura interna, fazendo com que seu núcleo passe de um nível mais energético para um menos energético. Uma das formas para que isso ocorra é o decaimento radioativo através da emissão de um ou mais γ . Esses raios γ emitidos, prontos e retardados, têm faixas de energia caracterizadas para cada radioisótopo que os emite. Ao medir a energia desses raios γ é possível identificar os elementos e determinar suas concentrações na amostra (DE SOETE *et al.*, 1972).

A Figura 6 ilustra as reações que ocorrem em uma reação (n, γ) (MOLNAR, 2004).

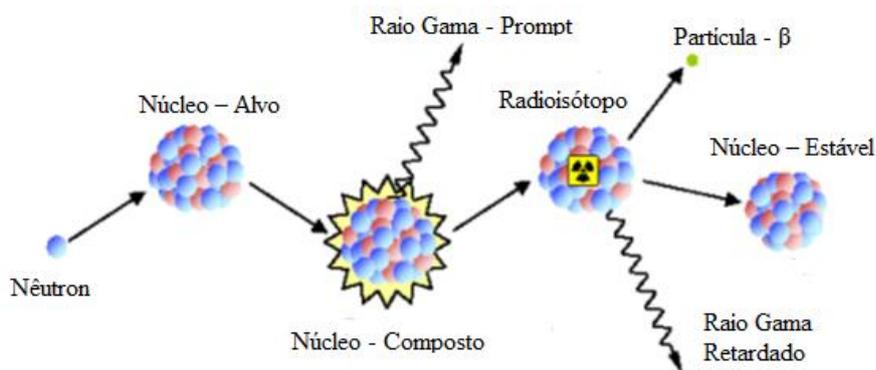


Figura 6 – Diagrama simplificado ilustrando a sequência de eventos de uma típica reação (n, γ) adaptado de MOLNAR (2004)

2.2.1 Características da análise por ativação neutrônica em relação a outros métodos de análise

Os métodos de aplicação da AAN podem ser empregados utilizando diferentes tipos de fontes de nêutrons (reatores, aceleradores de partículas, fontes naturais) fazendo com que cada uma tenha características próprias para sua aplicação. A aplicação da AAN através do uso de reatores nucleares corresponde a mais de 90% de todas as aplicações desta técnica (DE SOETE *et al.*, 1972; KELLNER, *et al.*, 2004).

Outras técnicas de análise, como a espectrometria de absorção atômica, a espectrometria atômica de plasma induzido, espectrometria de massa, dentre outras necessitam da decomposição das amostras por reagentes químicos (KELLNER *et al.*, 2004).

O principal fator limitante destas técnicas, quando aplicadas na determinação dos elementos, são os riscos de contaminação. Como pode ser aplicada de forma instrumental, ou seja, sem haver destruição química da amostra, os riscos de perda ou contaminação são quase nulos. Mesmo quando as separações radioquímicas são aplicadas, os riscos também são minimizados.

As vantagens e desvantagens de AAN estão descritas a seguir (KELLNER *et al.*, 2004).

Vantagens:

- cerca de 70% dos elementos químicos naturais podem ser analisados, porque eles têm propriedades nucleares adequadas para a análise;
- é uma técnica de análise multielementar, uma vez que em uma mesma amostra diversos elementos são analisados simultaneamente, o que representa uma grande vantagem sobre as outras técnicas analíticas;
- é uma técnica versátil, pois permite diversas formas de tratamento físico e/ou químico da amostra antes e/ou depois da irradiação;
- oferece baixa ocorrência de interferências durante a análise;
- aplicada de forma instrumental não é necessário a solubilização ou tratamento químico da amostra, exigência de análise de outras técnicas analíticas, como a espectrometria de absorção atômica ou espectrometria de massa (ICPMS);
- é uma técnica praticamente livre de contaminação química pois não há possibilidade de contaminação após a irradiação;
- é uma técnica seletiva, devido, principalmente, a propriedades nucleares diferentes (seção de choque e tipo de reação) para elementos com propriedades químicas iguais;
- usualmente analisa pequena quantidade de amostra, da ordem miligramas, qualidade importante quando dispõe de pouca amostra, por ser ela rara ou de difícil obtenção;
- apresenta sensibilidade e aplicabilidade determinando elementos na ordem de concentração de traços em uma grande variedade de matrizes como água e efluentes aquosos, materiais biológicos (como tecidos humanos, alimentos, plantas, etc.), solo, sedimento, minério, gemas particulados em suspensão no ar, petróleo, ligas metálicas, etc.).

Desvantagens:

- dependência de grandes instalações de irradiação, como reatores, quando o objetivo é aplicar a técnica em toda a sua extensão;
- necessidade de manuseio de material radioativo;
- dependendo do elemento de interesse e da sua concentração longos períodos de irradiação e decaimento são necessários a técnica para determinar elementos, não compostos;
- não identifica o composto, porque é uma análise de elementos.

De acordo com a literatura (KELLNER *et al.*, 2004), a análise por ativação neutrônica baseia-se na conversão de um nuclídeo estável (A) do elemento a ser determinado em um radionuclídeo (B), chamado de radionuclídeo indicador (RNI), por uma reação de captura radiativa. A reação é induzida quando um material alvo, a amostra, é exposto a um fluxo de nêutrons (x). Esta reação nuclear pode ser representada como:

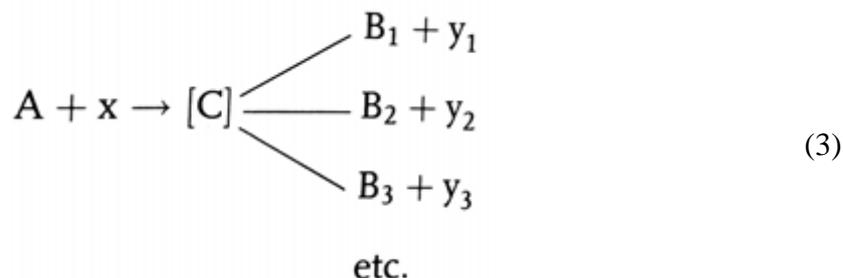


Ou na forma de notação curta:



onde y é um fóton γ emitido, e o valor Q é a quantidade de energia liberada ou absorvida na reação. Se o Q for positivo, a energia é libertada e a reação é exotérmica, mas se Q for negativo, a reação é endotérmica, ou seja, requer energia, que deve ser fornecida sob a forma de energia cinética da partícula projétil.

Nas reações nucleares utilizados pela análise por ativação, especialmente para NAA, o mecanismo predominante é a formação de núcleos compostos (C na Equação 1, tempo de meia vida 10^{-20} - 10^{-14} s). Esse mecanismo consiste em dois passos: a captura do nêutron para formar um núcleo composto no estado de excitação e o decaimento do núcleo composto por meio da emissão de partículas acompanhado de emissão de fótons. Certo núcleo composto formado pela captura da partícula incidente pode decair de diferentes modos e probabilidades:



Considerando a Equação 1, (R) é a taxa de reação do radionuclídeo indicador B, que é expressa como:

$$R = \sigma \phi n_A \quad (4)$$

onde, R apresenta o número de reações por centímetros cúbicos por segundo no material (reações $\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$), σ é a secção de choque microscópica da reação dada em cm^2 (1 barn) corresponde a 10^{-24}cm^2) (DE SOETE *et al.*, 1972). A secção de choque microscópica é a grandeza que representa a probabilidade de que uma reação entre uma partícula ou fóton e um núcleo, ou seja, de que uma reação nuclear aconteça; ϕ é o fluxo de nêutrons dado em $\text{n cm}^{-2} \text{s}^{-1}$. O número de núclídeos da amostra irradiada n_A pode ser obtido a partir da massa m do elemento presente na amostra; o peso atômico do elemento A_w , a fração da abundância isotópica do nuclídeo reativo, f_a , pode variar no intervalo entre 3×10^{-5} para o ^{46}Ca e 1 em relação ao ^{27}Al ; e N_A é o número de Avogadro. A Equação para o número de núclídeos alvo pode ser escrita como:

$$n_A = \frac{m}{A_w} f_a N_A \quad (5)$$

No entanto, o radionuclídeo B durante a irradiação decai com uma taxa de decaimento que é proporcional à constante de decaimento λ tendo um valor característico para cada radionuclídeo e o número de núcleos radioativos presente, n_B . Consequentemente, a variação da taxa de radioatividade é regulada pela diferença entre a taxa de produção R e a taxa de decaimento λn_B :

$$\frac{dn_B}{dt} = R - \lambda n_B \quad (6)$$

É mais conveniente usar o tempo de meia vida $t_{1/2}$ em vez da constante de decaimento λ obtido a partir da relação:

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (7)$$

Por solução da Equação (6) e considerando as Equações (4), (5) e (7), a Equação geral da atividade expressa o número de desintegrações por segundo A_t de um dado radionuclídeo no final do tempo de sua irradiação t , é obtida sob a forma:

$$A_t = \sigma \phi \frac{m}{A_w} f_a N_A (1 - e^{-\ln 2 t / t_{1/2}}) \quad (8)$$

A atividade é usualmente medida após um tempo de decaimento (t_d), devido ao transporte, retirada da amostra do recipiente e tratamento da mesma após a irradiação, por exemplo, na análise por ativação neutrônica (AAN). Geralmente espera-se que ocorra o decaimento dos radionuclídeos com meias vidas mais curtas que as dos radionuclídeos de interesse e assim minimizando interferências na análise. A unidade SI da atividade é o becquerel (Bq), definida como uma desintegração por segundo.

De acordo com o tempo de decaimento, a medida da atividade, A_t , é obtida em seguida:

$$A_c = A_t e^{-\ln 2 t_d / t_{1/2}} \quad (9)$$

Para a indução desta reação, é necessária uma fonte de nêutrons. Existem vários tipos de fontes, tais como reatores nucleares, aceleradores de partículas e radioisótopos emissores.

Os reatores são as fontes mais utilizadas, pois possuem um fluxo de nêutrons mais intenso, permitindo uma melhor precisão desta técnica. A maioria dos reatores de pesquisa nuclear tem fluxos médios de nêutrons que variam de 10^{12} a 10^{14} n $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ e alguns chegando a ter 10^{15} n $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$.

O espectro de energia dos nêutrons de fissão na posição de irradiação de costume dentro ou perto do núcleo do reator tem um caráter contínuo e inclui nêutrons térmicos

(< 0,5 eV), epitérmicos (0,5 eV a 1 keV) e rápidos (1 keV 15 MeV). Normalmente, a relação entre a taxa do fluxo de nêutrons térmicos (ϕ_{th}) e fluxo de nêutrons epitérmicos (ϕ_{epi}), ϕ_{th} / ϕ_{epi} , tem uma variação de 10 - 100 e a proporção da taxa entre o fluxo térmico e o rápido (ϕ_r), ϕ_{th} / ϕ_r , tem uma margem de 10 a 200. Em geral, os nêutrons de baixa energia - térmicos e epitérmicos – induzem reações de captura radioativa (KELLNER *et al.*, 2004; DE SOETE *et al.*, 1972).

Salvo algumas exceções, as reações induzidas por nêutrons térmicos e epitérmicos são do tipo (n, γ). Portanto, para NAA uma alta relação entre os fluxos ϕ_{th} / ϕ_r é de grande vantagem em sua aplicação. Devido à existência de nêutrons térmicos e epitérmicos nos espectros dos reatores, então a Equação (4) se transforma na seguinte Equação:

$$R=n_A (\phi_{th} \sigma_{th} + \phi_{epi} I) \quad (10)$$

Onde ϕ_{th} e ϕ_{epi} são os fluxos de nêutrons térmicos e epitérmicos, respectivamente, σ_{th} é a seção de choque microscópica de ativação para nêutrons térmicos, e I é a integral da ressonância. A seção de choque microscópica para nêutrons térmicos σ_{th} e I variam consideravelmente de um nuclídeo para outro. Apenas alguns nêutrons rápidos induzirão reações do tipo (n, p), (n, α) e (n, 2n) que poderiam ser utilizadas como reações de interesse, mas que na maioria das vezes são consideradas como reações de interferência.

A metodologia da análise por ativação neutrônica através de reatores é bem estabelecida. Se a característica da amostra é conhecida, isto possibilita em fazer uma estimativa do melhor modelo para sua análise, a fim de otimizar sua performance, obtendo seus limites de detecção e suas possíveis interferências nucleares.

Para a aplicação da AAN, vários métodos podem ser utilizados. No método absoluto, a quantidade de um elemento é determinada utilizando as Equações (8) e (10), onde a massa do elemento é desconhecida. A atividade é obtida a partir da medição da taxa de contagem, da eficiência do detector e da intensidade dos raios gamas. O fluxo de nêutrons pode ser medido utilizando um monitor de fluxo adequado, tal como cobalto ou ouro. Embora o método absoluto necessite de um menor custo que em relação a todos os outros métodos da NAA, é aconselhável que seu uso só seja realizado quando uma menor precisão dos resultados seja aceitável, devido à incerteza no fluxo de nêutrons e dos dados nucleares (DE SOETE *et al.*, 1972; KELLNER *et al.*, 2004).

Já no método relativo, a amostra é irradiada simultaneamente com padrões de todos os elementos de interesse. Geralmente, os padrões sintéticos são preparados com substâncias de alta pureza. Levando em consideração as propriedades de decaimento dos radionuclídeos, os elementos são combinados em grupos e cada grupo colocado num frasco para a irradiação. Como as amostra e os padrões são irradiados e contados sobre as mesmas condições, este método é confiável e proporciona precisão. Não é necessário o conhecimento exato dos dados nucleares, do fluxo de nêutrons e sua distribuição de energia, tempo de irradiação e a eficiência do detector. Entretanto, os padrões devem estar inseridos em meio semelhante à da amostra devido à densidade. É um método mais laborioso se a atividade dos elementos de interesse for muito diferente das dos padrões, exigindo que se repita a análise e refazendo a curva de padrões. A quantidade desconhecida de um elemento na amostra pode ser calculada pela Equação (11), (DE SOETE *et al.*, 1972; KELLNER *et al.*, 2004):

$$m_{\text{amostra}} = m_{\text{padrão}} \frac{R_{\text{amostra}}}{R_{\text{padrão}}} \quad (11)$$

onde m_{amostra} e $m_{\text{padrão}}$ são as massas dos elementos na amostra e na padrão, respectivamente, R_{amostra} e $R_{\text{padrão}}$ são as taxas de contagem da amostra e do padrão. As desvantagens deste método é o elevado tempo gasto para a sua realização e possíveis dificuldades de se ajustar as curvas de padrão com as atividades dos elementos.

Várias abordagens foram realizadas para desenvolver métodos de calibração que permitam a quantificação de todos os elementos determináveis usando apenas um, dois ou três elementos como comparadores. Estes esforços culminaram no estabelecimento do chamado método k_0 que se tornou mais amplamente utilizado. Embora os fatores do k_0 são constantes determinadas experimentalmente, eles contem constantes nucleares necessárias ao método absoluto (DE CORTE, 1987). Os fatores k_0 foram determinados e publicados para praticamente todos os elementos determináveis por AAN (KELLNER *et al.*, 2004; DE CORTE, 1987; DE CORTE *et al.*, 2001).

A aplicação da AAN pelo método k_0 apresenta vantagem adicional que é a determinação de um número maior de elementos por amostra sem haver a necessidade do uso de padrões. Todos os elementos detectados após a irradiação podem ser analisados sem a necessidade de um padrão para cada elemento de interesse, pois é usado um comparador ou monitor de fluxo de nêutrons. Desta forma, há um aumento significativo na capacidade analítica.

Este método consiste na co-irradiação de um monitor de fluxo, usualmente de ouro (como disco, por exemplo), com a amostra. As concentrações da maioria dos elementos que foram ativados podem ser calculadas em um único experimento através da atividade do monitor, da eficiência do detector, dos parâmetros alfa e f do reator, e da aplicação das constantes k_0 específicas. A convenção de Högdahl, representada na Equação (12), é utilizada para calcular a concentração dos elementos de interesse.

$$m_a = \frac{m_p \cdot C_{n,a} \cdot \varepsilon_p \cdot F_p \cdot S_p \cdot C_a \cdot D_a \cdot H_a}{k_0 \cdot C_{n,p} \cdot \varepsilon_a \cdot F_a \cdot S_a \cdot C_p \cdot D_p \cdot H_p} \quad (12)$$

onde:

o índice a se refere à amostra e o índice p ao monitor padrão de fluxo;

m é a massa do elemento analisado (g);

C_n é a área líquida sob o fotopico do elemento de interesse;

ε é a eficiência do detector para o fotopico considerado;

$F=[f+Q_0(\alpha)]$, sendo que

f é a razão entre os fluxos de nêutron térmico e epitérmico;

$Q_0(\alpha)$ é a razão entre $I_0(\alpha)$ (integral de ressonância) e a σ_0 (secção de choque microscópica para nêutrons térmicos);

S é o fator de saturação da irradiação em função do tempo de irradiação;

C é o fator de correção do decaimento durante a contagem;

D é o fator de correção do decaimento do radionuclídeo entre final da irradiação e início da contagem;

H é o tempo morto do detector durante a contagem.

onde:

$$k_0 = \frac{M_m \cdot \theta_a \cdot P_{\gamma,a} \cdot \sigma_{o,a}}{M_a \cdot \theta_m \cdot P_{\gamma,m} \cdot \sigma_{o,m}} \quad (13)$$

sendo:

M é a massa atômica do elemento ($\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$);

θ é a abundância isotópica do elemento;

P_γ é a abundância absoluta do fotopico medido;

σ_0 é a secção de choque microscópica para nêutrons térmico (cm^2).

2.3 ANÁLISE POR ATIVAÇÃO NEUTRÔNICA - GAMAS PRONTO – PGNA

Os primeiros a aplicar a técnica de análise por ativação neutrônica pelo método *Prompt Gamma* (gamas prontos) – PGNA - foram os cientistas Isenhour e Morrison em 1966, utilizando um feixe de nêutrons proveniente de um reator nuclear e um detector de NaI(Tl) para detectar os raios gama (MOLNAR, 2004).

Embora seja conhecida há mais de cinco décadas, apenas nos últimos anos sua potencialidade tem sido mais bem explorada devido ao desenvolvimento e disponibilidade de detectores de alta eficiência e resolução para radiação gama. Por meio do desenvolvimento de detectores semicondutores de germânio Ge (Li) e dos sistemas de Ge (Li)–NaI (Tl), no final dos anos sessenta, que possuem uma resolução de energia vinte ou mais vezes melhor do que dos cintiladores de NaI, a seletividade do método PGNA foi aumentada.

A primeira série de medições sistemáticas de espectros de captura-gama para 75 elementos foi feita no Instituto de Tecnologia de Massachusetts. Em seguida, várias compilações de dados foram realizadas e um esforço mais ambicioso foi feito pelo laboratório de Chalk River para estabelecer uma biblioteca abrangente da compilação dos dados de raios gama de captura (MOLNAR, 2004).

O método começou a se propagar durante os anos oitenta, após o aparecimento dos detectores de germânio com volumes maiores, suficientes para detectar os raios gama de alta energia, com uma eficiência adequada.

A *Lone Table* e sua versão eletrônica distribuída como um relatório Técnico da AIEA, nos últimos 20 anos, tem sido a única fonte de dados de espectroscopia para os cientistas que trabalham com a aplicação do PGNA (MOLNAR, 2004).

O PGNA é um método analítico nuclear que complementa a análise por ativação neutrônica devido a sua aplicabilidade na análise de elementos leves (H, B, C, N, Si, P, S). Ambos os métodos tem independência do estado químico da amostra, apresentam sensibilidade para muitos elementos, são análises precisas e exatas.

O princípio do método se baseia na irradiação da amostra, quando o decaimento do núcleo composto ocorre em cerca de 10^{-16} a 10^{-14} s e atinge o seu estado fundamental em média de 10^{-9} a 10^{-12} s, emitindo de 2 a 4 raios gama durante seu decaimento, chamados de raios gamas prontos (SPYROU *et al.* 2004; MOLNAR, 2004).

Os raios gamas prontos possuem um espectro de energia que é característico de cada nuclídeo e sua intensidade é proporcional ao número dos átomos desse nuclídeo na amostra. A maioria dos nuclídeos emitem várias centenas ou milhares de faixas de energia,

apenas os mais leves (abaixo ^{19}F – flúor) têm espectros simples de gamas prontos, já que o número de níveis de energia abaixo do estado de captura é pequeno. Se o estado do núcleo filho é estável, o processo termina.

Quando a irradiação é realizada com nêutrons de baixa energia (térmicos), o estado de excitação tem um valor de energia mais bem definido, praticamente igual à energia de ligação de nêutrons.

Como o tempo que ocorre essa reação é muito curto torna-se necessário a realização da análise dos raios gamas prontos emitidos durante o processo de irradiação, daí a origem do nome. Essa taxa de emissão dos raios gama prontos de uma amostra, a partir do feixe de nêutrons é medida através de um detector de germânio, podendo assim identificar e quantificar um determinado elemento na amostra.

Uma importante característica da captura radiativa para fins analíticos é que tanto os nêutrons incidentes quanto os gamas emitidos tem um alto poder de penetração e por este motivo a questão da auto-absorção é de pouca importância, com exceção dos casos em que a seção de choque microscópica média ou o número atômico da amostra é extremamente elevado. O resultado analítico é independente do estado químico da amostra porque os sinais analíticos provêm da excitação do núcleo e não das camadas eletrônicas.

Cada elemento químico, com exceção do ^4He (hélio), pode ser analisado utilizando o método PGNA. No entanto, as seções de choque microscópicas de captura para nêutrons variam em até oito a sua ordem de grandeza (O, 0,0019 bar e Gd, 48.800 bar). Esta característica pode ser considerada como uma desvantagem, por que os elementos não podem ser determinados com sensibilidades semelhantes. No entanto, ela também pode ser considerada uma vantagem, uma vez que elementos com seções de choque microscópicas adequadas podem ser determinados em matrizes em nível de traços, com mais sensibilidade e precisão do que por qualquer outro método.

Outra característica importante do PGNA é o fato de que a excitação e a detecção são realizadas ao mesmo tempo. Isto pode ser realizado colocando a amostra sobre uma fonte de nêutrons, enquanto a radiação gama é detectada perpendicular à fonte de nêutrons. Tanto o feixe quanto o ângulo sólido do detector colimado que definem o volume ativo da amostra de onde os raios gamas *prompt* podem ser detectados. Caso contrário, a amostra pode ter vários tamanhos, desde que uma parte da amostra possa ser localizada na posição da amostra. Essa característica do PGNA, o torna uma ferramenta única na análise

de amostras grandes (gramas) e não homogêneas, como por exemplo, na investigação de artefatos valiosos.

A principal vantagem do método é a determinação de elementos leves e estes elementos constituem os principais componentes das rochas e minerais (cimento, concreto, etc.). Suas secções de choque de captura são caracterizadas por alguns décimos de barn (DE SOETE *et al.*, 1972). Assim, permite a análise destes elementos mesmo utilizando fontes de nêutrons com baixas atividades. Um dos mais importantes elementos é o hidrogénio e ele pode ser analisado com boa sensibilidade em quase qualquer tipo de matriz. Assim, o método PGNAA é uma ferramenta única e específica na determinação do hidrogênio ou teor da água em quantidades pequenas.

Os elementos mais facilmente determinados pelo PGNAA são aqueles que se encontram em maior concentração na amostra, secção de choque microscópica adequada e produção de raios gama. Além disso, quanto maior for o fluxo de nêutrons, maior será a precisão e menores serão os limites de detecção, como esperado.

Na maioria dos reatores, os dispositivos de extração do fluxo de nêutrons estão em uma região de alto fluxo, perto do núcleo do reator, para se obter a maior sensibilidade do sistema PGNAA. Já que o fluxo de nêutrons diminui aproximadamente com o quadrado da distância da fonte. Entretanto, essa posição também tem um alto nível de *background* para raios gama e dispersão de nêutrons.

Nêutrons a partir da fonte podem ser transportados por dezenas de metros do reator sem perdas substanciais, e oferecem uma série de vantagens sobre uma fonte térmica, como: alta taxa de reação por nêutrons, menor *background* (gama e nêutrons dispersos), e livre de contaminação de nêutrons rápidos (PAUL e LINDSTROM, 2000).

Como os feixes de gama e nêutrons não podem ser separados, diferentemente da AAN, se faz necessário um sistema melhor de blindagem. E a blindagem próxima ao detector faz com que o nível do *background* aumente induzido pela dispersão dos nêutrons na blindagem. Para reduzir o *background* de raios gama e nêutrons dispersos, o detector deve ser blindado por chumbo dentro de um absorvedor de nêutrons. Se o feixe de nêutrons não for colimado, então a blindagem deve ser incorporada ao material utilizado para termalizar os nêutrons (material com baixo número atômico, normalmente materiais hidrogenados) de forma a reduzir a energia dos nêutrons epitérmicos (termalizando-os).

Devido à ativação e detecção simultânea, assim como a ampla variedade de espectros do detector de raios gama, todos os elementos podem ser analisados ao mesmo

tempo, e assim uma análise multielementar pode ser realizada simultaneamente sem qualquer informação prévia da amostra. O tempo de contagem necessário para atingir a precisão dos elementos de interesse pode ser determinado durante a medição, e essa medição pode ser interrompida ou continuada a qualquer momento.

Usualmente, o único problema que requer atenção é quando isótopos radioativos são formados. O tempo de irradiação geralmente não excede alguns dias. Como regra geral, podemos dizer que isótopos com meias-vidas longas (uma semana) não são ativados suficientemente para serem detectados, analisados, ou a partir do ponto de vista da dosimetria. Em alguns casos as amostras devem ser esfriadas por algumas semanas até que sua atividade atinja o nível do background.

Na AAN, as amostras são irradiadas em um campo de nêutrons isotrópico, e os raios gama retardados de uma amostra podem ser analisadas em contato com o detector, aumentando assim a eficiência da análise quase em 0,5.

Já no PGNAA apenas as fontes de nêutrons com baixa divergência são utilizadas para ativação (uma margem de perda de 10^{-4} - 10^{-5} em relação à ativação isotrópica no núcleo de um reator), e o detector não pode ser colocado muito próximo à amostra ativada (uma margem de eficiência de 10^{-2} - 10^{-3}).

Por outro lado, durante a medição dos raios gama retardados na AAN, apenas uma fração do número total de decaimentos ocorre no local de medição, diminuindo a sensibilidade do método na ordem de 10^{-1} a 10^{-3} , enquanto que no PGNAA todos os raios gama *prompt* podem ser detectados com uma dada eficiência. Todos estes efeitos resultam em que a sensibilidade analítica do PGNAA seja menor, da ordem de 10^{-4} a 10^{-6} , em comparação com NAA. Esta deficiência pode ser parcialmente superada utilizando maiores tempos de irradiações e uma maior quantidade da amostra (MOLNAR, 2004).

O dano proveniente da irradiação, com nêutrons e raios gama, em amostras é insignificante. No entanto, em casos em que partículas carregadas são induzidas por nêutrons, a amostra pode ser submetida a danos de irradiação, devido às partículas ionizantes produzidas e absorvidas dentro da mesma. Podendo assim resultar em modificações na estrutura química ou cristalina, seguida por descoloração. Este efeito pode ser notável quando se irradia amostras que contenham lítio, boro ou nitrogênio em sua composição (MOLNAR, 2004).

O PGNAA provou ser útil na análise multielementar para uma ampla variedade de materiais e de diferentes formas contribuindo assim com varias áreas científicas, em particular

importância à análise de materiais ilícitos como: explosivos, contaminantes químicos, material radioativo e produtos físséis em todo mundo (KIRÁLY, *et al.*, 2004).

Vários tipos de fontes de nêutrons estão disponíveis para a aplicação do método PGNAA, cada um com seu espectro de energia característico. Alguns dos tipos de fontes de nêutrons são os geradores de nêutrons, em que deutérios (^2H) são acelerados em algumas centenas de keV para um alvo deutério ou trítio (^3H) (ou vice-versa), com um rendimento de cerca de 10^5 nêutrons / deutério. A energia do nêutron da reação de fusão $^2\text{H} + ^2\text{H} \rightarrow ^3\text{He} + n$ é cerca de 2,5 MeV, a da reação $^2\text{H} + ^3\text{H} \rightarrow ^4\text{He} + n$ é cerca de 14 MeV. Um gerador de nêutrons compacto com um acelerador em forma de um tubo fechado está atualmente em desenvolvimento no Laboratório Nacional de Lawrence Berkeley (MOLNAR, 2004).

Fontes transportáveis que emitam até 10^{11} n cm^{-2} s^{-1} estão disponíveis comercialmente. Geradores de nêutrons de radioisótopos também são usados para gerar nêutrons; essas fontes não necessitam de energia em seu funcionamento, mas não podem ser desligadas (MOLNAR, 2004).

Fontes de Fotoneutron usam raios gama de alta energia provenientes do Ra ou de ^{124}Sb ($t_{1/2} = 60$ dias) para liberar os nêutrons fracamente ligados ao ^9Be . A reação (α, n) é também usada no berílio, com o ^{241}Am ($t_{1/2} = 430$ anos) ou ^{238}Pu ($t_{1/2} = 88$ anos) como fontes alfa. Fissão espontânea do ^{252}Cf ($t_{1/2} = 2,6$ anos) fornece uma fonte portátil de $2,3 \times 10^9$ n cm^{-2} s^{-1} mg^{-1} Cf.

Fontes de nêutrons transportáveis (geradores de nêutrons e fontes isotópicas) são úteis para medições de campo, como a análise de poços, minas e corpos d'água, em construções industriais e na detecção de explosivos.

Até o momento, as fontes de nêutrons mais abundantes e geralmente utilizadas são os reatores de pesquisa utilizando a fissão do ^{235}U . Trabalhos publicados, que aplicam o PGNAA utilizando os reatores nucleares como fonte de nêutrons têm seus fluxos de nêutrons da ordem de 10^5 a 10^{10} n cm^{-2} s^{-1} , apesar dos fluxos mais comuns serem da ordem de 10^7 a 10^8 n cm^{-2} s^{-1} (PAUL e LINDSTROM, 2000).

O PGNAA é um método não destrutivo, pois - não há necessidade da preparação das amostras. A irradiação da amostra não altera a sua composição elementar.

Por ser multielementar, a mistura de elementos em uma amostra resulta em uma variedade radionuclídeos formados e, conseqüentemente, em uma variedade de raios gama emitidos, de modo a gerar um espectro complexo, frequentemente contendo centenas de picos.

De modo geral, o PGNAA apresenta as seguintes vantagens:

- possibilita a identificação de vários elementos presentes em uma amostra simultaneamente em nível de traços ($\mu\text{g g}^{-1}$);
- permite a identificação de elementos não analisáveis por AAN;
- é um método de análise não destrutiva que apresenta baixa atividade residual;
- o resultado pode ser obtido instantaneamente, já que não é necessário esperar o tempo de decaimento;
- não requer preparação de amostras, nem requisitos quanto a sua geometria e forma.

Um exemplo de instalação do PGNAA é o do Laboratório de PGNAA do Instituto de Isótopos, em Budapeste, Hungria. A complexidade e detalhamento de sua montagem são mostrados nas Figuras 7 a 9. O sistema se compõe basicamente do feixe de nêutrons, tubo guia do detector, porta amostra, blindagem e sistemas de supressão de radiação secundária. De acordo com o Prof. Revay, o sistema do Instituto levou cerca de 5 anos para ser montado e contou com a participação de 4 especialistas.



Figura 7 – Tubo guia e detetores do PGNAA do Instituto de Isótopos da Hungria



Figura 8 – Detalhes do porta-amostra e detector do PGNAA, Instituto de Isótopos da Hungria

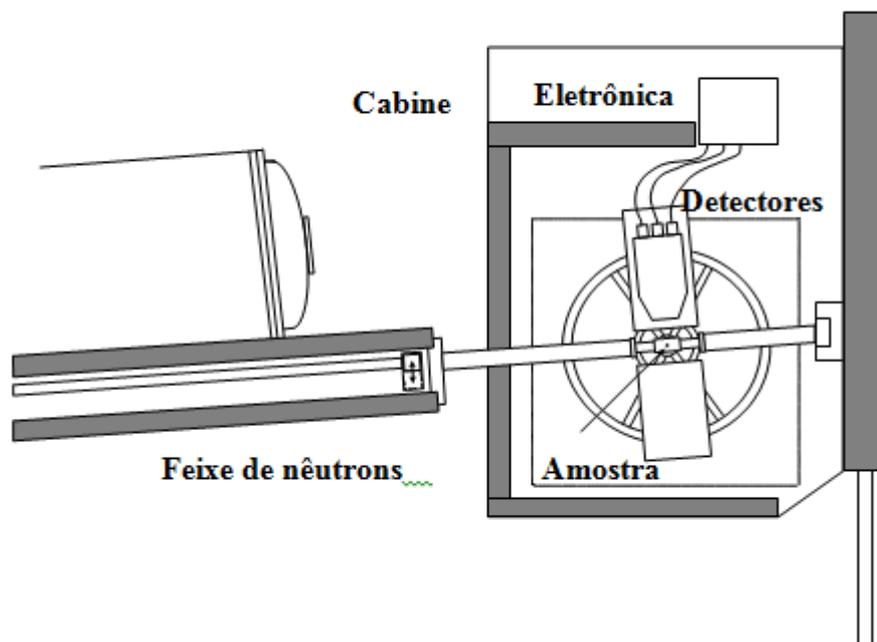


Figura 9 – Diagrama esquemático do sistema PGNAA do Instituto de Isótopos da Hungria

Outro exemplo é o sistema instalado no *National Institute of Standards and Technology* (NIST). Um arranjo do sistema de análise (detectores, blindagens, componentes eletrônicos, dentre outros) conforme as Figuras 10 e 11 (MACKEY *et al.*, 2004).



Figura 10 – PGNAA no NIST , Texas, EUA

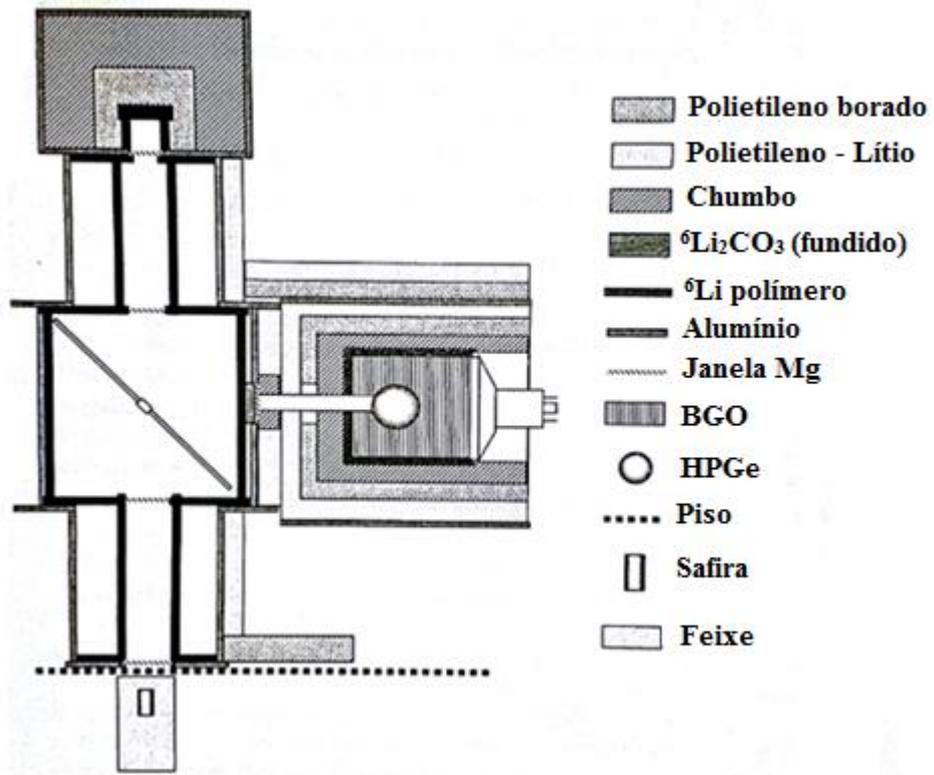


Figura 11– Sistema do PGNAA, no NIST adaptado de MOLNAR (2004)

2.3.1 Aplicações

O PGNAA é realizado em diversos institutos de pesquisa utilizando reatores. A Tabela 2 lista alguns dos sistemas em operação (MOLNAR, 2004).

Tabela 2 – Lista Cronológica de instalações do PGNAA utilizando reatores

Localização	Fluxo de nêutrons total ($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$)	Ano
Cornell U., Ithaca, EUA	$1,7 \times 10^6$	1966
AEC, Orsay, França	$2,0 \times 10^7$	1969
TU Munchen, Alemanha	$2,0 \times 10^7$	1973
ILL, Grenoble, França	$1,5 \times 10^{10}$	1973
PINST, Paquistão	$1,2 \times 10^7$	1975
IVIC, Venezuela	$4,8 \times 10^7$	1976
OWR, Los Alamos, EUA	$4,0 \times 10^{11}$	1976
U. of Maryland – NBSR, EUA	$4,0 \times 10^8$	1979
ILL, Grenoble, França	$8,0 \times 10^8$	1979
JAERI, Tokai, Japão	$8,0 \times 10^7$	1980
MURR, Columbia, EUA	$5,0 \times 10^8$	1981
U. of Michigan, Ann Arbor, EUA	$2,4 \times 10^7$	1982
KURR, Kyoto, Japão	$2,0 \times 10^6$	1983
McMaster U., Hamilton, EUA	$6,0 \times 10^7$	1984
MTI, Musashi, EUA	$5,0 \times 10^5$	1984
N. C. State U., Raleigh, EUA	$1,0 \times 10^7$	1986
ILL Grenoble, França	$1,3 \times 10^8$	1987
KFA, Julich, Alemanha	$2,0 \times 10^8$	1987
Imperial College, Ascot, Inglaterra	$2,0 \times 10^6$	1987
CRN, Strasbourg, França	$1,0 \times 10^6$	1990
DINR Dalat, Vietnã	$5,0 \times 10^6$	1992
BNC Budapest, Hungria	$2,0 \times 10^6$	1993
MIT, Cambridge, EUA	$6,0 \times 10^6$	1993
NBSR, Gaithersburg, EUA	$1,5 \times 10^8$	1993
JAERI, Tokai, Japão	$1,4 \times 10^8$; $2,4 \times 10^7$	1993
NBSR, Gaithersburg, EUA	$8,0 \times 10^8$	1996
U. of Texas, Austin, EUA	$5,0 \times 10^7$	1997
SINQ, Villigen, Suíça	$7,0 \times 10^7$	1997
Rez, República Tcheca	$3,0 \times 10^6$	2000
Barc, Índia	$1,4 \times 10^7$	2001
KAERI, Taejon, Coreia	$8,0 \times 10^7$	2002
BNC, Budapeste, Hungria	$5,0 \times 10^7$	2002
BAC, Argentina	$1,0 \times 10^7$	2003

O PGNAA pode, por exemplo, ser aplicada à determinação de boro em várias matrizes, como: água potável, vinho, cristais de quartzo de alta pureza, amostras ambientais como rochas, gases atmosféricos, padrões geológicos e ainda tecido humano. Em particular, uma aplicação é em medicina onde o PGNAA é utilizada é na determinação do boro na técnica conhecida como *Boron Neutron Capture Therapy* (BNCT).

O valor elevado de secção de choque para nêutrons térmicos do ^{10}B e sua capacidade de se ligar com muitas matrizes orgânicas colaborou para seu estudo e no

desenvolvimento de aplicações da terapia por captura de nêutrons através do boro (BNCT). Embora o uso de feixes de nêutrons para a terapia é o objetivo principal deste protocolo de tratamento, o uso do PGNAA para análise do tecido é vital para a determinação do grau de absorção dos compostos de B, antes do tratamento. A primeira determinação pelo PGNAA de concentração de boro para fins da BNCT foi realizada por Kobayashi e Kanda (SCHMITZ, 2011).

O boro é um elemento importante e de difícil análise por outras técnicas analíticas. O PGNAA tem sido usado para analisar o boro em alimentos, outros materiais biológicos e em padrões geoquímicos. O boro é analisado com concentrações menores que mg/kg através do PGNAA em aço, ligas de materiais padrão para referência e para efeitos de certificação, em polímeros, meteoritos e minerais para fins de desenvolvimento de amostras padrões para análise geoquímica (MOLNAR, 2004).

Aplicações do PGNAA no campo da ciência de materiais têm sido numerosas. O PGNAA é usado para determinar compostos de lítio, baterias de carbono para catalisador e a quantidade de cloro no concreto (contribuir em medições de campo) (KHELIFI *et al.*, 1999; MOHAMED *et al.*, 2008).

Quanto às aplicações em química, a certificação de material de referência (MRC), materiais usados amplamente para a validação de métodos e como controle de qualidade dos materiais é vital para a manutenção da qualidade da análise em, praticamente, todas as técnicas de análise química. Métodos nucleares, incluindo PGNAA, desempenham um papel importante através da participação de programas de certificação e caracterização de materiais desenvolvidos em muitos laboratórios, por todo o mundo. Por exemplo, esse método tem sido usada no *National Institute of Standards and Technology* (NIST), nos últimos 20 anos, para analisar mais de 25 materiais, incluindo ligas de metais, alimentos, carvão, sedimentos, Iodo, sílica e água, para fins de certificação.

Uma das aplicações é na área de geologia para analisar amostras contendo Mn, Fe, Cu e Cl (GMÉLING *et al.*, 2014). Em análise de alimentos, a análise do elemento N e conseqüentemente, a determinação de proteínas podem ser feitas utilizando o método. Estudos demonstram que o teor de proteína dos grãos individuais do milho pode ser determinado. Um estudo realizado no Instituto *Laue-Langevin*, em Grenoble/França demonstrou a viabilidade da triagem de grãos através do teor de proteína, a fim de selecionar as melhores sementes para a reprodução.

Em resposta a acontecimentos recentes, como atentados e ameaças terroristas, tem sido crescente a preocupação com a segurança de instalações nucleares, portos, aeroportos e o tráfico de materiais ilícitos como explosivos, contaminantes químicos, material radioativo e produtos físséis em todo mundo (GOZANI, 2004; KIRÁLY *et al.*, 2004).

Novas tecnologias de segurança estão recebendo cada vez maior atenção e recursos por parte de institutos de pesquisa, agências de governo, forças armadas e fabricantes. Aumento significativo no financiamento à pesquisa e desenvolvimento e em infraestrutura da segurança está transformando este campo em um dos mais importantes da área nuclear nos últimos anos.

Um dos tópicos importantes das pesquisas nesta área é no desenvolvimento e aplicação das técnicas de ensaios não destrutivos para detecção e identificação de materiais nucleares especiais como Pu e U (altamente enriquecido). Explosivos de alto poder de destruição e alguns agentes químicos que podem ser empregados em atividades terroristas também estão entre os materiais especiais. Como esses materiais podem estar mascarados por carga de material radioativo legal ou escondidos em recipientes protegidos por contêineres ou por sucata metálica, novas técnicas de análise são necessárias para identificação, caracterização e posterior investigação da origem do material.

As técnicas de inspeção desses materiais devem possuir três características fundamentais: alta especificidade, alta sensibilidade e prover modo de decisão automática. Mas as tecnologias que têm sido normalmente empregadas baseadas em raios-x acoplados ou não a sistemas de tomografia, gamagrafia (para contêineres) possuem falhas inerentes em alguma ou todas essas características (GOZANI, 2004). Por isso, as técnicas baseadas em nêutrons têm ocupado posição cada vez mais importante, podendo ser empregadas como método não intrusivo de inspeção de materiais nucleares, drogas, explosivos, produtos químicos ilícitos e até na remoção de minas terrestres. De modo geral, sejam ativas ou passivas, as técnicas nucleares de inspeção requerem o uso, principalmente, de nêutrons e de raios gama altamente penetrantes.

A Tabela 3 mostra alguns dos projetos em andamento no mundo em diversas instituições (MOLNAR, 2004).

Tabela 3 – Projetos de pesquisa e desenvolvimento em métodos nucleares ligados à segurança

Instituição	Projeto
Oak Ridge National Laboratory, EUA	Sistema de inspeção de material nuclear
Lawrence Livermore National, EUA	Espectrometria gama de material físsil
Idaho National Engineering Laboratory, EUA	PGNAA aplicado à detecção de explosivos
CEA (Cadarache), França	EURITAC (medidas contra tráfico ilícito na Europa)
Instituto Nazionale di Física Nucleare, Itália	EURITAC (medidas contra tráfico ilícito na Europa)
JRC (Joint Research Centre) Ispra, Itália	EURITAC (medidas contra tráfico ilícito na Europa)
Public Protection Office, Reino Unido	Segurança de aeroportos
Swedish Defense Reserch Center, Suécia	PGNAA aplicado à detecção de explosivos
Fraunhofer Institut, Alemanha	Unidade móvel de monitoração fonte de nêutrons
Delft University of Technology, Holanda	Detecção de minas terrestres

As técnicas passivas são usadas para a observação de materiais radioativos acondicionados através da medida de raios gama e nêutrons de fissão característicos, atrasados ou espontâneos. Nos métodos ativos, o objeto a ser investigado é exposto a feixes de nêutrons ou raios gama e a radiação secundária é analisada. De forma geral, os sistemas de identificação de materiais nucleares são baseados na detecção de raios gama e nêutrons emitidos espontaneamente ou através de fissão induzida.

Além disso, estes geradores permitem ainda executar o PGNAA por meio da qual, elementos como: B, H, C, N, O, P e S podem ser identificados e quantificados. Os elementos H, C, N e O, são os principais constituintes de minas terrestres, explosivos e drogas podem ser observados principalmente pelas diferentes interações com nêutrons. Como pode ser verificada na Tabela 4, as frações atômicas destes elementos, em particular, C/O, C/H e C/N, são completamente diferentes nas drogas e explosivos em comparação a outros materiais usados para escondê-los.

Tabela 4 – Fração atômica típica em algumas substâncias

Substância	Frações Típicas		
	C/O	C/H	C/N
Cocaína	4,25	0,81	17
Morfina	5,67	0,89	19
Heroína	4,20	0,91	21
LSD 2	0,0	0,80	6,67
Nitroglicerina	0,33	0,60	1,00
PETN	0,42	0,63	1,25
TNT	1,17	1,40	2,33
Açúcar	1,09	0,55	----
Álcool	2,00	0,33	----
Polietileno	-----	0,5	----
Seda	2,00	0,62	1,6
Madeira	1,83	0,71	----

Neste cenário, a AAN e o PGNAA têm se mostrado eficazes como métodos multielementares para uma ampla variedade de materiais, abrangendo, assim muitas áreas de atuações científicas. A Tabela 5 lista alguns laboratórios que utilizam estes métodos.

Tabela 5 – Resumo de alguns dos Laboratórios que aplicam a AAN e/ou PGNAA

Fonte	Fluxo Térmico ($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$) ou Radioatividade	Aplicação	País
Reator Pesquisa - 60 MW (BANGFA, <i>et al.</i> , 2012)	Reator: $1,0 \times 10^{15}$	PGNAA	China
Reator Pesquisa - 10 MW (REVAY, <i>et al.</i> 2001)	$2,0 \times 10^6$	PGNAA	Hungria
Reator Pesquisa - 250 kW (SNOJ <i>et al.</i> , 2011)	-----	AAN	Eslovênia
Reator Pesquisa (CANELLA <i>et al.</i> , 2011)	$6,07 \times 10^{10}$	PGNAA	Alemanha
Reator Pesquisa - 250 kW (JACIMOVIC <i>et al.</i> , 2003a)	$3,5 \times 10^{12}$ e $1,1 \times 10^{12}$	AAN	Eslovênia
Reator Pesquisa - 10 MW (EMBER <i>et al.</i> , 2002)	$3,0 \times 10^7$	PGNAA	Hungria
Reator Pesquisa - 250 kW (SNOJ <i>et al.</i> , 2012)	Máximo: $5,1 \times 10^{12}$	Avaliação de fluxo e espectro	Eslovênia
Reator Pesquisa - 250 kW (CASTA, <i>et al.</i> , 2000)	$7,0 \times 10^{13}$	AAN	Áustria
Reator Pesquisa (REVAY <i>et al.</i> , 2003)	$2,3 \times 10^6$	PGNAA	Hungria
Reator Pesquisa - 10 MW (KASZTOVSZKY <i>et al.</i> , 2000)	$2,5 \times 10^6$	PGNAA	Hungria
$^{238}\text{Pu}/\text{Be}$ (GRAFE <i>et al.</i> , 2010)	15,3 Ci	Imagem -Ressonância Magnética - PGNAA	Canada
^{252}Cf (DIPRETE <i>et al.</i> , 2000)	$6,0 \times 10^7$	AAN	EUA
Am-Be (IDIRI <i>et al.</i> , 2010)	$2,2 \times 10^6$ (1 Ci)	Poluição na água	Argélia
Am-Be (KHELIFI <i>et al.</i> , 2007)	$2,2 \times 10^6$ (1 Ci)	Poluição na água	Argélia
^{241}Am -Be e gerador de nêutrons D(d,n) (NAQVI <i>et al.</i> , 2004)	-----	PGNAA	Arábia Saudita
Am-Be (KHELIFI <i>et al.</i> , 1999)	$1,1 \times 10^7$ (5,0 Ci ou 185,0 GBq);	Análise de concreto	Argélia
^{241}Am -Be; ^{241}Am -B, ^{252}Cf e Gerador de nêutrons DT. (FANTIDIS <i>et al.</i> , 2011)	$2,3 \times 10^6$	PGNAA- in vivo detections of boron	Grécia
Revisão (PAUL e LINDSTROM, 2000)	-----	Agricultura, biológico, geológico, estudo de processos físicos e químicos.	EUA

Geradores de nêutrons já estão em uso há mais de cinco décadas nos mais diversos campos de pesquisa, como mostrados na Tabela 6. Nos últimos anos tem se feito grande esforço em pesquisa e desenvolvimento para torná-los mais compactos, robustos, seguros e com melhor desempenho em preço e custo de operação (NAQVI *et al.*, 2004; FANTIDIS *et al.*, 2011).

Em cada uma destas aplicações, a função do gerador é induzir a radiação secundária na amostra que é usada para identificá-la (NAQVI *et al.*, 2004; FANTIDIS *et al.*, 2011). A detecção de nêutrons prontos e atrasados pode indicar a presença do material físsil e raios gama prontos ou atrasados resultantes dão informações sobre a composição elementar da amostra.

Tabela 6 – Aplicações de geradores de nêutrons

Área de Aplicação	Uso Específico
Geofísica	Mapeamento e análise de minerais
	Exploração de petróleo e urânio
Controle de Processos Industriais	Cimento, qualidade de carvão, análise de espessura de parede
Médica	Investigação em dieta e nutrição
Segurança	Detecção e identificação de explosivos e armas químicas
	Detecção e identificação de materiais nucleares
Transmutação de transurânicos	Fonte de nêutrons rápidos para instrumentação
	Estudo de susceptibilidade de componentes eletrônicos aos danos por radiação
	Análise de reatores nucleares
	Neutronografia
Meio Ambiente	Ensaio em rejeitos nucleares
	Sequestro de carbono em amostras de solo

As técnicas a serem empregadas na detecção de nêutrons incluem métodos de coincidência e contagem múltipla na identificação. A análise por ativação neutrônica por raios gamas prontos, (PGNAA), pode ser usada para identificar agentes químicos, materiais nucleares especiais, e ainda a composição das estruturas de blindagem contendo Pb.

Ao longo dos anos, o reator IPR-R1 foi estudado e modelado utilizando o código MCNP (Monte Carlo N-partículas). Esses estudos foram validados através da comparação dos resultados obtidos em simulações do reator IPR-R1 com dados experimentais (DALLE, 2005; GUERRA, 2011; GUERRA *et al.*, 2013a; SALOMÉ *et al.*, 2014; SILVA *et al.*, 2011, SILVA *et al.*, 2014).

Desta forma, com o propósito de contribuir na ampliação da utilização do reator e no aperfeiçoamento da técnica de análise por ativação neutrônica aplicada no CDTN/CNEN, este estudo desenvolveu uma metodologia, utilizando o código MCNP5 (versão 5.1.40), para verificar a viabilidade do estabelecimento do método de análise PGNAA no reator TRIGA IPR-R1 (BRIESMEISTER, 2003; CANELLA *et al.*, 2011; SPYROU, AWOTWI-PRATT, WILLIAMS, 2004).

O modelo desenvolvido neste trabalho baseia-se em modelos já validados do reator IPR-R1 (DALLE, 2005; GUERRA, 2011; GUERRA *et al.*, 2013; SALOMÉ *et al.*,

2014; SILVA *et al.*, 2011, SILVA *et al.*, 2014). Porém com o acréscimo da configuração do poço do reator e do sistema proposto para a aplicação do PGNAA (extrator de nêutrons angulado, blindagens e amostra).

Desta forma, avaliar a viabilidade de instalação do PGNAA, no reator IPR-R1, através de uma metodologia teórica que simule o funcionamento do reator se torna fundamental, pois desta forma, será possível estudar diversos parâmetros no reator, como por exemplo, o fluxo de nêutrons nos dispositivos onde as amostras são irradiadas (DUDERSTADT, 1976; LAMARSH e BARATTA, 2001). A ferramenta escolhida para ser utilizada no desenvolvimento dessa metodologia é o código MCNP5 (BRIESMEISTER, 2003).

2.4 O Método de Monte Carlo

O método de Monte Carlo abrange um conjunto de técnicas estatísticas que possibilita encontrar resultados de problemas físicos e matemáticos por meio de ensaios aleatórios recorrentes. Consiste em obter um modelo para o evento a ser simulado, caracterizá-lo através de uma função distribuição de probabilidade e amostrar possíveis fenômenos desse modelo (BROOKES, *et al.*, 1979; PELOWITZ, 208).

É usado para simulação do comportamento de sistemas complexos, que podem ir do campo da economia até a física de partículas. Trata-se de um método estocástico baseado na execução de muitos experimentos aleatórios sobre um modelo. O ponto chave é a utilização de um gerador de números aleatórios de qualidade, onde o resultado é a probabilidade de ocorrência de algum efeito. No transporte de partículas, são simuladas as trajetórias individuais de cada uma. Para determinar se um evento ocorre, as probabilidades dos possíveis processos físicos, ou seja, as seções de choque microscópicas são usadas e os números aleatórios são gerados dependendo da distribuição de probabilidade para cada caso. O resultado para a vida de uma partícula, também conhecido por histórico da partícula é armazenado para avaliação futura do seu comportamento médio (BRIESMEISTER, 2003).

Em sua fase inicial, a técnica de Monte Carlo era de certa forma impraticável, pois demandava uma infinidade de cálculos complexos que dificultavam sua aplicação. Com o surgimento dos computadores, a utilização do código passou a ser mais viável e, na medida em que a tecnologia dos computadores vem evoluindo, a técnica de Monte Carlo também acompanhou essa evolução (BRIESMEISTER, 2000).

Na execução computacional, os ensaios são substituídos pela geração de números aleatórios uniformemente distribuídos entre 0 e 1. Esses números podem ser gerados experimentalmente, através de vários processos físicos como dados, roleta de números ou podem ser disponibilizados em uma tabela. No entanto, devido à necessidade de uma grande quantidade de números aleatórios exigidos nos cálculos de Monte Carlo, trabalha-se com os denominados números pseudo-aleatórios, que são muito similares aos correspondentes números aleatórios e são gerados deterministicamente por um algoritmo, através de fórmulas de recorrência, mas que satisfazem aos testes estatísticos de aleatoriedade. A vantagem da técnica de Monte Carlo é lidar com um evento de cada vez, de modo que processos complexos sejam simulados a partir da soma de processos simples.

A Tabela 7 apresenta alguns códigos baseados no método de Monte Carlo para o transporte de partículas que foram desenvolvidos através dos anos (CORREA 2009 *apud* SILVA, 2010).

Tabela 7 – Códigos baseados no Monte Carlo

Código	Partículas	Ano	Instituição
ETRAN	γ, e^-, n	1968	NIST
FLUKA	γ, e^-, n	1971	CERN
MCNP	γ, e^-, n	1972	LANL
GEANT	γ, e^-, n, p	1974	CERN
EGS	γ, e^-	1978	SLAC
ITS	γ, e^-	1984	SNL
PEREGRINE	γ, e^-, n, p	1998	LLNL
VMC	γ, e^-, p	1998	IRD

2.4.1 Monte Carlo N-Partículas – MCNP

O código *Monte Carlo N-Particle* (MCNP) foi desenvolvido pelo Los Alamos National Laboratory baseado no método de Monte Carlo, para simular as interações das partículas (nêutrons, gamas e elétrons) com a matéria em diferentes níveis de energia. A faixa de energia de interação dos nêutrons com os isótopos varia entre 10^{-5} eV a 20 MeV, mas para

alguns isótopos pode chegar até 150 MeV, para os fótons entre energias de 1 keV até 100 GeV, e para elétrons entre 1 keV até 1 GeV (X-5 Monte Carlo Team, 2003 apud CABRERA, 2015).

Em 1983, o MCNP3 foi lançado e reescrito inteiramente em ANSI padrão Fortran77. Ele foi a primeira versão do MCNP distribuída internacionalmente, através do Centro de Informação e Proteção da Radiação em Oak Ridge, Tennessee EUA.

O MCNP4 foi lançado em 1990 e foi à primeira versão UNIX do código. Ele acrescentou o transporte de elétrons, o registro (*tally*) de altura de pulso (F8), a aproximação da radiação de frenagem em alvos-densos para o transporte de fótons, a adição de detectores pontuais e um detector esférico (DXTRAN). Além disso, ele é provido de um maior controle do número aleatório e da geração dos resultados do tally, enquanto o código é executado (BRIESMEISTER, 2003).

Em 2003, foi desenvolvido o MCNP5, que foi reescrito em ANSI padrão Fortran 90. Ele incluía novas aplicações como a adição da física de colisão dos fótons. Outra versão do código foi desenvolvida a partir do MCNP4 e LAHET 2.8, chamada de MCNPX, ela foi criada em 23 de outubro de 1997. Dentre as principais vantagens acrescentadas no MCNPX em relação ao MCNP5, estão: o “*Burnup*”, o transporte de íons pesados, a emissão de gamas atrasados, dentre outras.

O MCNP calcula uma média das partículas com o mesmo comportamento no sistema físico e, como resultado final, são obtidos os aspectos mais importantes no percurso de um conjunto de partículas que atravessam um meio, ou seja, o número médio de alguma característica do sistema, como por exemplo: fluxo, deposição de energia, corrente, cálculos de criticalidade, etc., (X-5 MONTE CARLO TEAM, 2003 apud CABRERA, 2015).

Para cada elemento ou isótopo simulado no código MCNP, são exigidas bibliotecas de seção de choque para todas as interações possíveis para a energia em questão. Dados de seção de choque para energias térmicas são necessários se os nêutrons são transportados em energias suficientemente baixas onde ligações químicas e moleculares são importantes.

Na utilização do MCNP, todos os dados relativos a cada simulação específica devem ser fornecidos pelo usuário em um arquivo de entrada (input). Neste arquivo de entrada é possível especificar os dados referentes ao tipo de fonte, configurações geométricas, composição química e propriedades físicas do meio, grandeza e unidade de resposta desejada e quantidade de partículas a serem simuladas, sem que haja a necessidade de modificar o

código fonte do programa. Assim, o tamanho, a forma, o espectro de energia, as composições física e química da fonte de radiação, a configuração do meio através do qual essa radiação é transportada, além da geometria e dos sistemas de detecção, são definidos pelo próprio usuário, no padrão desejado (PEREIRA, 2009 apud SILVA, 2010).

O código Monte Carlo N-Particle code (MCNP) é um dos códigos mais utilizados na área de transporte de radiação. A Figura 12 representa como é simulado pelo MCNP o histórico de um nêutron, aleatoriamente selecionado, incidente em um bloco de material fissionável. Números entre 0 e 1 são selecionados aleatoriamente para determinar o tipo de interação (se houver) e em que posição ela ocorrerá, com base em princípios físicos e probabilidades (dados de transporte - seções de choque) que regem os processos e materiais envolvidos.

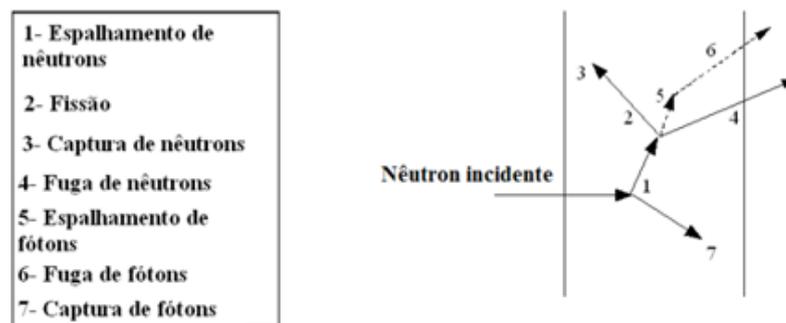


Figura 12 – Histórico de vida de um nêutron interagindo com um meio material

Nesse exemplo em particular, uma colisão de nêutrons ocorre no evento 1. No evento 2, ocorre uma reação de fissão, que resulta no desaparecimento do nêutron incidente e no surgimento de outros dois nêutrons e um fóton. Um nêutron e o fóton são armazenados para análise futura. O primeiro nêutron é capturado no evento 3 e então desaparece do sistema (evento terminal). O nêutron armazenado é recuperado e, por amostragem aleatória, foge do sistema no evento 4. O fóton produzido no evento de fissão, interage no evento 5 e foge no sistema no evento 6. O fóton gerado no evento 1 é agora computado e sofre uma captura no evento 7. O MCNP recupera as partículas que foram anteriormente armazenadas de tal forma que a última partícula armazenada é a primeira a ser recuperada para análise. (Los Alamos National Laboratory, 1997 apud BARROS, 2014).

Cada histórico de um nêutron concluído se soma a muitas outras histórias de nêutrons do sistema e as distribuições de probabilidade de ocorrência dos eventos envolvendo nêutrons tornam-se mais conhecidas. Esse mesmo procedimento é empregado para as demais

partículas do sistema simulado e as variáveis de interesse solicitadas pelo usuário (fluxo, criticalidade e etc.) são registradas juntamente com as estimativas da precisão estatística (incerteza) dos resultados.

O desenvolvimento do MCNP é caracterizado por uma forte ênfase no controle de qualidade, na documentação e na pesquisa. Novos atributos continuam sendo acrescentados ao código, refletindo os avanços da arquitetura de computadores.

A grande produção de códigos tem revolucionado a ciência, não só na maneira em que eles são produzidos, como também na formação de verdadeiros repositórios de conhecimentos físicos.

3 METODOLOGIA

A metodologia desenvolvida neste estudo, utilizando o MCNP versão 5.1.40, com o objetivo de avaliar a viabilidade de aplicação do método PGNAA no IPR-R1 é apresentada neste capítulo em sete etapas. A primeira etapa apresenta os detalhes da modelagem do reator TRIGA IPR-R1; a segunda etapa, a modelagem do sistema proposto para a aplicação do PGNAA; a terceira descreve como foi realizada a validação desta metodologia; a quarta relata os cálculos de fluxo de nêutrons no sistema proposto para a aplicação do PGNAA; a quinta etapa, demonstra como foram realizados os cálculos de fluxo de nêutrons, taxa de reação e limite de detecção nas amostras; a sexta explica como foi feita a comparação dos resultados de limite de detecção de cada isótopo obtidos neste estudo com dados encontrados na literatura e, por fim, na última etapa, o estudo dos valores de dose (nêutron e gama) na sala do reator TRIGA com a instalação do sistema PGNAA, requisito indispensável de radioproteção.

3.1 Modelagem do reator TRIGA IPR-R1 com extrator vertical

A modelagem do sistema atual do reator TRIGA IPR-R1 (com extrator vertical), utilizando o MCNP5, foi realizada a partir do modelo do reator TRIGA IPR-R1 desenvolvido por DALLE (2005), que por meio do código MCNP5 calculou a queima do combustível ao longo dos anos de operação e de alguns parâmetros neutrônicos, como mostrado na Figura 13. A modelagem também teve como base os ajustes feitos por GUERRA (2011) no modelo desenvolvido por DALLE (2005) para que haja uma melhor avaliação do fluxo de nêutrons no principal dispositivo de irradiação de amostras (mesa giratória, Figura 14). Os dados do reator obtidos em literatura (COSTA *et al.*, 2002b) também foram considerados, como as suas configurações, as dimensões do poço e da sala onde está localizado e as características do extrator de nêutrons vertical, Figuras 15 e 16.

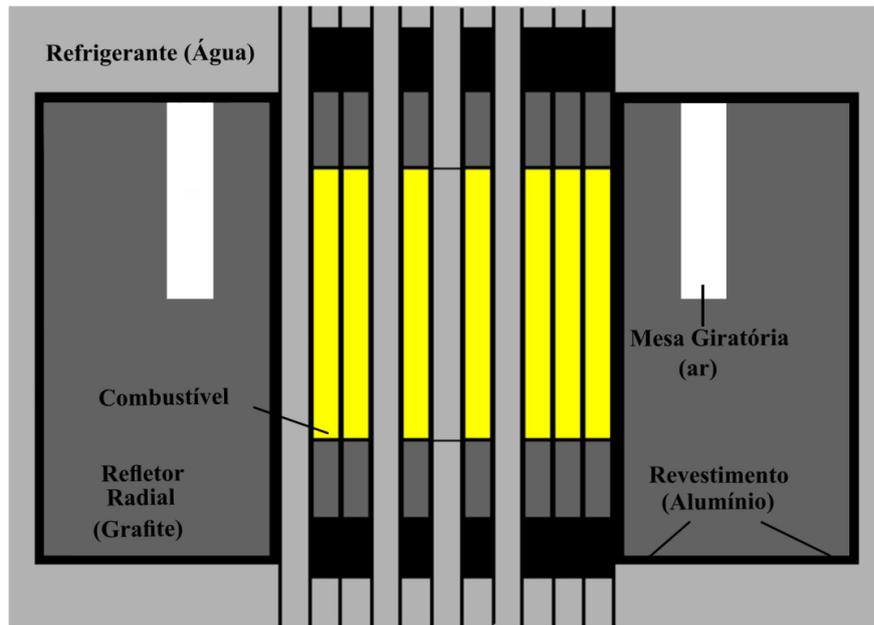


Figura 13 – Vista axial do IPR-R1, desenvolvido no MCNP por DALLE (2004)

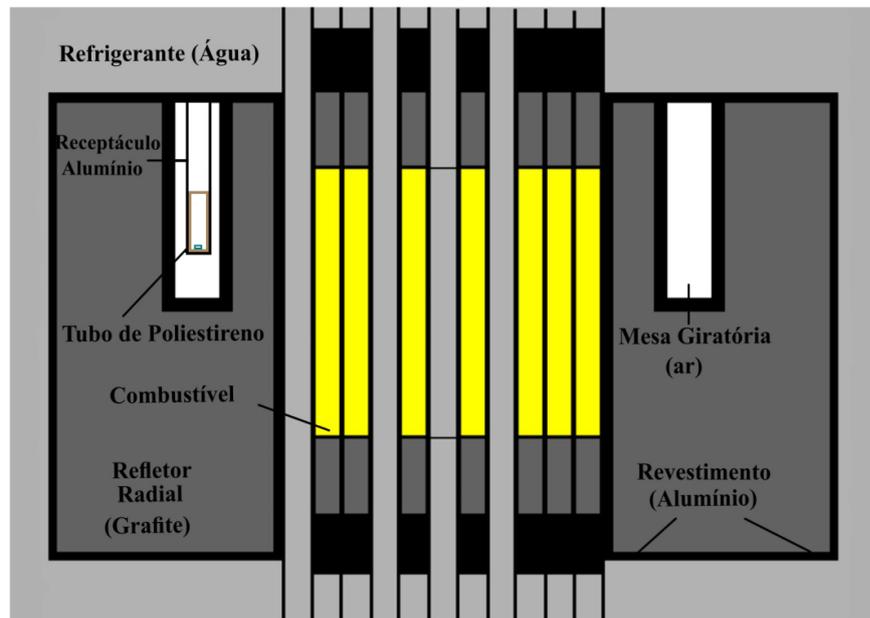


Figura 14 – Vista axial do IPR-R1, desenvolvido no MCNP por GUERRA (2011)

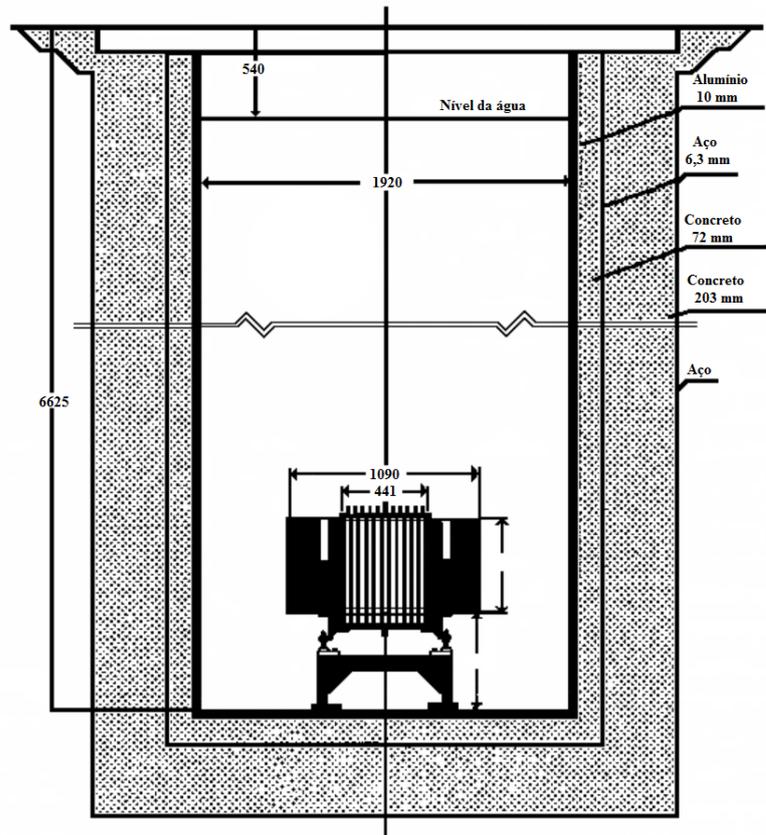


Figura 15 – Poço do Reator TRIGA IPR-R1 (VELOSO, 2005)

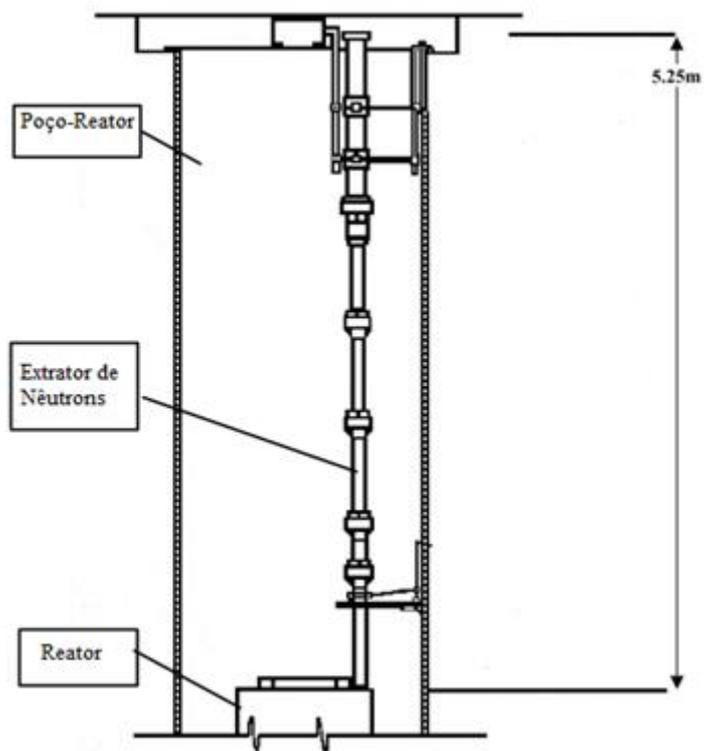


Figura 16 – Extrator de Nêutrons instalado no poço do Reator TRIGA IPR-R1, vista lateral (COSTA *et al.*, 2002b)

3.2 Modelagem do sistema proposto para a aplicação do PGNAA

Como já discutido, para a aplicação do PGNAA é necessário que as amostras sejam submetidas a um fluxo de nêutrons ao mesmo tempo em que é realizada a análise/espectrometria gama das mesmas. Por esta razão, foi considerada a arquitetura do reator (núcleo localizado a aproximadamente 7 metros abaixo do nível do solo) e que todo o sistema de detecção (amostra, detectores, blindagens, etc.) não pode ser instalado sobre a grade do poço do reator (exigência das normas de radioproteção do IRP-R1).

Desta forma, este estudo propôs para a aplicação do PGNAA a instalação de um cilindro de alumínio oco colocado verticalmente sobre o centro do núcleo do reator IPR-R1 e com uma angulação (extrator de nêutrons angulado). Este arranjo do extrator de nêutrons angulado permite que o sistema de detecção do PGNAA possa ficar localizado sobre o piso da sala do reator. A angulação do extrator de nêutrons foi definida pelo maior ângulo possível, considerando a posição sobre o centro do núcleo do reator, devido à questão de quanto maior o ângulo do extrator de nêutrons mais próximo do reator (maior fluxo de nêutrons) estará à posição em que as amostras (sala do reator) serão submetidas ao fluxo de nêutrons para a aplicação do PGNAA. As Figuras 17 a 20 representam como esse sistema foi idealizado e serviu como referência para a modelagem para os cálculos realizados através do código MCNP5.

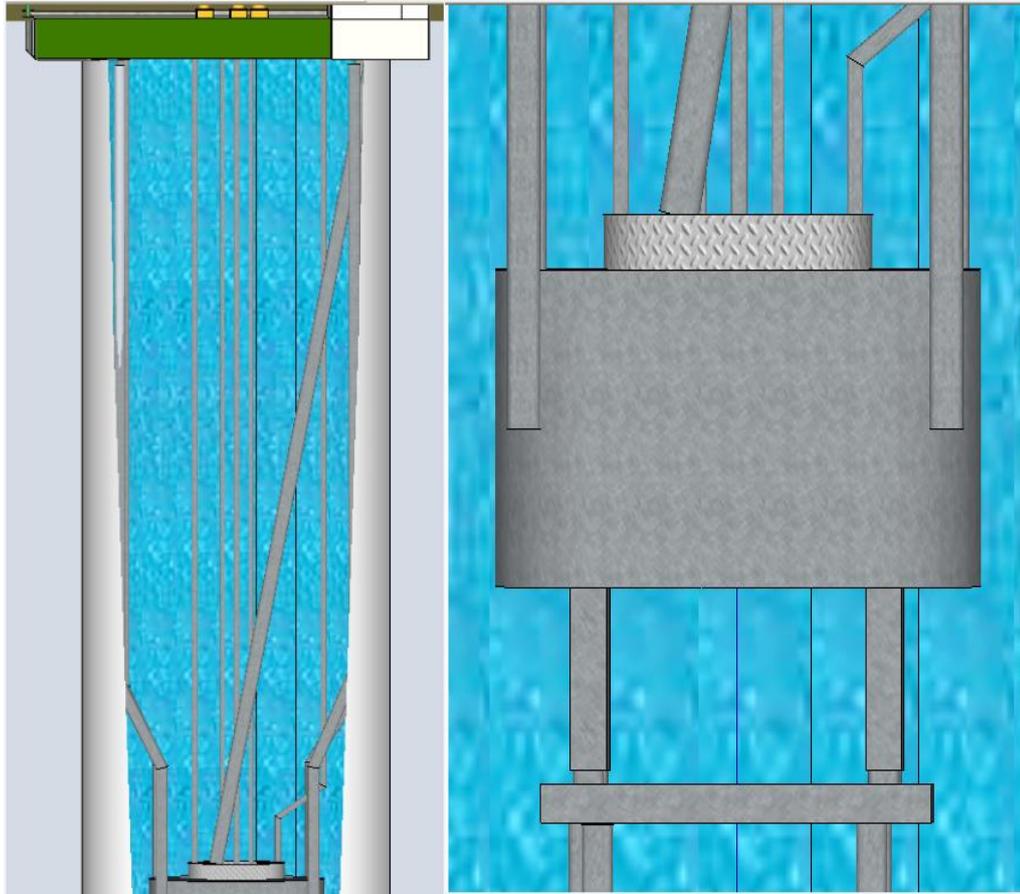


Figura 17 – Sistema PGNAA proposto: vista de perfil no interior do poço do IPR-R1

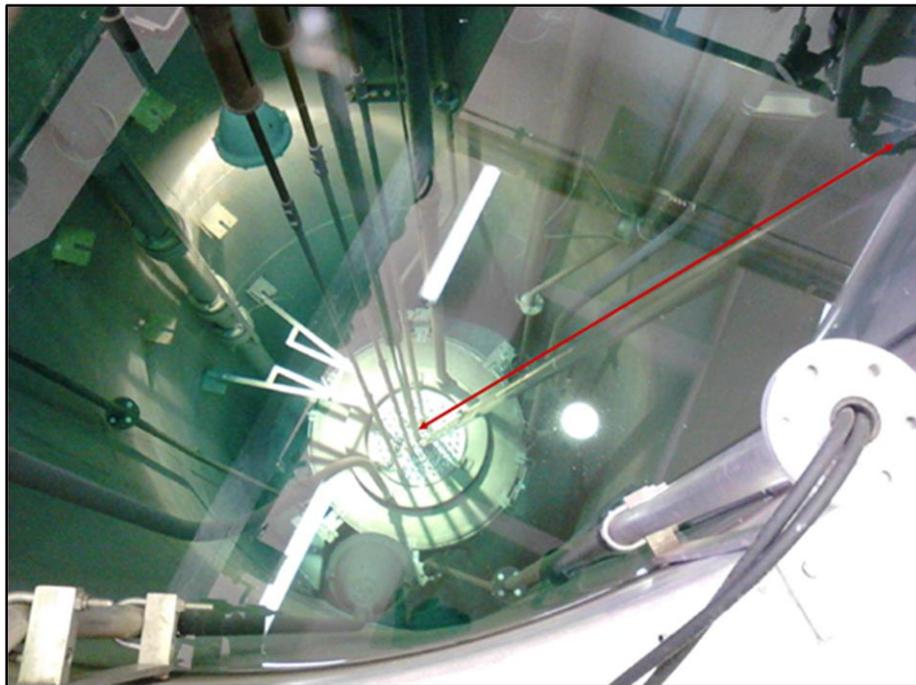


Figura 18 – Vista axial do poço do reator IPR-R1 com o extrator de nêutrons angulado

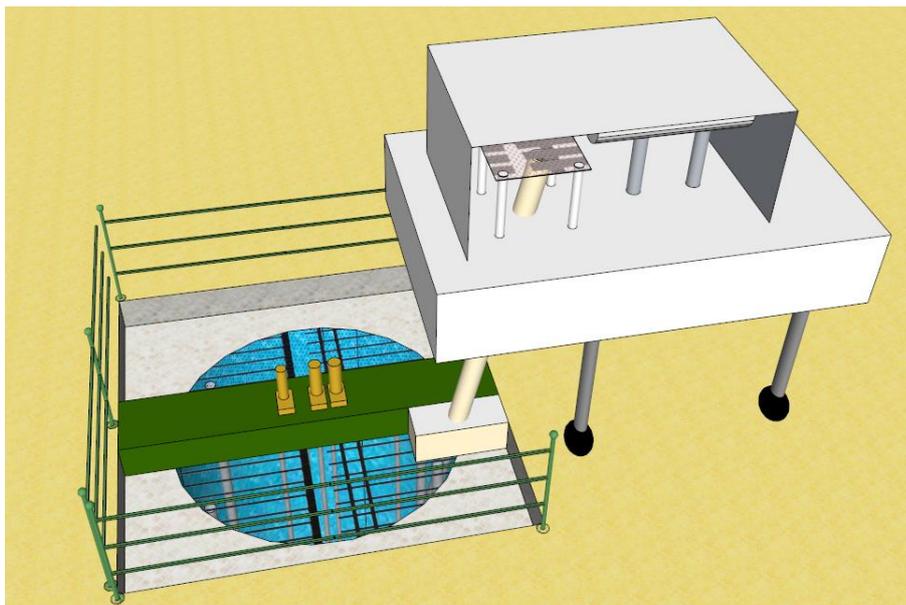


Figura 19 – Esquema proposto: vista superior do sistema PGNAA, no IPR-R1

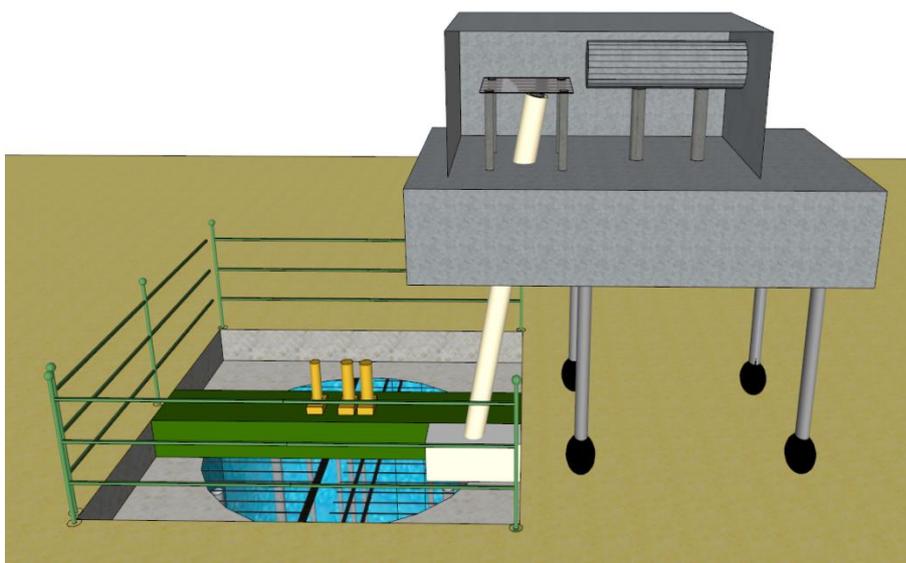


Figura 20 – Esquema proposto: sistema PGNAA, no IPR-R1

Como o extrator de nêutrons angulado é posicionado sobre o centro do núcleo do reator espera-se que o fluxo de nêutrons fora do poço (sala do reator) tenha um aumento significativo em relação ao fluxo de nêutrons de $5,2 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ já obtido através do extrator de nêutrons vertical (periferia do reator), contribuindo ainda mais para a aplicação do PGNAA.

Além disso, de acordo com PAUL E LINDSTROM (2000), se a região onde a amostra será submetida ao fluxo estiver a uma distância considerável da fonte de nêutrons

(reator) ocorrem varias vantagens na aplicação do PGNAA, como taxa elevada de reação por nêutrons, baixo *background* e ausência de interferência de nêutrons rápidos e de radiação gama.

3.3 Validação da metodologia

A aplicação do PGNAA tem como princípio, a reação de captura radioativa (n,γ). Desta forma, a obtenção de um fluxo de nêutrons adequado (da ordem de $10^5 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) é imprescindível para a aplicação deste método. Como o extrator de nêutrons angulado é uma configuração idealizada por este estudo, não existem dados experimentais do mesmo.

Com o objetivo de se estimar o fluxo de nêutrons no local aonde a amostra será submetida à irradiação para a aplicação do PGNAA, há uma necessidade de ser realizada, primeiramente, a validação do modelo desenvolvido neste estudo. Isso foi feito através da estimativa do fluxo de nêutrons ao longo do extrator de nêutrons vertical e também em algumas posições da mesa giratória, por estes possuírem dados experimentais.

Após a estimativa dos fluxos na mesa giratória e no extrator vertical, os resultados obtidos foram submetidos a avaliações estatísticas em relação aos resultados experimentais obtidos em literatura. O objetivo foi em validar essa metodologia para que os futuros resultados do extrator de nêutrons angulado sejam confiáveis.

Por não existirem dados experimentais do sistema PGNAA proposto neste estudo, se fez necessária à utilização do código MCNP5 para estimar o fluxo de nêutrons no principal dispositivo de irradiação de amostras (mesa giratória) e no extrator de nêutrons vertical, ambos no IPR-R1, de maneira a validar esta metodologia.

A estimativa do fluxo de nêutrons é realizada em um volume muito pequeno (amostras - mesa giratória) e em algumas posições com distâncias expressivas do reator IPR-R1 (extrator de nêutrons vertical). Para a metodologia desenvolvida neste estudo a amostragem de nêutrons que chega nestes volumes é muito pequena, resultando, conseqüentemente, em um erro relativo considerável do código MCNP5 (>10%). Por este motivo fez-se necessário à utilização de uma ferramenta de redução de variância do MCNP5, chamada IMP, com o intuito de aprimorar os resultados.

A aplicação da ferramenta IMP é justificada pelo motivo do código permitir o aumento do número de partículas, quando estas passam de um meio para outro. A utilização

desta técnica possibilita um aumento significativo no número de partículas que chegam ao volume analisado, de forma a contribuir para o melhor tratamento estatístico dos cálculos.

A ferramenta IMP consiste em atribuir um número para cada uma das estruturas do experimento, configuradas no arquivo de entrada do MCNP5 (chamadas de células no MCNP). Este número é denominado “importância”. Quando uma partícula passa de um volume V_1 com importância I_1 para outro volume V_2 com importância I_2 , ela é multiplicada pela razão I_2/I_1 e a soma destas partículas terão a mesma contribuição que a partícula inicial. Desta forma, a partícula que for multiplicada em duas ou mais partículas terá seu peso dividido entre as partículas geradas, ou seja, a soma dos pesos destas partículas será igual ao peso da partícula inicial. Assim, a utilidade da ferramenta IMP está na manipulação da amostragem, de forma a melhorar a precisão dos resultados, sem influenciá-los.

Como algumas posições onde foram calculados os fluxos de nêutrons no extrator vertical estão localizadas a distâncias expressivas do reator (mais de 8 metros), a utilização da ferramenta IMP não foi o suficiente para aumentar a amostragem e, conseqüentemente, baixar o erro dos cálculos feito pelo código a níveis aceitáveis. Com o intuito de diminuir o erro relativo do código para este modelo ainda mais e, conseqüentemente, aumentar a confiabilidade dos resultados, outra ferramenta de redução de variância do MCNP5, chamada DXTRAN, foi utilizada.

A utilização da ferramenta DXTRAN é necessária, pois uma pequena quantidade de nêutrons está chegando à região analisada. Para amenizar esta situação, a ferramenta DXTRAN pode ser utilizada pelo usuário ao especificar no arquivo de entrada uma esfera DXTRAN que abrange esta região.

Além das partículas que interagem na região analisada pelo comando *tally* do MCNP5, a ferramenta DXTRAN permite que aquelas que colidem fora deste volume também sejam analisadas. A partir da colisão fora da esfera do DXTRAN, o DXTRAN cria uma partícula especial "partícula DXTRAN" que é transportada para dentro da esfera DXTRAN e a partícula real chamada agora de “partícula NÃO-DXTRAN” continua seu trajeto normalmente.

A sutileza sobre a esfera DXTRAN é que o peso extra acrescentado nas partículas DXTRAN é equilibrado pela destruição das partículas NÃO-DXTRAN caso elas atinjam a esfera DXTRAN. A grande desvantagem desta ferramenta é o tempo extra de processamento consumido para seguir as partículas DXTRAN com peso reduzido.

Com objetivo de verificar se os valores simulados para os fluxos de nêutrons térmicos eram consistentes com os valores experimentais, foi aplicado o conceito de Incerteza Expandida (BROOKES, *et al.*, 1979; SHAKHASHIRO, *et al.*, 2006). Utilizados para avaliar o afastamento dos resultados obtidos pela simulação com MCNP dos valores obtidos experimentalmente. Esse afastamento foi expresso pela Tendência Relativa – TR (Relative Bias) em %. As seguintes Equações foram usadas nos cálculos:

Incerteza Expandida Experimental (E_{exp})

$$E_{exp} = \sqrt{E_{medida}^2 + E_{método}^2} \quad (14)$$

Onde,

E_{medida} é o erro do cálculo individual;

$E_{método}$ é o erro total do método aplicado.

Tendência Relativa (TR):

$$TR = \frac{\text{Valor}_{sim} - \text{Valor}_{exp}}{\text{Valor}_{exp}} \cdot 100\% \quad (15)$$

Onde,

Valor_{sim} é o valor simulado;

Valor_{exp} é o valor experimental.

Teste z-score:

$$z_{score} = \frac{\text{Valor}_{sim} - \text{Valor}_{exp}}{E_{exp}} \quad (16)$$

Desvio padrão (SD):

$$SD = \text{Valor}_{sim} \cdot u_{sim} \quad (17)$$

Intervalo de Confiança (IC):

$$IC = \left| \frac{\text{Valor}_{\text{sim}} - \text{Valor}_{\text{exp}}}{\text{Valor}_{\text{exp}}} \right| - (E_{\text{sim}} + E_{\text{exp}}) \quad (18)$$

Onde:

E_{sim} é o erro relativo do resultado simulado;

E_{exp} é o erro do resultado experimental.

Os parâmetros da análise de confiabilidade dos resultados são os seguintes:

- $E_{\text{sim}} \leq 10\%$ (satisfatório), $10\% < E_{\text{sim}} \leq 50\%$ (questionável), $50\% < E_{\text{sim}}$ (insatisfatório) (BRIESMEISTER, 2000).
- $z_{\text{score}} \leq 2$ (satisfatório), $2 < z_{\text{score}} < 3$ (questionável) e $z_{\text{score}} \geq 3$ (insatisfatório);
- o valor da IC deve ser negativo;
- a TR deve ter um valor $\leq 15\%$.

3.4 Cálculos de fluxo de nêutrons no sistema proposto para a aplicação do PGNAA

Com a realização da validação desta metodologia, o próximo passo foi calcular o fluxo de nêutrons ao longo do extrator de nêutrons angulado (sobre o centro do núcleo do reator) e no local proposto (posição em que o sistema de detecção não fique sobre o poço do reator e o mais próximo possível do reator) para que a amostra seja submetida ao fluxo de nêutrons. Os resultados foram analisados e comparados com os fluxos utilizados nos mais diversos laboratórios de outros países que aplicam o PGNAA e assim avaliou-se a necessidade ou não de novas configurações para ser obter um fluxo de nêutrons mais adequado.

Para todos os cálculos de fluxo de nêutrons, as faixas de energia foram divididas em duas categorias: a faixa térmica ($E < 0,625$ eV) e epitérmica ($0,625$ eV $< E < 100$ keV), sendo que a faixa de nêutrons rápidos ($E > 100$ keV) não foi avaliada (SNOJ *et al.*, 2011).

Os resultados calculados pelo MCNP para o fluxo de nêutrons são dados em fluência ($n\text{ cm}^{-2}$). Portanto, para obter os valores reais de forma a comparados com valores experimentais é necessário normalizar todos estes resultados.

A normalização do fluxo de nêutrons deve ser feita em função da potência térmica do sistema. A aplicação da Equação 26 permite a comparação dos dados adquiridos pelo código com o fluxo de nêutrons experimental:

$$\phi_n^j = \phi_j \cdot \frac{\text{Potência} \cdot \nu}{Q \cdot k_{\text{eff}}} \quad (19)$$

Sendo:

ϕ_n^j , o fluxo de nêutrons na célula j ($\frac{\text{nêutrons}}{\text{cm}^2 \cdot \text{s}}$);

ϕ_j , a fluência na célula j;

Potência é a potência térmica do sistema;

ν são os nêutrons produzidos por fissão;

Q é a média das energias liberadas por fissão;

k_{eff} é o fator de multiplicação (coeficiente de criticalidade) efetivo do sistema.

3.5 Cálculos de fluxo de nêutrons, taxa de reação e limite de detecção em amostras

Após o estudo do fluxo de nêutrons ao longo do extrator angulado, o passo seguinte foi em calcular o fluxo de nêutrons, a taxa de reação e o limite de detecção de alguns isótopos com o objetivo de verificar a determinação dos mesmos através da aplicação do PGNAA nas instalações do CDTN.

Todos os isótopos escolhidos são analisados pelo PGNAA, possuem dados experimentais para que possam servir de comparação e a maioria tem alguma das seguintes características: isótopos com maior abundância isotópica natural relacionada com os seus elementos, não são analisados pela AAN convencional (devido a propriedades nucleares) MOLNAR (2004). Por exemplo, tempo de decaimento muito rápido e possuem uma grande variedade de aplicações em diversas áreas da ciência, como por exemplo, material de construção, combustíveis fósseis, nuclear, agrícola, dentre outras.

Além disso, vários deles são elementos pesados (maior seção de choque de captura para nêutrons térmicos, Figura 21) contribuindo para que ocorra a reação de captura (principal reação para a aplicação do PGNAA) devido ao fluxo de nêutrons que a amostra será

submetida tem um espectro de energia mais termalizado porque a posição da amostra esta localizada a uma distância considerável do reator.

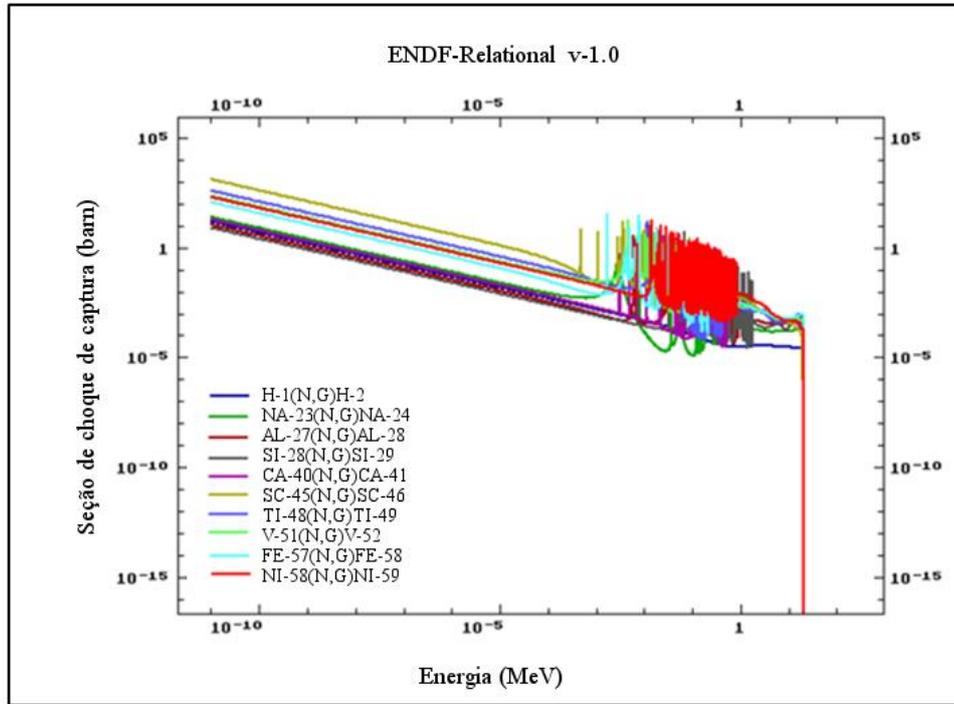


Figura 21 – Seção de choque microscópica de captura ENDF/B-VII.1 (NDS-IAEA, 2016)

O limite de detecção é calculado pela seguinte expressão:

$$DL = \frac{A_{\min}M}{0.6022\sigma_{\gamma 0}\Phi_0\varepsilon_{\text{geom}}t_{\max}} \quad (20)$$

onde: DL é o limite de detecção, expressa em g; A_{\min} é a área mínima de pico necessária para a identificação; M é a massa atômica relativa (ou simplesmente o número de massa); $0,6022 \times 10^{-24}$ é o número de Avogadro; $\sigma_{\gamma 0}$ é a seção de choque em barn; Φ_0 é o fluxo de nêutrons; $\varepsilon_{\text{geom}}$ é eficiência geométrica e o T_{\max} é o tempo de medição utilizado.

Para o cálculo do limite de detecção foi utilizado o exemplo dado em MOLNAR (2004), o que determinou a A_{\min} (600) e a $\varepsilon_{\text{geom}}$ (0,001). Assim, utilizando estes valores e os resultados de taxa de reação calculados, o código MCNP5, neste trabalho foi possível obter os limites de detecção para cada isótopo analisado.

3.6 Comparação dos limites de detecção

Com o objetivo de avaliar e comparar os limites de detecção de todos os isótopos calculados neste trabalho foram configurados 5 Modelos, com base nas características tanto do sistema de aplicação do PGNAA em quanto no IPR-R1 MOLNAR (2004). Estes modelos levam em consideração o fluxo de nêutrons e o tempo em que a amostra é submetida ao mesmo nos dois sistemas (MOLNAR e IPR-R1). Por exemplo, o fluxo de nêutrons que a amostra é submetida em MOLNAR (2004) é da ordem de $10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ com um tempo de 10^5 s enquanto no IPR-R1 o fluxo de nêutrons é da ordem de $10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ com um tempo de 28.800 s.

Os Modelos configurados para o calculo do limite de detecção são os seguintes:

Modelo 1: Padrão, MOLNAR (2004);

Modelo 2: Tendo em conta que a diferença do fluxo de nêutrons entre os sistemas em MOLNAR e no IPR-R1, a taxa de reação calculada pelo MCNP5 foi multiplicado por 10^2 para o calculo de limite de detecção e o tempo utilizado foi de 10^5 s;

Modelo 3: a taxa de reação calculada foi multiplicado por 10^2 novamente, embora o tempo utilizado foi 28.800 s. Este valor de tempo foi utilizado porque a rotina de operação do reator IPR-R1 é de 8 horas por dia.

Modelo 4: o valor da taxa de reação (MCNP5) com o tempo de 10^5 s;

Modelo 5: o valor da taxa de reação (MCNP5) com um t igual a 28.800 s.

A partir destes modelos é possível comparar os resultados obtidos no presente estudo com os dados experimentais obtidos por MOLNAR (2004).

3.7 Dose na sala do reator TRIGA IPR-R1 com a instalação do sistema PGNAA

Por fim, com o propósito de comparar um possível aumento da dose de nêutrons e da radiação gama na sala do reator IPR-R1, foram realizadas duas configurações: uma sem os extratores de nêutrons e outra com o extrator de nêutrons angulado.

O Modelo 1 foi desenvolvido sem qualquer um dos extratores de nêutrons, para que estes dados pudessem servir de base para se avaliar o aumento da dose na sala do reator em decorrência da instalação do extrator de nêutrons angulado.

Já no Modelo 2, foi realizada a modelagem do extrator de nêutrons angulado. A configuração deste modelo teve como objetivo identificar qual seria a dose que o operador do sistema PGNAA estaria sujeito durante as análises das amostras.

4 RESULTADOS E DISCUSSÕES

4.1 Modelagem do reator TRIGA IPR-R1 com extrator vertical

A modelagem do reator IPR-R1 desenvolvido neste trabalho utilizando o código MCNP5, foi realizada com base em modelos desenvolvidos por estudos anteriores (DALLE, 2004; GUERRA, 2011). Com o objetivo de caracterizar melhor a configuração do reator IPR-R1, foram acrescentadas, nestes modelos, algumas estruturas que compõem toda a estrutura do reator, Figura 22.

As alterações realizadas se basearam na inserção no modelo, do seguinte:

- Poço do reator: composto por concreto; suas dimensões são de raio interno 96 cm, raio externo 800 cm e altura 641,7 cm;
- Piscina do poço do reator: composto por aproximadamente 18.000 litros de água;
- Extrator de nêutrons vertical (Figura 22): composto por uma parede de 2 mm de alumínio, suas dimensões são de raio interno 4,65 cm, raio externo 4,85 cm e altura e 525,0 cm, posicionado a aproximadamente 45 cm do centro do núcleo do reator;

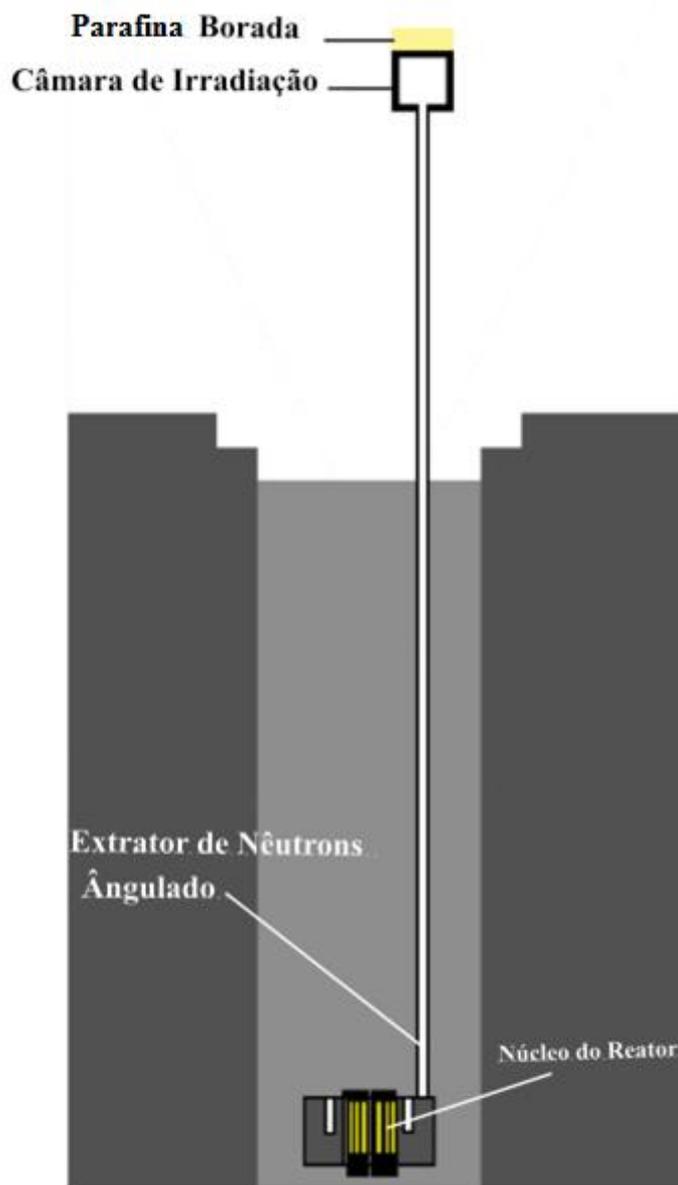


Figura 22 – Modelo da estrutura do reator TRIGA IPR-R1 com extrator vertical, MCNP5

4.2 Modelagem do sistema proposto para a aplicação do PGNAA

O extrator de nêutrons para a aplicação do PGNAA foi idealizado sobre o centro do núcleo do reator e angulado (extrator de nêutrons angulado), Figuras 17 a 20 no item 3.2, deslocando assim todo o sistema de detecção para o piso da sala do reator.

Por esta razão, o modelo do sistema PGNAA foi desenvolvido a partir da nova configuração (acréscimo do poço e do extrator vertical), porém com a alteração na posição do

extrator de nêutrons vertical que será deslocado para o centro do reator e angulado (extrator de nêutrons angulado).

Para o modelo do sistema PGNAA foi retirado o extrator de nêutrons vertical e inserido as seguintes estruturas (Figura 23):

- Extrator de nêutrons angulado: composto por uma parede de 2 mm de alumínio; suas dimensões são de raio interno 2,5 cm, raio externo de 2.7 cm, altura 850,0 cm, posicionado e angulado 10 graus sobre o centro do núcleo do reator;
- Câmara de irradiação da amostra: composta por chumbo; suas dimensões são de comprimento de 220 cm, largura de 220 cm, altura 100 cm e 5 cm de espessura de chumbo;
- Blindagem sobre a câmara: composto por parafina-borada; suas dimensões são de comprimento de 220 cm, largura de 220 cm e 20 cm de altura.

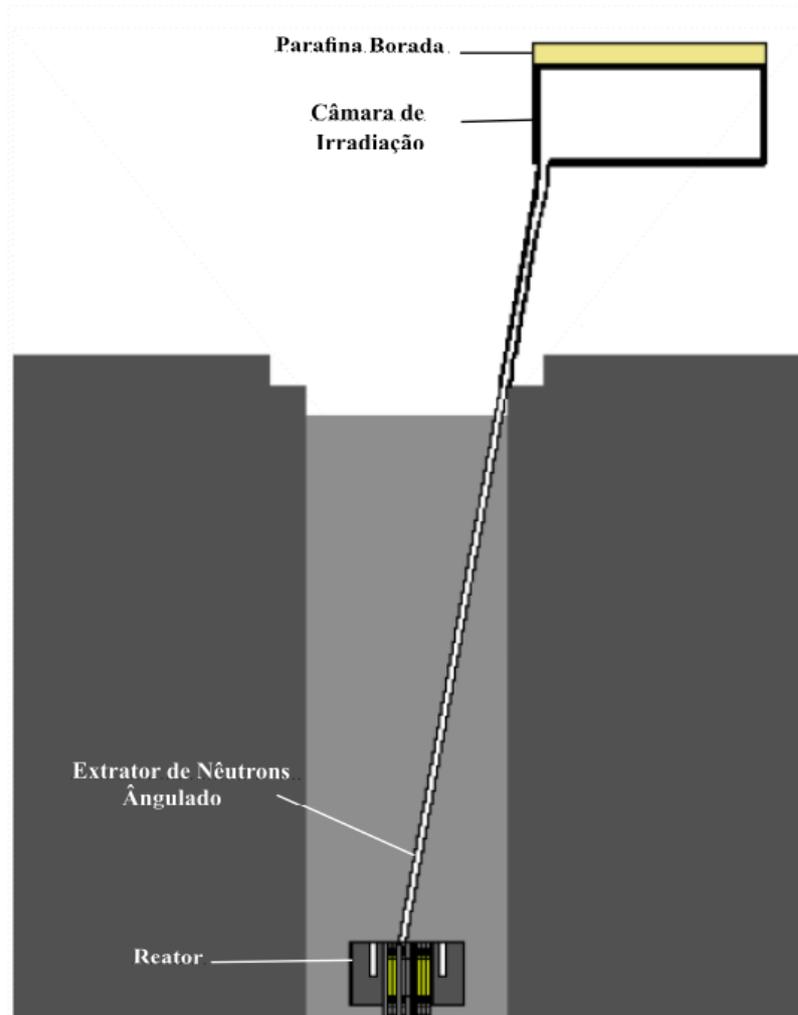


Figura 23 – Modelo do sistema PGNAA, MCNP5

O extrator de nêutrons angulado foi configurado com essa espessura devido ao CDTN já possuir um cilindro oco de alumínio com essa dimensão (2 mm), seu comprimento é a distância necessária para que ele atinja a posição proposta para que a amostra seja submetida ao fluxo de nêutrons.

Já a posição para que a amostra seja submetida ao fluxo de nêutrons foi de aproximadamente 820 cm de distância do reator e 280 cm sobre a sala do reator. Esta posição foi escolhida por ser o local com o maior fluxo de nêutrons encontrado na sala do reator sem que fosse instalado o sistema de detecção sobre o poço do reator.

Em torno da amostra foi configurada uma blindagem de chumbo (chamada de câmara de irradiação) e sobre a mesma foi colocado uma blindagem de parafina borada. A espessura de chumbo da câmara de irradiação foi escolhida baseada na literatura (MOLNAR, 2004). Para a blindagem de parafina borada foi modelada com uma espessura excessiva com o proposito de blindar praticamente todos os nêutrons que ultrapassem o revestimento superior da câmara de irradiação.

Após toda a configuração do sistema PGNAA, MCNP5, foi realizado uma análise prévia de como estaria o comportamento do fluxo de nêutrons no sistema. Desta forma, foi utilizado o programa VISED, que é um *software* de edição visual do MCNP, por ter uma melhor interface gráfica e por ele possuir uma ferramenta que simula o comportamento das partículas em um sistema (*Plot Particle Tracks*). Assim, utilizando esta ferramenta, foi possível visualizar a importância do extrator de nêutrons angulado no transporte dos nêutrons gerados no núcleo do reator IPR-R1, para fora do poço até a região de interesse (câmara de irradiação), Figura 24.

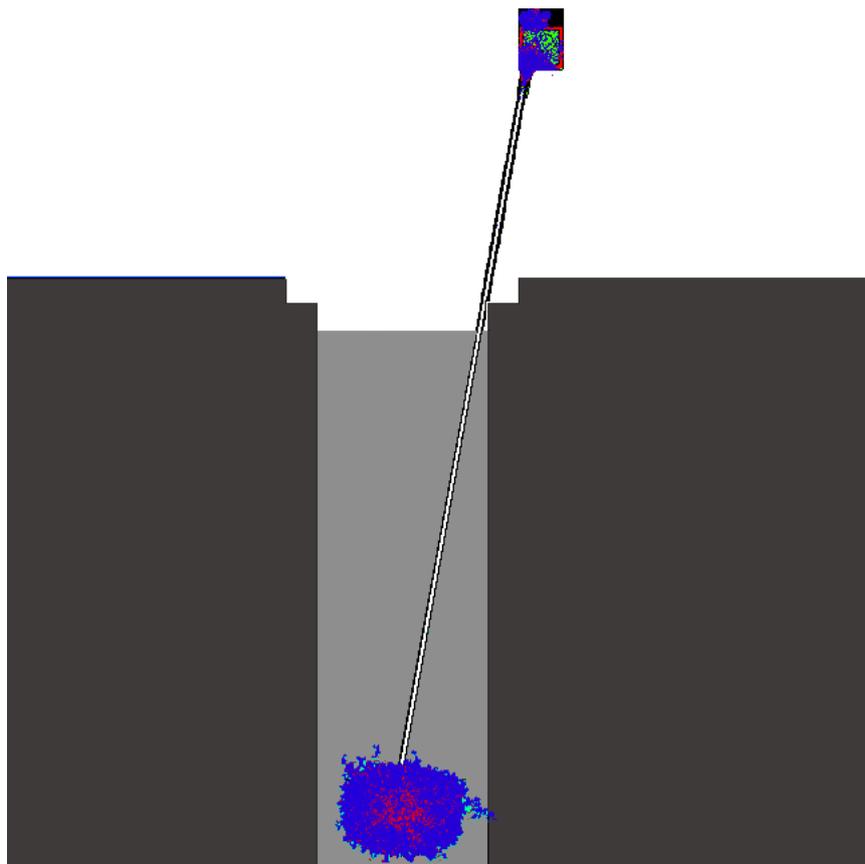


Figura 24 – Modelo do sistema PGNA, VISED

4.3 Validação da metodologia

Todos os cálculos de fluxo de nêutrons apresentados neste trabalho foram realizados com a versão 5.1.40 do código MCNP, utilizando o cluster do Centro Nacional de Processamento de Alto Desempenho para Minas Gerais (CENAPAD, 2016) e a biblioteca de secção de choque ENDF/B-VII.0 (processado no Centro Nacional de Dados Nuclear em Brookhaven, obtido a partir do Centro de Informações de Segurança de Radiação Computacional em Oak Ridge) (BRIESMEISTER, 2000). Já para a normalização do fluxo de nêutrons foram utilizados os seguintes valores de ν igual a 2,437 e Q igual a 201,022 MeV.

Primeiramente, foi feita a estimativa do fluxo de nêutrons térmicos, utilizando o MCNP5, em 11 posições da Mesa Giratória (posições de irradiação, P1, 3, 7, 10, 24, 25, 29, 34, 35, 38 e 40) e os respectivos resultados foram comparados com dados experimentais obtidos por Menezes e colaboradores (2008). A Tabela 8 apresenta esses valores.

Tabela 8 – Fluxos de nêutrons térmicos determinados experimentalmente (MENEZES *et al.*, 2008) e por simulação (GUERRA, 2013a) em posições de irradiação na mesa giratória

Posição de Irradiação	Valor _{exp.} (n cm ⁻² s ⁻¹)	E _{exp.} (%)	Valor _{sim.} (n cm ⁻² s ⁻¹)	E _{sim.} (%)	TR (%)	z-score	IC
1	6,69 x 10 ¹¹	9,72	6,52 x 10 ¹¹	3,26	2,60	0,25	-0,10
3	6,55 x 10 ¹¹	9,16	6,69 x 10 ¹¹	3,64	2,13	0,22	-0,11
7	6,35 x 10 ¹¹	7,87	6,35 x 10 ¹¹	3,72	0,07	0,01	-0,12
10	5,89 x 10 ¹¹	10,02	6,60 x 10 ¹¹	3,09	12,14	1,15	-0,01
24	6,94 x 10 ¹¹	9,80	6,51 x 10 ¹¹	3,41	6,26	0,61	-0,07
25	6,45 x 10 ¹¹	8,84	6,54 x 10 ¹¹	3,22	1,33	0,14	-0,11
29	7,32 x 10 ¹¹	7,92	6,43 x 10 ¹¹	2,88	12,12	1,46	0,01
34	7,30 x 10 ¹¹	9,18	6,43 x 10 ¹¹	3,45	11,94	1,24	-0,01
35	7,18 x 10 ¹¹	8,22	6,18 x 10 ¹¹	3,14	13,95	1,61	0,03
38	6,58 x 10 ¹¹	8,36	6,41 x 10 ¹¹	3,42	2,62	0,29	-0,09
40	6,16 x 10 ¹¹	9,09	6,15 x 10 ¹¹	3,32	0,15	0,02	-0,12

Valor_{exp.}, valor experimental; E_{exp.} (%), erro experimental; Valor_{sim.}, valor do MNCP5; E_{sim.}, erro relativo do código; TR, Tendência Relativa; IC, Intervalo de Confiança

Como pode ser observado na Tabela 8, o erro relativo intrínseco do código MCNP (E_{sim.}) para todas as posições foi inferior a 4%, para a TR a variação foi de 0,07% (PI-7) a 13,95% (PI-35). Já os resultados do teste z-score tem uma margem de 0,01 a 1,61, menores do que 2, indicando que a performance do método simulado foi satisfatória.

Por fim, os valores do Intervalo de Confiança, IC, apresentou uma flutuação de -0,12 a 0,03. Pode ser concluído que para todos os resultados de fluxo de nêutrons térmicos na mesa giratória são satisfatórios em virtude de estarem dentro da margem de confiança para a análise do E_{sim.} (≤ 10%), TR (≤ 15%) e z-score (≤ 2). Além disso, para a análise da IC (negativo – satisfatório) apenas as posições 29 e 35 não apresentaram resultado satisfatório, ou seja, 82% dos resultados se encontram no Intervalo de Confiança.

Em seguida, o fluxo de nêutrons térmicos foi calculado em 8 posições ao longo do extrator de nêutrons vertical (alturas 110, 155, 200, 275, 290, 383, 395 e 475 cm), a partir do núcleo do reator, para comparar os valores obtidos com os dados experimentais (GUERRA *et al.*, 2013), Tabela 9.

Tabela 9 – Fluxo de nêutrons térmicos no extrator de nêutrons vertical

Posição - Z* (cm)	Valor _{exp.} (n cm ⁻² s ⁻¹)	E _{exp.} (%)	Valor _{sim.} (n cm ⁻² s ⁻¹)	E _{sim.} (%)	TR (%)	z-score	IC
1 - 110	4,70 x10 ⁸	10,0	5,08 x10 ⁸	1,22	8,09	0,81	-0,03
2 - 155	2,20 x10 ⁸	10,0	1,60 x10 ⁸	3,00	27,27	-2,73	0,14
3 - 200	5,60 x10 ⁷	10,0	5,60 x10 ⁷	3,33	0,04	0,00	-0,13
4 - 275	2,40 x10 ⁷	10,0	2,39 x10 ⁷	5,80	0,21	-0,02	-0,16
5 - 290	1,80 x10 ⁷	10,0	2,04 x10 ⁷	5,30	13,33	1,33	-0,02
6 - 383	5,90 x10 ⁶	10,0	7,20 x10 ⁶	6,62	22,03	2,20	0,05
7 - 395	7,70 x10 ⁶	10,0	6,30 x10 ⁶	5,00	18,18	-1,82	0,03
8 - 475	5,60 x10 ⁶	10,0	6,42 x10 ⁶	8,18	14,65	1,46	-0,04

*Distância em relação ao núcleo do reator; Valor_{exp.}, valor experimental; E_{exp.} (%), erro experimental; Valor_{sim.}, valor do MNCP5; E_{sim.}, erro relativo do código; TR, Tendência Relativa; IC, Intervalo de Confiança

Observa-se na Tabela 9, que em relação aos resultados do fluxo de nêutrons térmicos no extrator vertical, a E_{sim.} variou de 1,22% a 8,18%, para TR a flutuação foi de 0,04% a 27,27% e o z-score apresentou uma variação de -2,73 a 1,46 e por fim a IC tem uma variação de -0,16 a 0,14. Todos os resultados do fluxo no extrator de nêutrons são satisfatórios devido a E_{sim.}, o z-score e o IC obtidos serem aceitáveis. Apenas a posição 6 o z-score obtido (2,20) esta um pouco acima do valor aceitável (≤ 2) e para o IC apenas três dos oito valores são positivos (não aceitável).

Já a TR teve quatro valores superiores a 15% (aceitável), mas isso pode ser justificado pela falta de informações de alguns dados, como por exemplo, a configuração do reator, a distância entre o extrator vertical e o núcleo do reator, ausência de especificações dos procedimentos experimentais (Valor_{exp.}), dentre outras. Pequenas variações da distância entre o extrator de nêutrons vertical e o núcleo do reator podem modificar drasticamente o valor do fluxo de nêutrons obtido.

Todos os resultados obtidos para validação desta metodologia foram normalizados pela potência térmica do reator IPR-R1 (100kW).

A Figura 25 apresenta a comparação do fluxo de nêutrons térmico simulado com os dados experimentais (GUERRA *et al.*, 2013), observando-se uma concordância nos resultados.

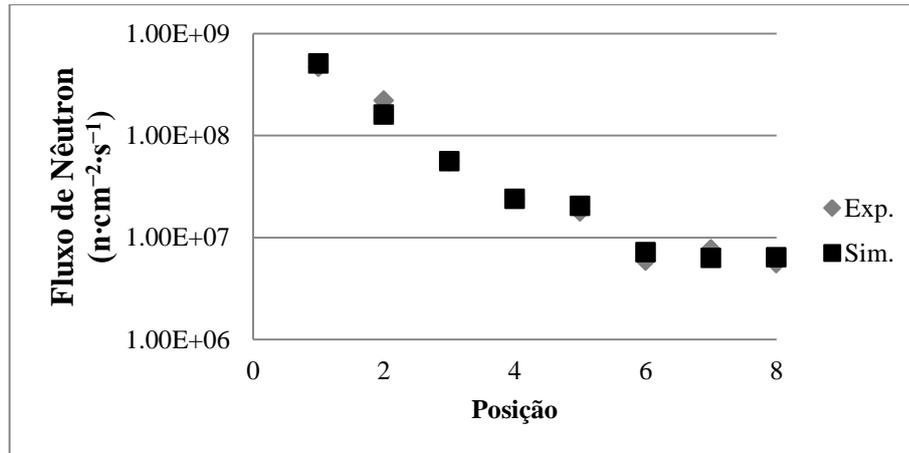


Figura 25 – Fluxo de nêutrons térmicos ($n \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) no extrator de nêutrons vertical

4.4 Cálculos de fluxo de nêutrons no sistema proposto para a aplicação do PGNAA

Os cálculos a seguir, analisam o fluxo de nêutrons ao longo do extrator angulado, simulados por MCNP. Desta forma, foi realizada a estimativa do fluxo de nêutrons em 10 posições, variando em média 100 cm de uma posição a outra, ao longo do extrator de nêutron angulado (diâmetro de 5 cm) e na câmara de irradiação das amostras (Posição 10), como apresentado na Figura 26. Os resultados foram normalizados pela potência térmica do reator IPR-R1 (100kW) e são mostrados na Figura 27 e Tabela 10.

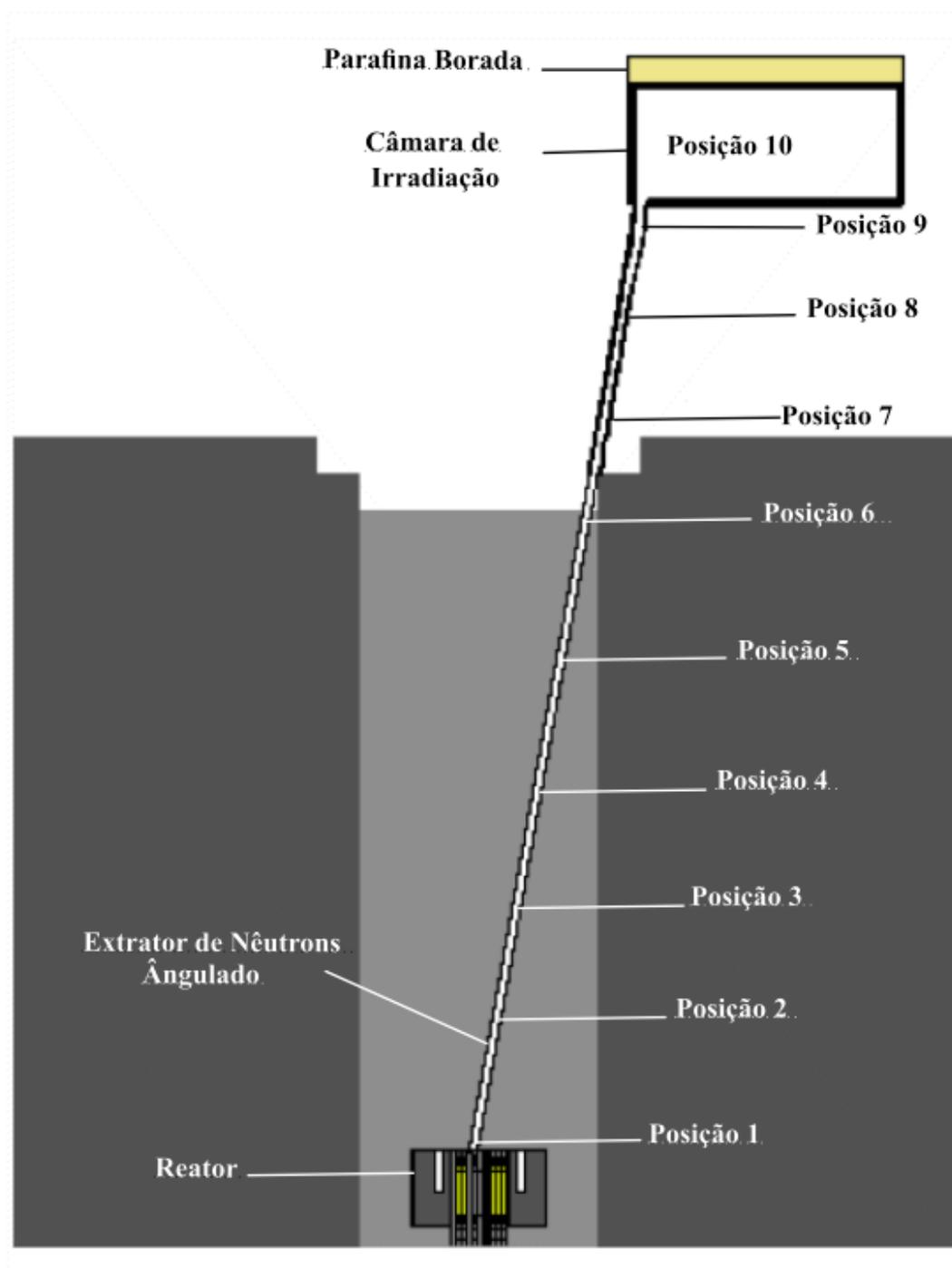


Figura 26 – Modelo do sistema PGNAA, MCNP5

Tabela 10 – Fluxo de nêutrons e o fator f, ao longo do extrator de nêutrons angulado no IPR-R1 (5 cm - 100 kW)

Posição de Irradiação	ϕ_t (n cm ⁻² s ⁻¹)	E _{sim.} (%)	$\phi_{ep.}$ (n cm ⁻² s ⁻¹)	E _{sim.} (%)	ϕ_{total} (n cm ⁻² s ⁻¹)	E _{sim.} (%)	f ($\phi_t/\phi_{ep.}$)
1	2,3 x 10 ¹¹	0,60	2,2 x 10 ¹⁰	1,57	2,9 x 10 ¹¹	0,54	10,06
2	1,1 x 10 ⁸	8,95	1,5 x 10 ⁷	2,59	1,6 x 10 ⁸	6,24	7,49
3	1,7 x 10 ⁷	1,21	3,2 x 10 ⁶	2,57	2,7 x 10 ⁷	0,91	5,4
4	7,3 x 10 ⁶	4,47	1,3 x 10 ⁶	3,19	1,1 x 10 ⁷	2,89	5,4
5	3,3 x 10 ⁶	2,43	7,2 x 10 ⁵	7,83	5,7 x 10 ⁶	2,05	4,5
6	2,0 x 10 ⁶	3,73	4,9 x 10 ⁵	10,40	3,5 x 10 ⁶	3,03	4,0
7	1,1 x 10 ⁶	0,74	2,3 x 10 ⁵	2,01	1,97 x 10 ⁶	0,68	4,8
8	7,9 x 10 ⁵	1,11	1,6 x 10 ⁵	3,44	1,38 x 10 ⁶	1,08	4,9
9	6,6 x 10 ⁵	1,18	1,3 x 10 ⁵	3,75	1,17 x 10 ⁶	1,24	4,8
10 (amostra)	7,3 x 10 ³	1,45	1,2 x 10 ³	3,90	1,02 x 10 ⁴	1,34	5,8

ϕ_t , fluxo de nêutrons térmicos; E_{sim.}, erro relativo do código; $\phi_{ep.}$, fluxo de nêutrons epitérmicos; ϕ_{total} fluxo de nêutrons total

O resultado do fluxo de nêutrons térmicos na posição 9 próxima à câmara de irradiação da amostra foi de 6,6 x 10⁵ n cm⁻² s⁻¹ e o total de 1,17 x 10⁶ n cm⁻² s⁻¹. Já na câmara de irradiação da amostra, o fluxo térmico é de 7,3 x 10³ n cm⁻² s⁻¹ e o total de 1,02 x 10⁴ n cm⁻² s⁻¹. É possível se observar uma queda significativa (aproximadamente 10² n cm⁻² s⁻¹) do fluxo de nêutrons em uma pequena variação de distância. Essa diferença pode ter sido ocasionada devido à blindagem que envolve a câmara de irradiação.

Na Figura 27, observa-se que os comportamentos dos fluxos térmico e epitérmico, conseqüentemente o fluxo total, são similares ao longo do extrator de nêutrons angulado.

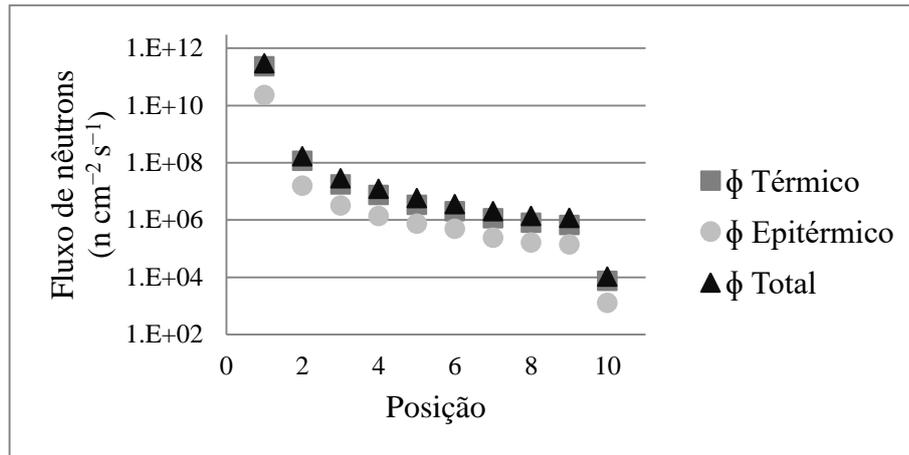


Figura 27 – Fluxo de nêutrons ($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$) ao longo do extrator de nêutrons angulado no reator IPR-R1

Na Figura 28, é possível também observar que o fluxo de nêutrons ao longo do extrator angulado é um fluxo predominantemente térmico. Isso porque sua contribuição ao fluxo total, em relação ao rápido e epitérmico, é sempre maior. No ponto mais próximo do núcleo, 80% dos nêutrons é constituído de térmicos; ao longo do extrator é de 60% e alcançando 70% na posição da câmara de irradiação da amostra, como se pode observar na Figura 28.

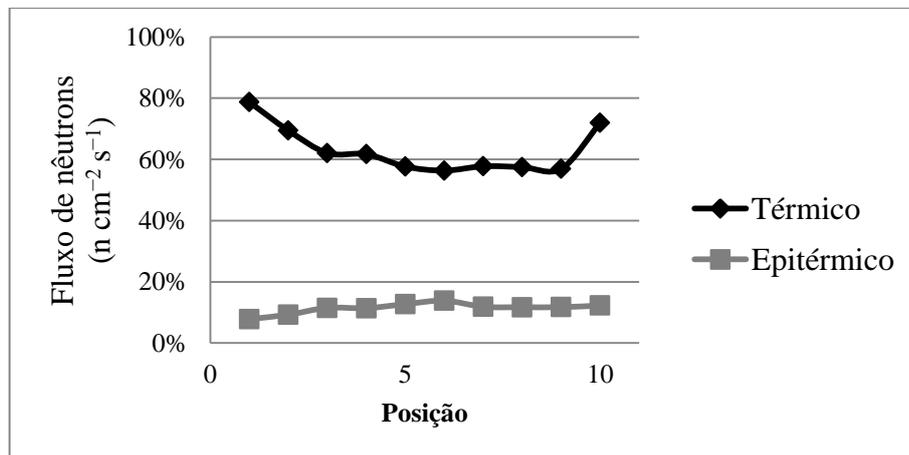


Figura 28 – Caracterização do Fluxo de nêutrons ($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$) longo do extrator de nêutrons angulado no IPR-R1

Considerando que o reator IPR-R1 possuiu uma rotina de operação de 8 horas (28.000 s), fez-se necessário avaliar qual seria o fluxo de nêutrons na posição da amostra se ao invés de 5 cm de diâmetro, o extrator de nêutrons fosse configurado a 10 cm de diâmetro.

Foi feito o estudo em relação ao extrator de nêutrons angulado com 10 cm de diâmetro de todo o espectro de nêutrons ($3,0 \times 10^{-3}$ eV a 10,0 MeV) nas mesmas 10 posições do extrator de nêutrons de 5 cm de diâmetro, utilizando o MCNP5. A Figura 29 ilustra os espectros de nêutrons e a Tabela 11 demonstra os valores estimados do fluxo de nêutrons térmico, epitérmico e total em cada uma dessas posições.

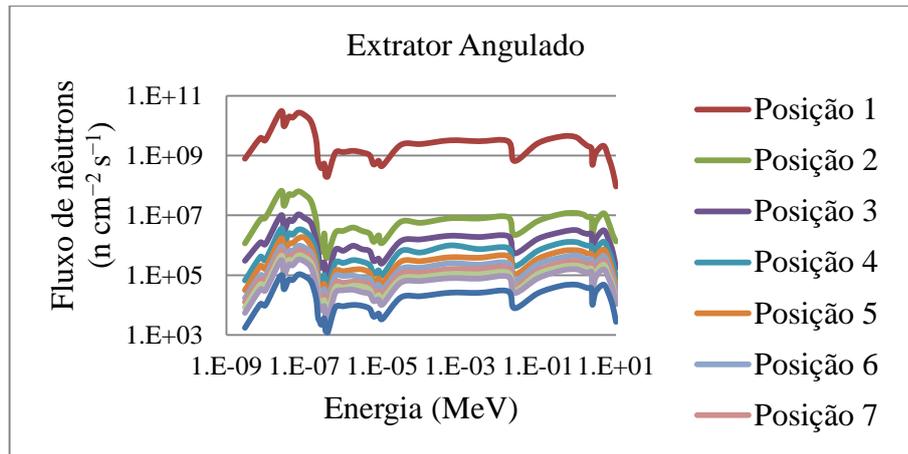


Figura 29 – Espectro do fluxo de nêutrons ao longo do extrator angulado (10 cm)

Tabela 11 – Fluxo de nêutrons e o fator f, ao longo do extrator de nêutrons angulado no IPR-R1 (10 cm - 100 kW)

Posição de Irradiação	ϕ_t ($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$)	$E_{\text{sim.}}$ (%)	$\phi_{\text{ep.}}$ ($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$)	$E_{\text{sim.}}$ (%)	ϕ_{total} ($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$)	$E_{\text{sim.}}$ (%)	f ($\phi_t/\phi_{\text{ep.}}$)
1	$1,57 \times 10^{11}$	2,59	$2,39 \times 10^{10}$	2,71	$2,01 \times 10^{11}$	0,44	6,57
2	$3,61 \times 10^8$	14,31	$6,22 \times 10^7$	9,07	$5,05 \times 10^8$	4,38	5,81
3	$5,76 \times 10^7$	12,30	$1,50 \times 10^7$	6,34	$9,37 \times 10^7$	3,04	3,83
4	$1,98 \times 10^7$	4,46	$6,05 \times 10^6$	5,04	$3,45 \times 10^7$	1,43	3,26
5	$1,00 \times 10^7$	4,91	$3,01 \times 10^6$	3,32	$1,78 \times 10^7$	2,21	3,33
6	$5,42 \times 10^6$	5,00	$1,83 \times 10^6$	5,78	$1,02 \times 10^7$	0,70	2,96
7	$3,80 \times 10^6$	2,66	$1,21 \times 10^6$	2,96	$7,03 \times 10^6$	0,47	3,14
8	$2,61 \times 10^6$	3,01	$8,52 \times 10^5$	3,34	$4,91 \times 10^6$	0,91	3,06
9	$1,85 \times 10^6$	3,46	$6,25 \times 10^5$	4,72	$3,56 \times 10^6$	0,67	2,96
10 (amostra)	$5,97 \times 10^5$	2,42	$2,00 \times 10^5$	3,17	$1,13 \times 10^6$	0,43	2,97

Como pode ser observado na Figura 29, o fluxo de nêutrons ao longo do extrator de nêutrons angulado (com 10 cm de diâmetro) diminui com o aumento da distância do núcleo do reator, porém seu comportamento permanece o mesmo. Além disso, pode ser

observado que na posição proposta para que a amostra seja submetida ao fluxo de nêutrons no sistema PGNAA foi encontrado um fluxo de nêutrons térmicos de $5,97 \times 10^5 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ e um fluxo total de nêutrons de $1,13 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

De acordo com o manual do MCNP (BRIESMEISTER, 2000; BRIESMEISTER, 2003; BROOKES *et al.* 1979), o erro relativo do MCNP5 é aceitável quando $<10\%$. Apenas para as Posições 3 e 4 e na faixa térmica o erro ficou acima do aceitável, para todas as outras posições os fluxos de nêutrons estimados utilizando o MCNP5, o erro relativo ficou inferior aos 10% .

Como o fluxo de nêutrons é proporcional a potência térmica do reator, os resultados obtidos também foram normalizados a 250 kW, ou seja, são 2,5 vezes maior que os resultados de um reator que opera a 100 kW, Tabela 12. Esta normalização foi realizada devido ao fato que a potência térmica máxima do reator IPR-R1 possa alcançar o valor de 250 kW.

Tabela 12– Fluxo de nêutrons ($\text{n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) ao longo do extrator de nêutrons angulado no IPR-R1 (10 cm - 250 kW)

Posição	Φ_t	Φ_{ep}	Φ_{total}
1	$3,92 \times 10^{11}$	$5,97 \times 10^{10}$	$5,03 \times 10^{11}$
2	$9,03 \times 10^9$	$1,55 \times 10^8$	$1,26 \times 10^9$
3	$1,44 \times 10^8$	$3,76 \times 10^7$	$2,34 \times 10^8$
4	$4,94 \times 10^7$	$1,51 \times 10^7$	$8,63 \times 10^7$
5	$2,50 \times 10^7$	$7,52 \times 10^6$	$4,44 \times 10^7$
6	$1,35 \times 10^7$	$4,58 \times 10^6$	$2,56 \times 10^7$
7	$9,51 \times 10^6$	$3,03 \times 10^6$	$1,76 \times 10^7$
8	$6,52 \times 10^6$	$2,13 \times 10^6$	$1,23 \times 10^6$
9	$4,63 \times 10^6$	$1,56 \times 10^6$	$8,89 \times 10^6$
10 - Amostra	$1,49 \times 10^6$	$5,02 \times 10^5$	$2,82 \times 10^6$

Φ_t , fluxo de nêutrons térmicos; Φ_{ep} , fluxo de nêutrons epitérmicos;

Φ_{total} , fluxo de nêutrons total

Aumentando a potência térmica do reator de 100 kW para 250 kW, os resultados do fluxo de nêutrons térmicos na posição 10 passou de $5,97 \times 10^5 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ para $1,49 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ e o total de $1,13 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ para $2,82 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, respectivamente.

Verifica-se que o fluxo de nêutrons dentro da câmara de irradiação (Posição 10) com uma potência térmica de 100 kW tem um fluxo de nêutrons adequado para a aplicação do PGNAA, ordem de $10^5 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ (MOLNAR, 2004; PAUL e LINDSTROM, 2000).

Na Figura 30, observa-se que os comportamentos dos fluxos térmicos estimados utilizando o MCNP5 foram similares ao comportamento dos valores obtidos experimentalmente.

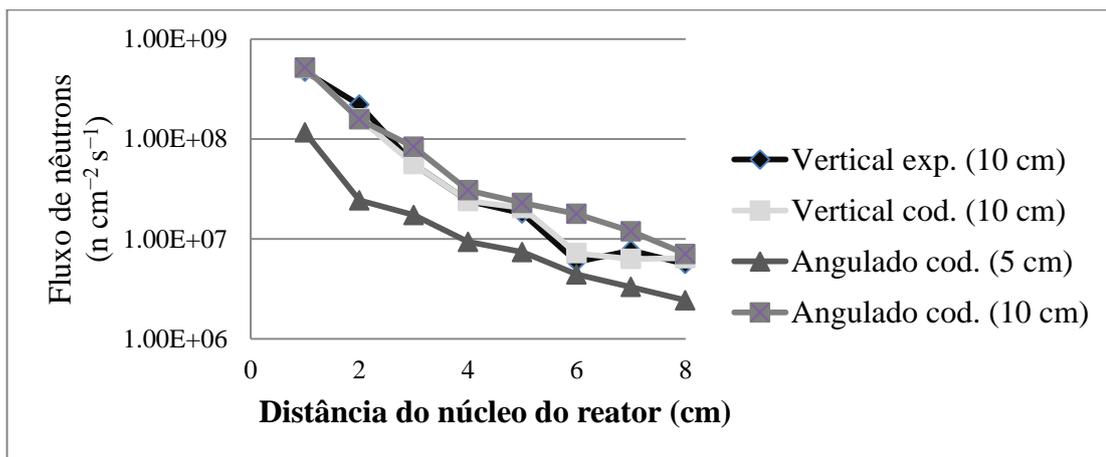


Figura 30 – Fluxo de nêutrons térmicos longo do extrator de nêutrons vertical e angulado

4.5 Cálculos de fluxo de nêutrons, taxa de reação (n, γ) e limite de detecção em amostras

Após o estudo do fluxo de nêutrons ao longo do extrator angulado e na posição proposta da amostra foram realizados cálculos do fluxo de nêutrons, taxa de reação e limite de detecção para alguns isótopos.

Assim, para a realização destes cálculos foi configurada uma amostra cilíndrica com 10 cm de diâmetro, 5 cm de espessura e localizada a aproximadamente 820 cm do reator e 280 cm acima do piso da sala, dentro da câmara de irradiação, Figura 31. Sua espessura foi dividida em 5 camadas iguais com o objetivo de avaliar o comportamento das reações ao longo da amostra.

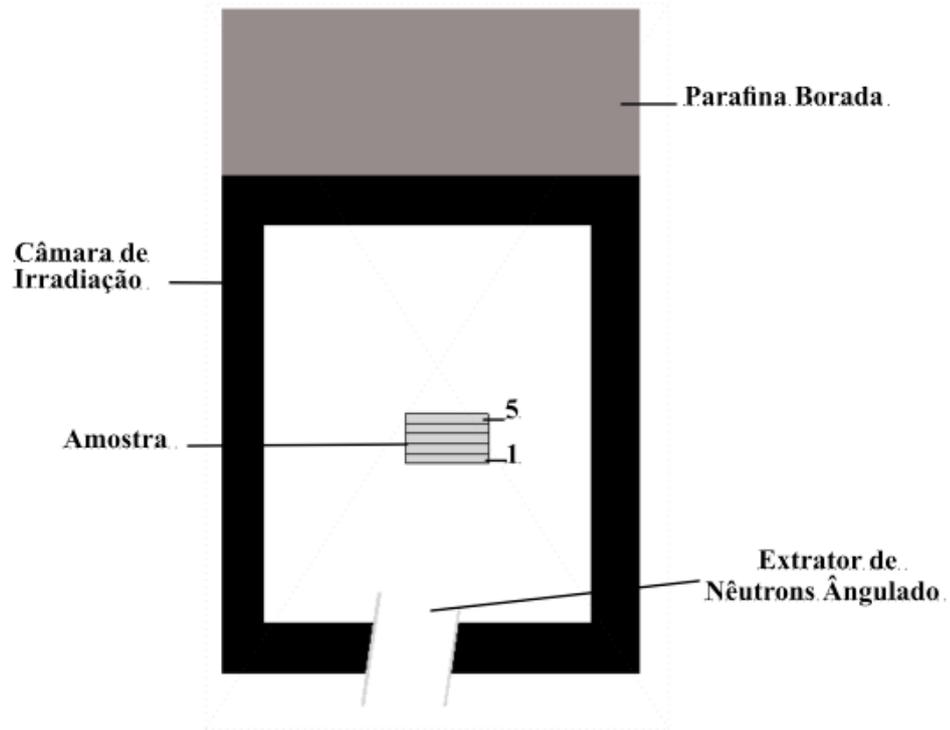


Figura 31 – Câmaras de Irradiação do Sistema PGNAA proposto

Em cada simulação foi utilizado um tipo particular de isótopo (amostra), são eles: ^1H , ^{23}Na , ^{27}Al , ^{28}Si , ^{40}Ca , ^{45}Sc , ^{48}Ti , ^{51}V , ^{57}Fe e ^{58}Ni . As Figuras 32 – 61 são apresentados os resultados obtidos do comportamento do fluxo de nêutrons, taxa de reação e limite de detecção ao longo da amostra, respectivamente, para cada um dos isótopos escolhidos.

Além das razões já mencionadas na seção 3.5, estes isótopos também foram escolhidos por terem valores experimentes em MOLNAR (2004) que possam servir de comparação com os resultados obtidos neste trabalho.

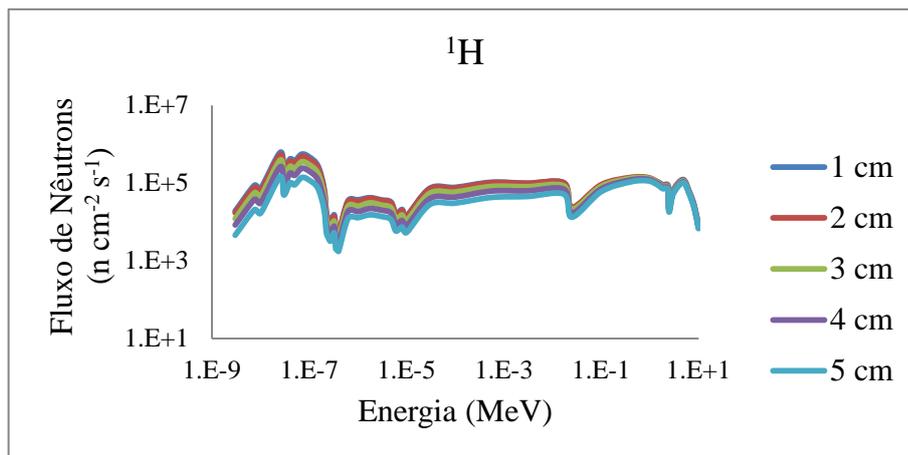


Figura 32 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^1H

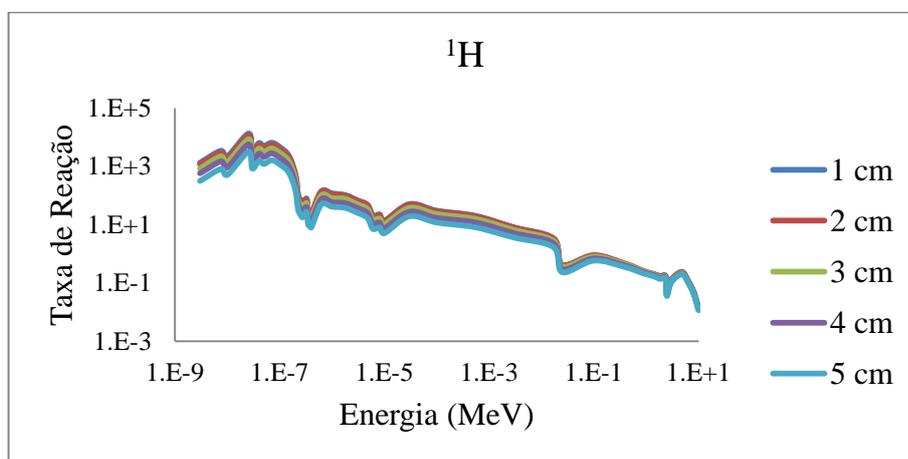


Figura 33 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^1H

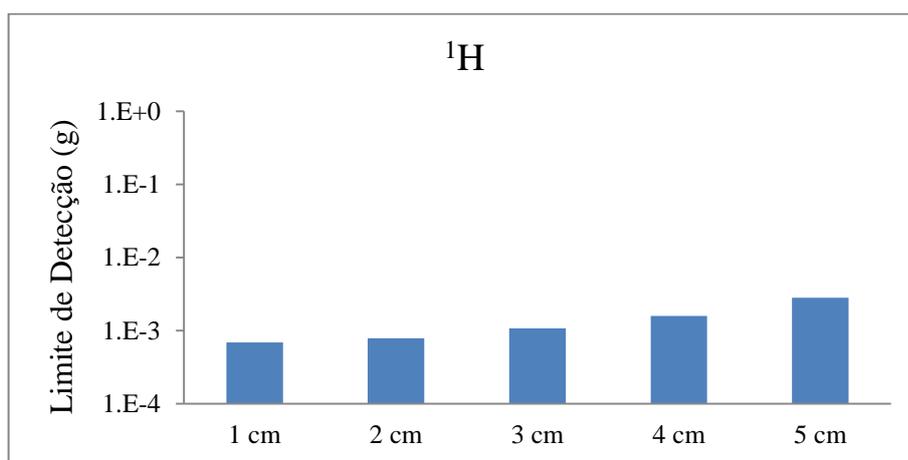


Figura 34 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^1H

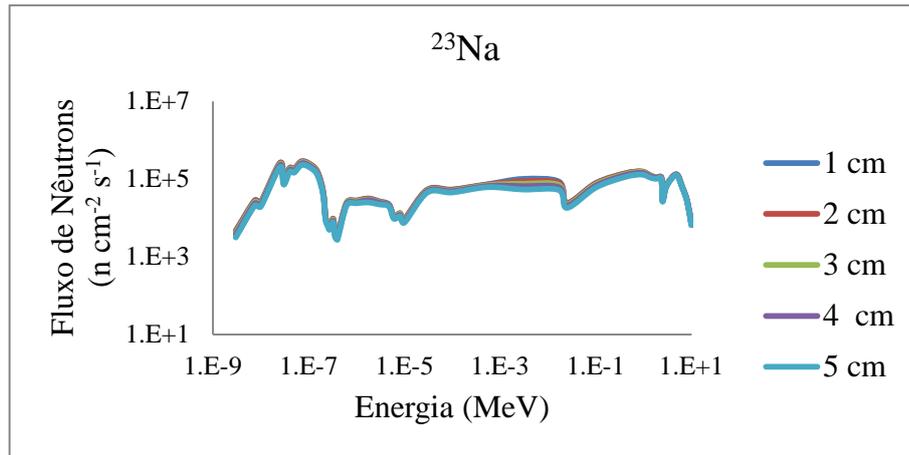


Figura 35 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{23}Na

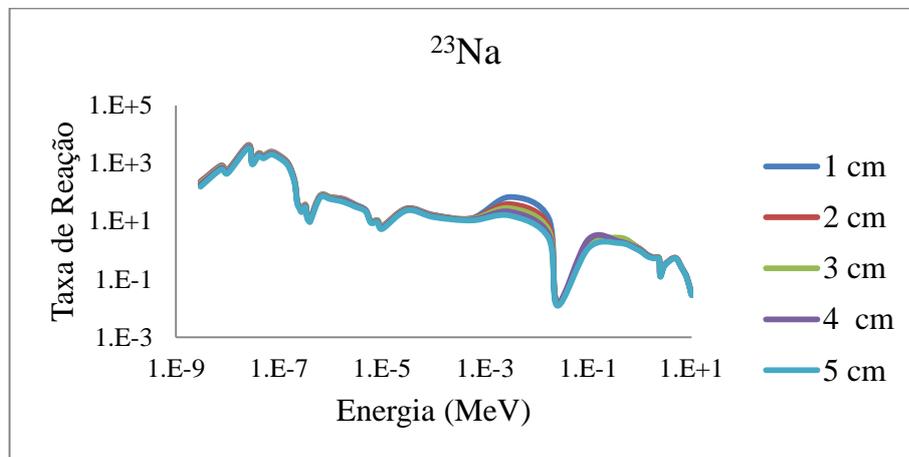


Figura 36 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{23}Na

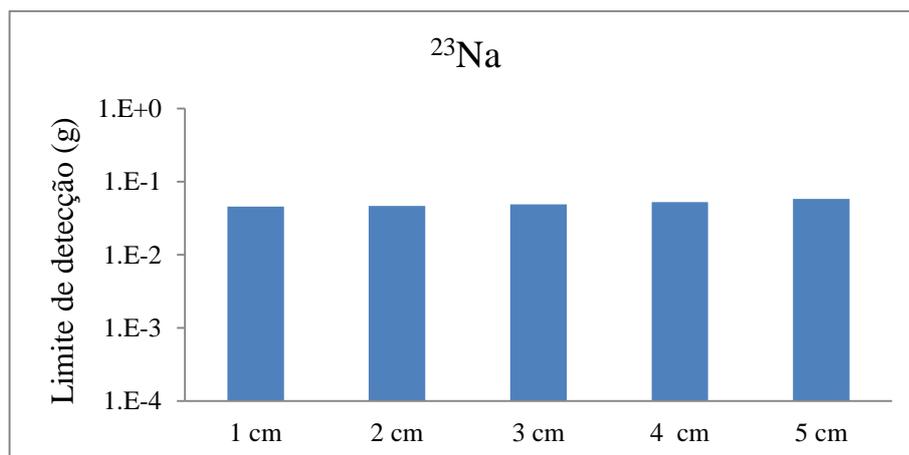


Figura 37 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{23}Na

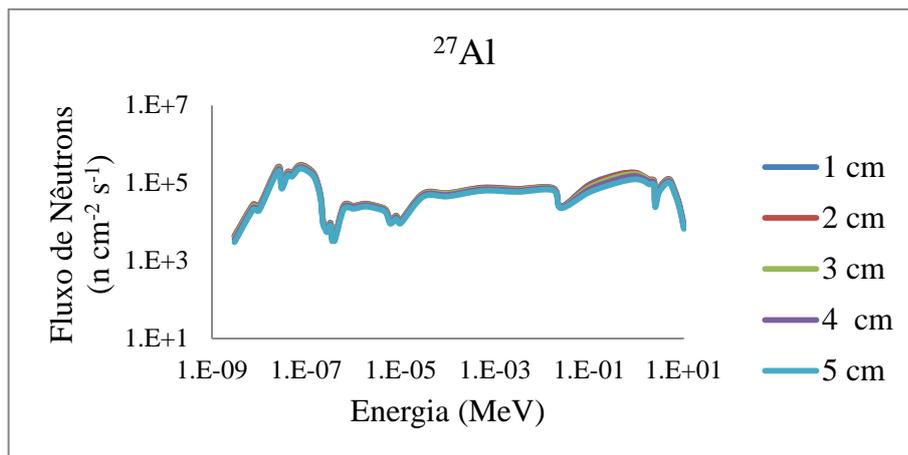


Figura 38 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{27}Al

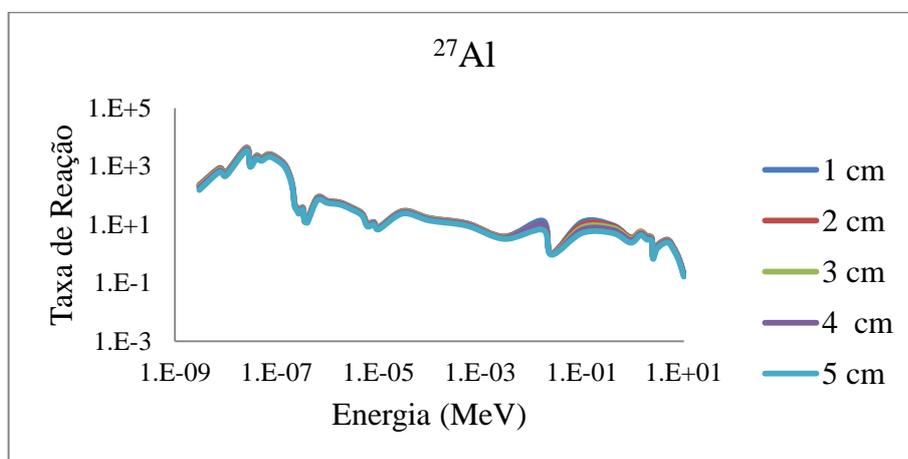


Figura 39 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{27}Al

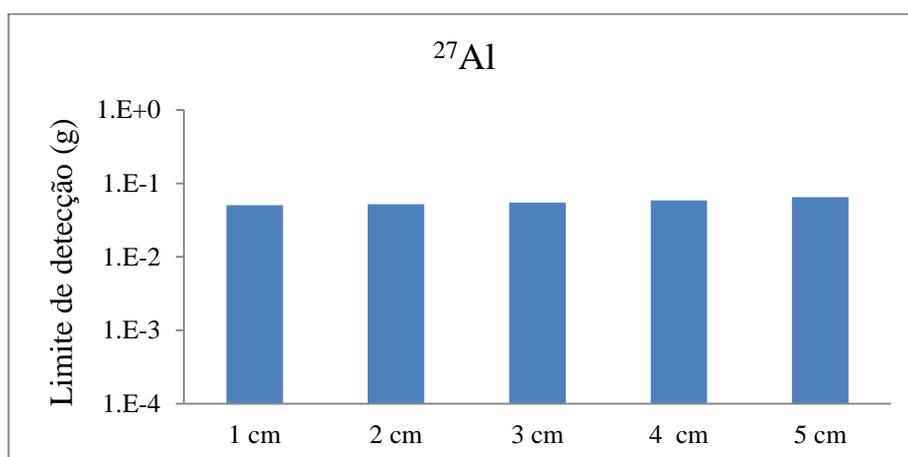


Figura 40 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{27}Al

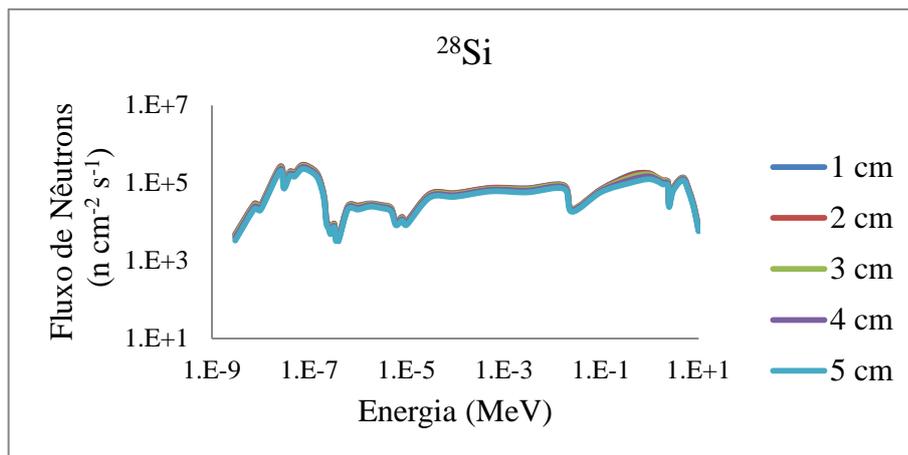


Figura 41 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{28}Si

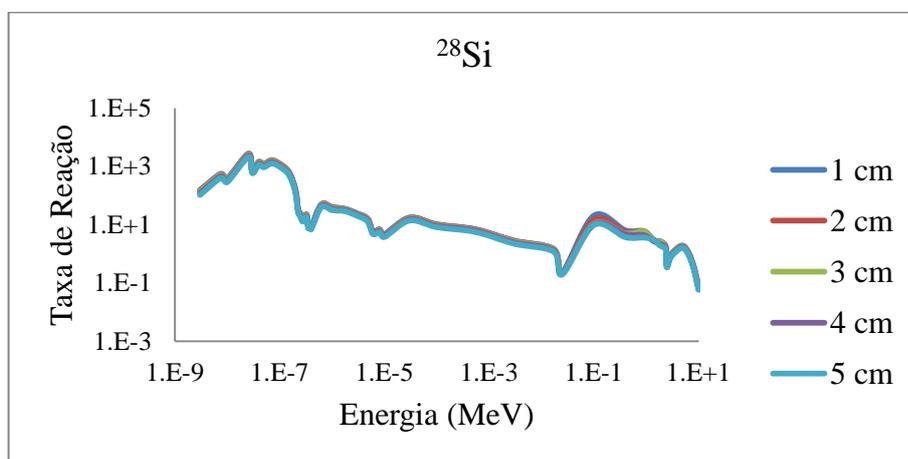


Figura 42 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{28}Si

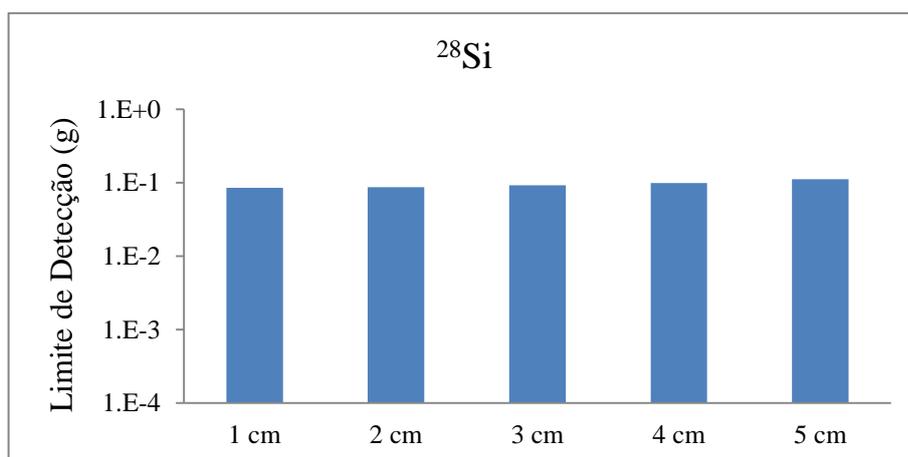


Figura 43 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{28}Si

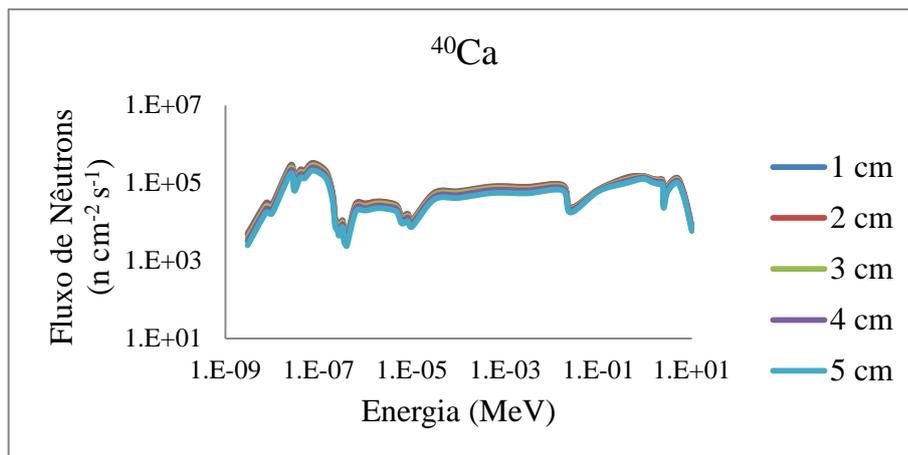


Figura 44 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{40}Ca

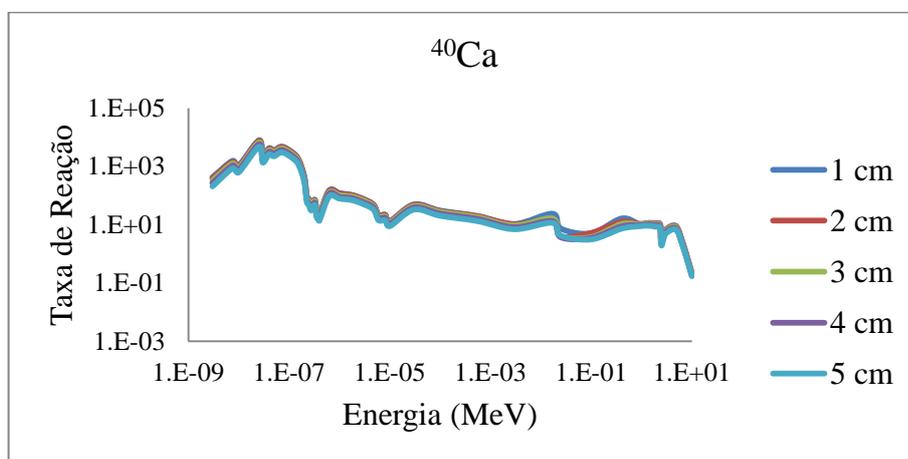


Figura 45 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{40}Ca

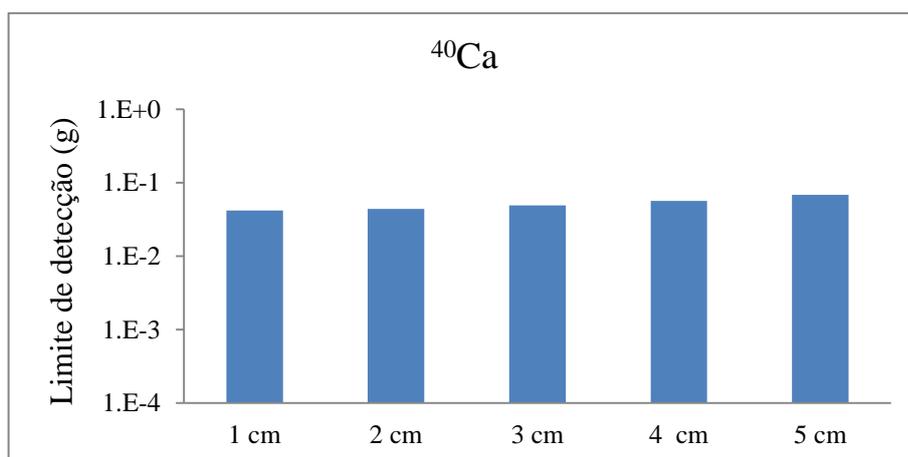


Figura 46 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{40}Ca

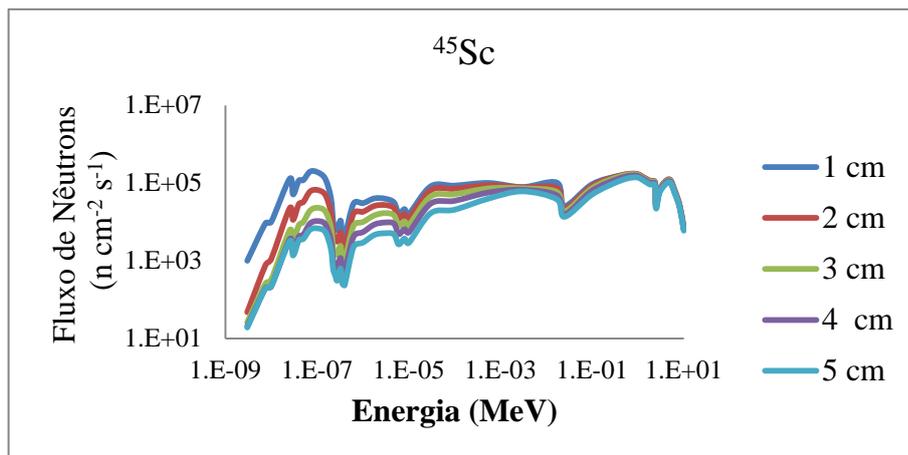


Figura 47 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{45}Sc

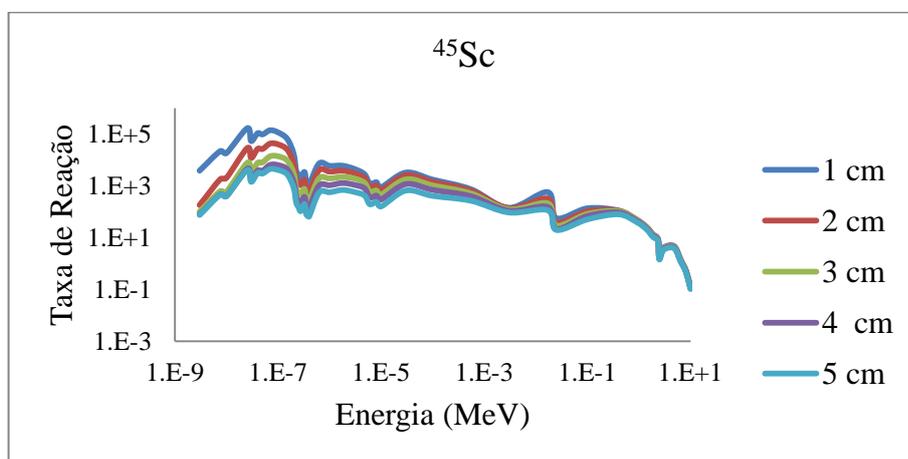


Figura 48 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{45}Sc

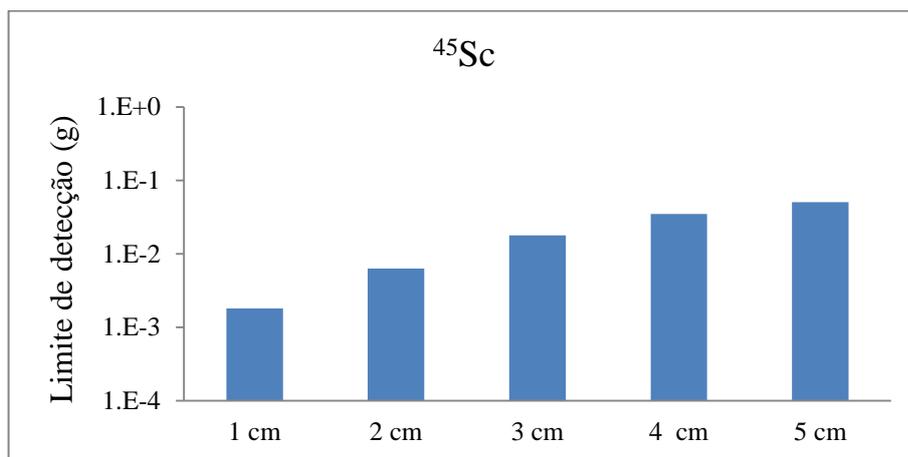


Figura 49 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{45}Sc

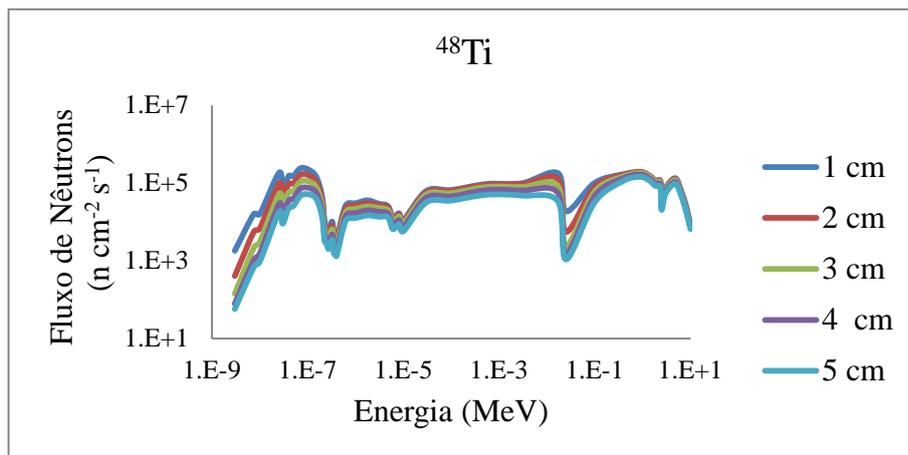


Figura 50 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{48}Ti

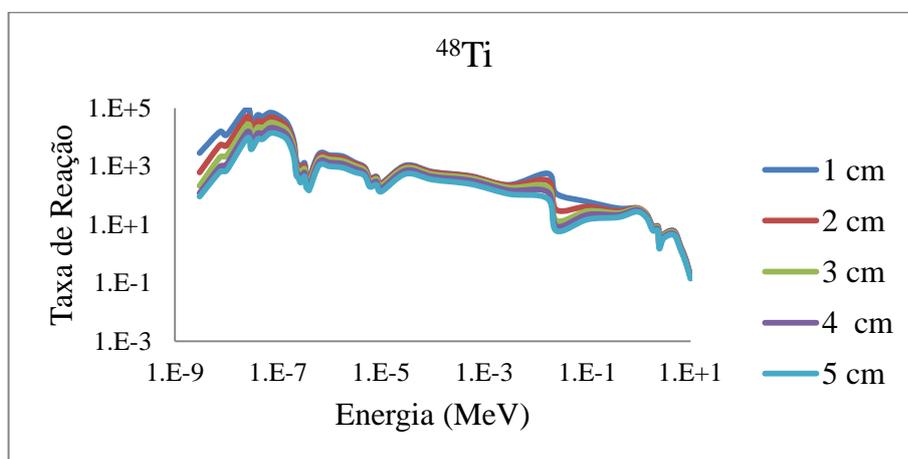


Figura 51 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{48}Ti

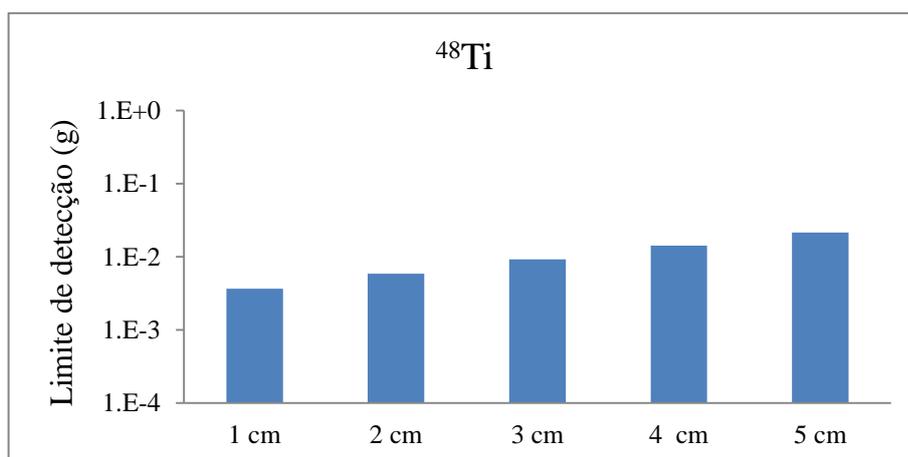


Figura 52 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{48}Ti

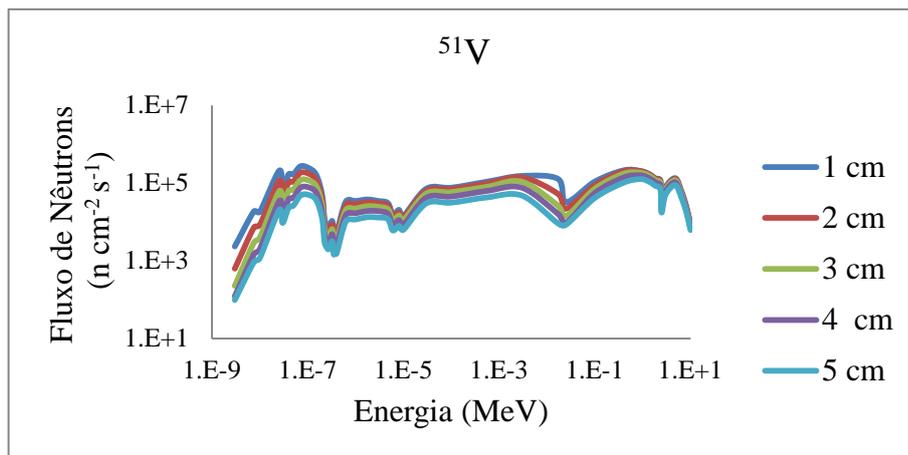


Figura 53 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ⁵¹V

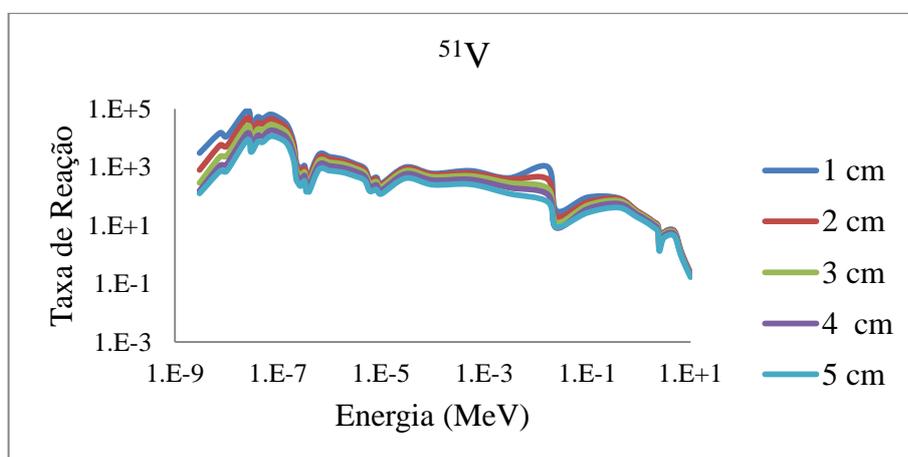


Figura 54 – Taxa de reação ao longo da amostra de ⁵¹V

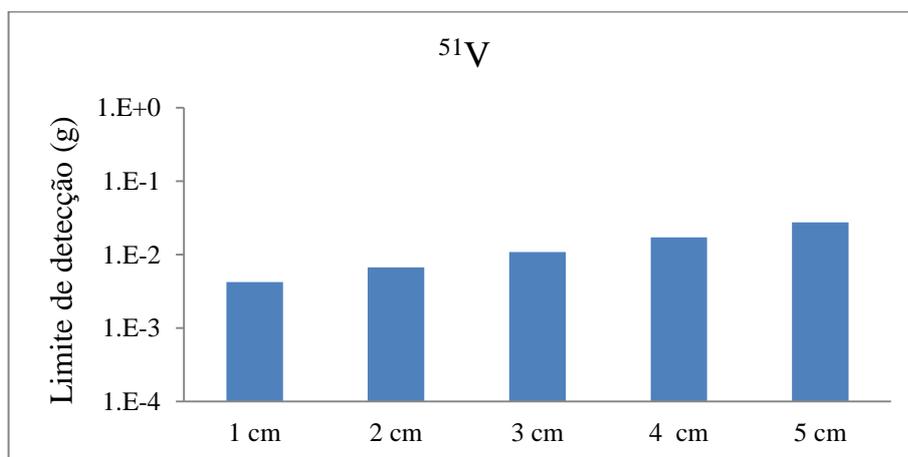


Figura 55 – Limite de detecção ao longo da amostra de ⁵¹V

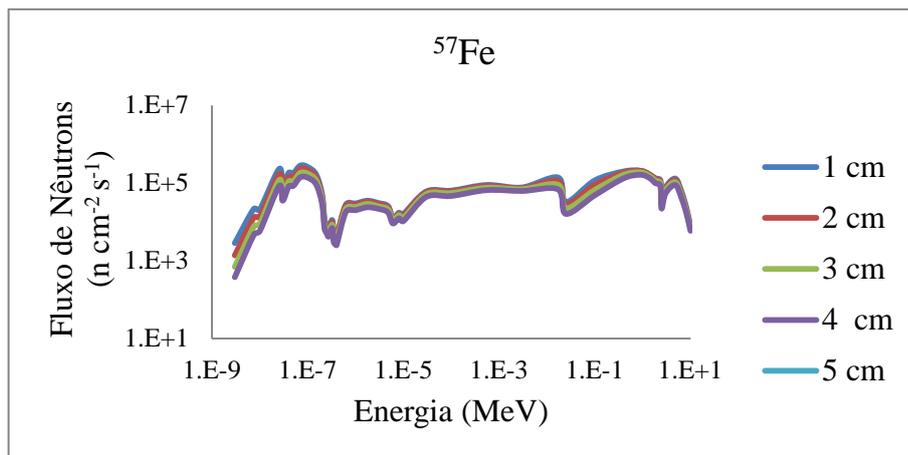


Figura 56 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{57}Fe

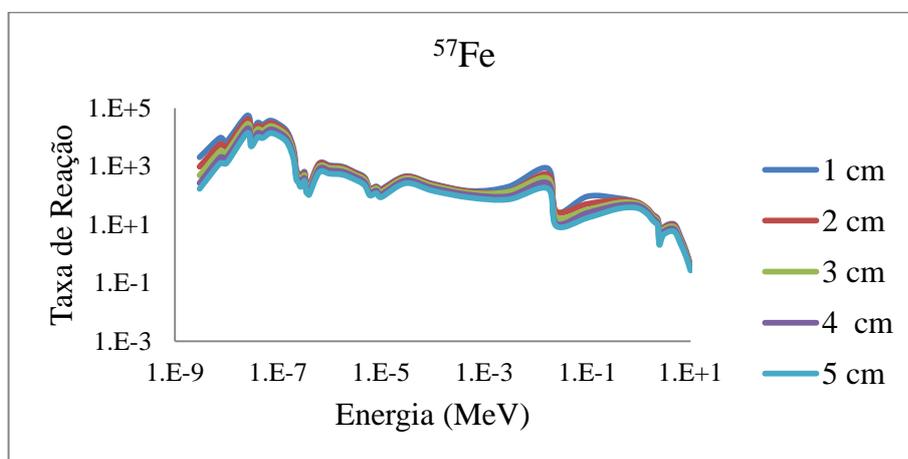


Figura 57 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{57}Fe

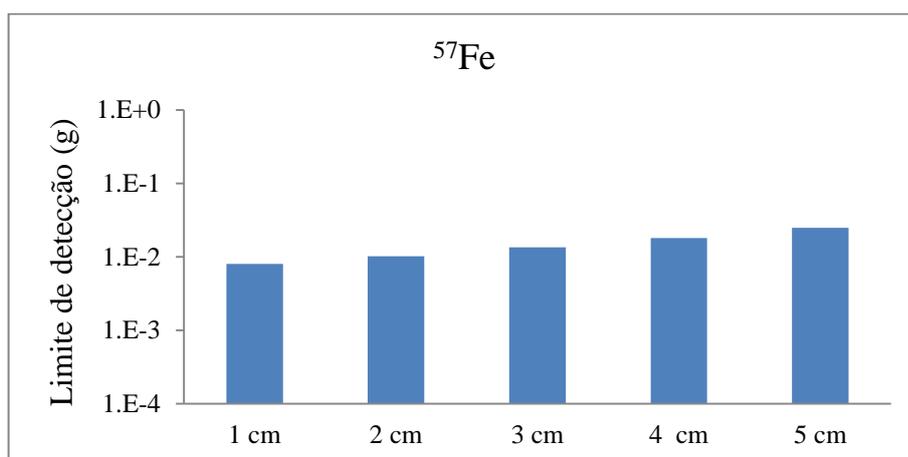


Figura 58 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{57}Fe

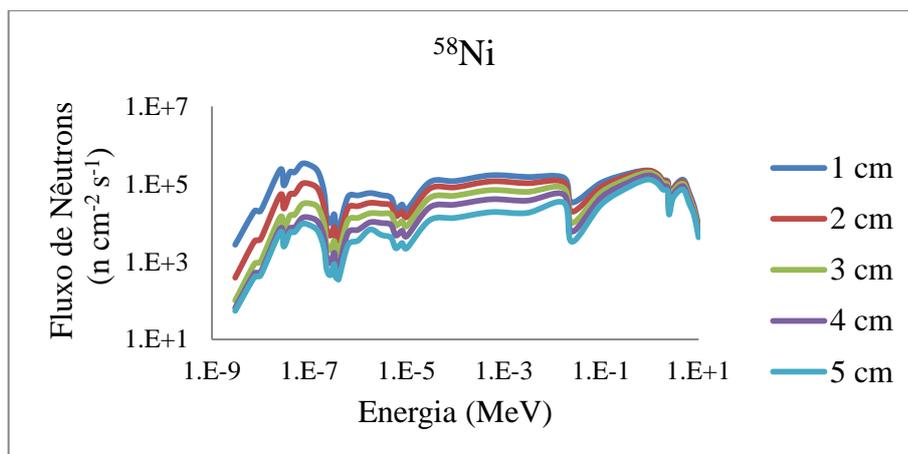


Figura 59 – O comportamento do fluxo de nêutrons ao longo da amostra de ^{58}Ni

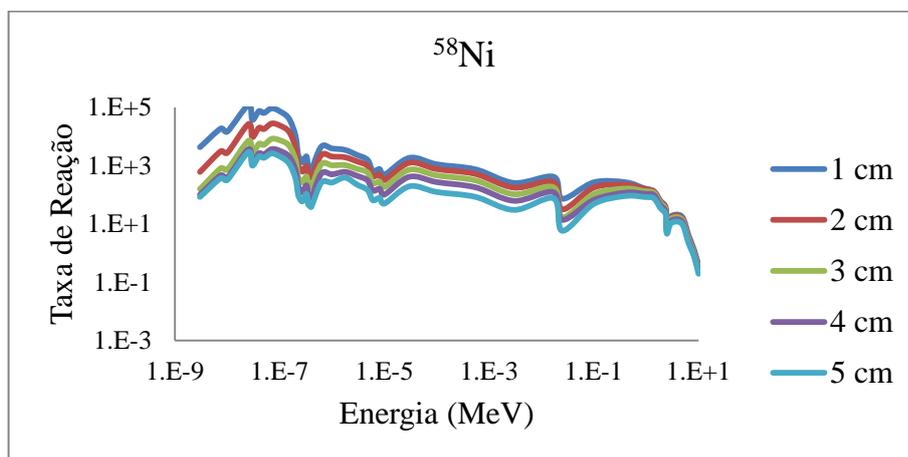


Figura 60 – Taxa de reação ao longo da amostra de ^{58}Ni

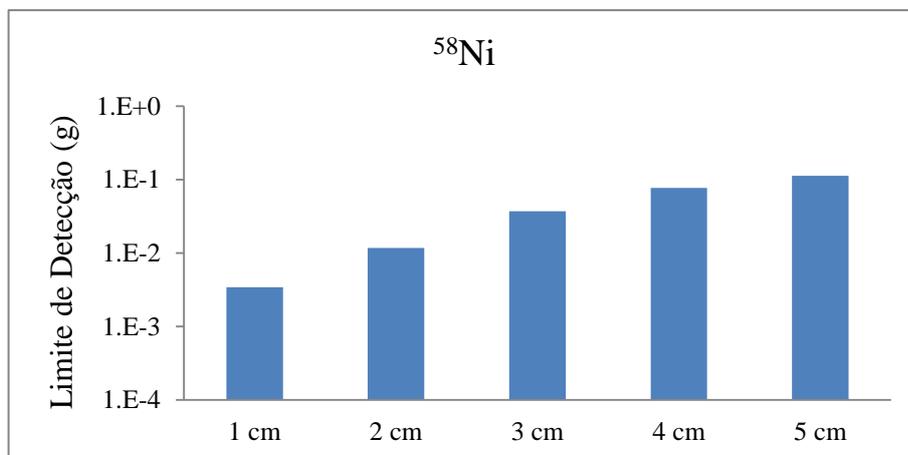


Figura 61 – Limite de detecção ao longo da amostra de ^{58}Ni

As Figuras 32, 35, 38, 41, 44, 47, 50, 53, 56 e 65 representam o fluxo de nêutrons estimado nas camadas de cada amostra para todos os isótopos estudados. É possível observar o comportamento do fluxo de nêutrons que a amostra é submetida tem seu espectro mais termalizado, ou seja, a maioria dos nêutrons no qual a amostra é irradiada tem energias inferiores a 0,625 eV.

A Tabela 13 ilustra com mais precisão a variação do fluxo de nêutrons térmicos e total ao longo da amostra para os isótopos mostrados na coluna 1:

Tabela 13 – Fluxo de nêutrons ($10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) ao longo da amostra

Isótopo	Camada	1	2	3	4	5
^1H	Térmico	3,28	2,88	2,10	1,42	0,82
	Total	4,91	4,48	3,52	2,66	1,87
^{23}Na	Térmico	1,62	1,59	1,52	1,42	1,29
	Total	3,19	3,15	3,02	2,85	2,61
^{27}Al	Térmico	1,63	1,60	1,53	1,43	1,29
	Total	3,29	3,24	3,08	2,86	2,56
^{28}Si	Térmico	1,66	1,63	1,55	1,44	1,29
	Total	3,29	3,24	3,09	2,86	2,56
^{40}Ca	Térmico	1,84	1,75	1,58	1,38	1,15
	Total	3,49	3,36	3,10	2,77	2,37
^{45}Sc	Térmico	1,08	0,33	0,11	0,05	0,03
	Total	2,85	1,95	1,55	1,32	1,12
^{48}Ti	Térmico	1,33	0,87	0,57	0,38	0,25
	Total	3,19	2,60	2,09	1,70	1,34
^{51}V	Térmico	1,49	0,98	0,62	0,40	0,25
	Total	3,53	2,82	2,20	1,69	1,25
^{57}Fe	Térmico	1,56	1,26	0,97	0,74	0,55
	Total	3,47	3,03	2,54	2,06	1,59
^{58}Ni	Térmico	1,82	0,55	0,17	0,08	0,05
	Total	4,10	2,42	1,61	1,18	0,85

Na Tabela 13 é possível observar que não ocorreu variação significativa do fluxo de nêutrons térmicos e total ao longo da amostra (entre a primeira camada e a última) para a maioria dos isótopos.

A maior variação do fluxo de nêutrons térmicos, Camada 5 com o valor menor que 5% em relação a Camada 1, ocorreu para os isótopos ^{45}Sc ($1,08 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ para $0,03 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) e ^{58}Ni ($1,82 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ para $0,05 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$). Para o fluxo de nêutrons total ocorreu apenas para o isótopos ^{58}Ni ($4,10 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ para

$0,85 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$), Camada 5 com valor menor que 25% em relação a Camada 1. Essa variação pode ter ocorrido devido a esses isótopos possuírem uma secção de choque de captura (probabilidade de ocorrer à reação) mais elevada que os demais isótopos, de acordo com a NDS-IAEA (2016), como mostrado, anteriormente, na Figura 21.

As Figuras 33, 36, 39, 42, 45, 48, 51, 54, 57 e 60, mostram que as taxas de reação de captura para todos os isótopos ocorrerem, principalmente, na faixa térmica, concordando novamente com o espectro de secção de choque de captura obtido em NDS-IAEA (2016), Figura 21.

Como já foi mencionado, para a maioria desses isótopos não houve uma alteração significativa no fluxo de nêutrons ao longo da amostra, a maior variação encontrada foi para os isótopos ^{45}Sc e ^{58}Ni . Consequentemente, a taxa de reação e o limite de detecção ao longo da amostra teve uma variação mais significativa para esses isótopos, com valores encontrados na camada 5 menores que 5% em relação aos valores estimados na camada 1, Tabela 14.

Tabela 14 – Taxa de reação (reação $\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$) de captura radioativa (n, γ) ao longo da amostra

Isótopo	Camada				
	1	2	3	4	5
^1H	$5,03 \times 10^4$	$4,40 \times 10^4$	$3,21 \times 10^4$	$2,17 \times 10^4$	$1,23 \times 10^4$
^{23}Na	$1,75 \times 10^4$	$1,71 \times 10^4$	$1,63 \times 10^4$	$1,52 \times 10^4$	$1,38 \times 10^4$
^{27}Al	$1,84 \times 10^4$	$1,80 \times 10^4$	$1,71 \times 10^4$	$1,60 \times 10^4$	$1,44 \times 10^4$
^{28}Si	$1,13 \times 10^4$	$1,11 \times 10^4$	$1,05 \times 10^4$	$9,75 \times 10^3$	$8,71 \times 10^3$
^{40}Ca	$3,31 \times 10^4$	$3,13 \times 10^4$	$2,82 \times 10^4$	$2,46 \times 10^4$	$2,03 \times 10^4$
^{45}Sc	$8,63 \times 10^5$	$2,46 \times 10^5$	$8,69 \times 10^4$	$4,44 \times 10^4$	$3,09 \times 10^4$
^{48}Ti	$4,54 \times 10^5$	$2,84 \times 10^5$	$1,80 \times 10^5$	$1,17 \times 10^5$	$7,74 \times 10^4$
^{51}V	$4,18 \times 10^5$	$2,64 \times 10^5$	$1,63 \times 10^5$	$1,02 \times 10^5$	$6,42 \times 10^4$
^{57}Fe	$2,46 \times 10^5$	$1,93 \times 10^5$	$1,46 \times 10^5$	$1,10 \times 10^5$	$7,97 \times 10^4$
^{58}Ni	$5,86 \times 10^5$	$1,70 \times 10^5$	$5,43 \times 10^4$	$2,60 \times 10^4$	$1,78 \times 10^4$

Como houve uma variação significativa do fluxo de nêutrons, taxa de reação e limite de detecção para alguns isótopos, a primeira camada de cada isótopo foi escolhida para servir como referência para calcular e comparar os limites de detecção obtidos neste estudo com os resultados encontrados em literatura (MOLNAR, 2004). Esta comparação será descrita no próximo subcapítulo.

Para todos os cálculos (fluxo de nêutron, taxa de reação e limite de detecção) estimados em cada isótopo, o erro relativo do código (MCNP5) foi <5%, o que é aceitável (BRIESMEISTER, 2000; BRIESMEISTER, 2003; BROOKES *et al.*, 1979).

4.6 Comparação dos limites de detecção

Como já mencionado, os limites de detecção calculados utilizando o MCNP5 por este estudo foram comparados com os resultados obtidos em literatura (MOLNAR, 2004). Essa comparação foi realizada utilizando os limites de detecção de cada isótopo, estimados na primeira camada de cada amostra (Figura 31) através de 5 Modelos de configuração da aplicação do método PGNAA descritos na Seção 3.6, Figuras 62-71 e Tabela 15.

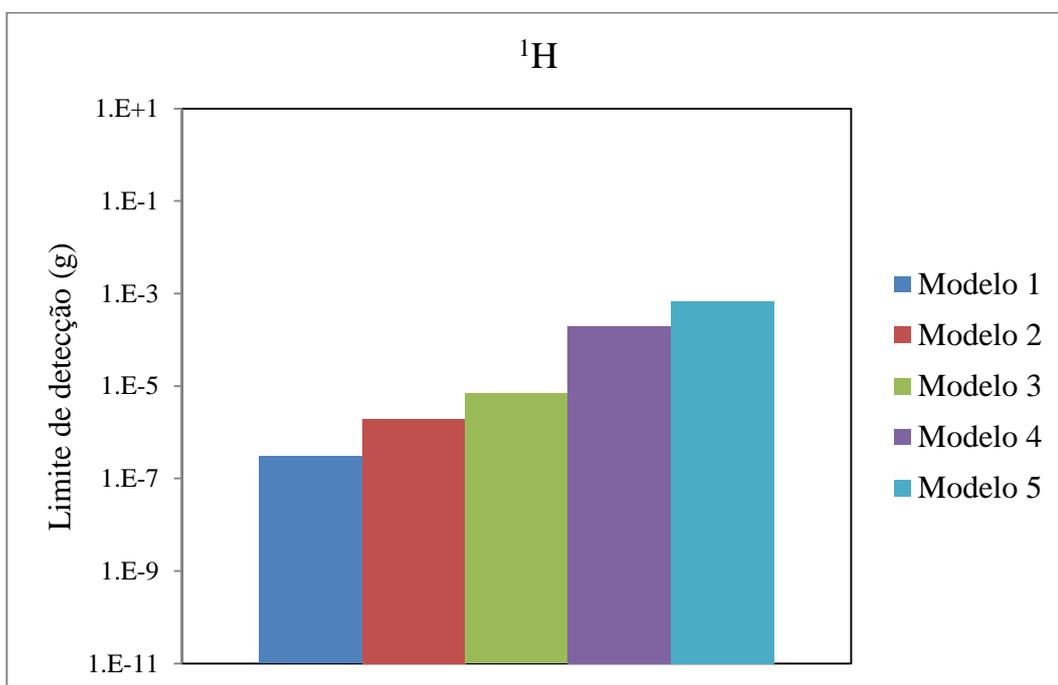


Figura 62 – Limite de detecção da amostra de ^1H

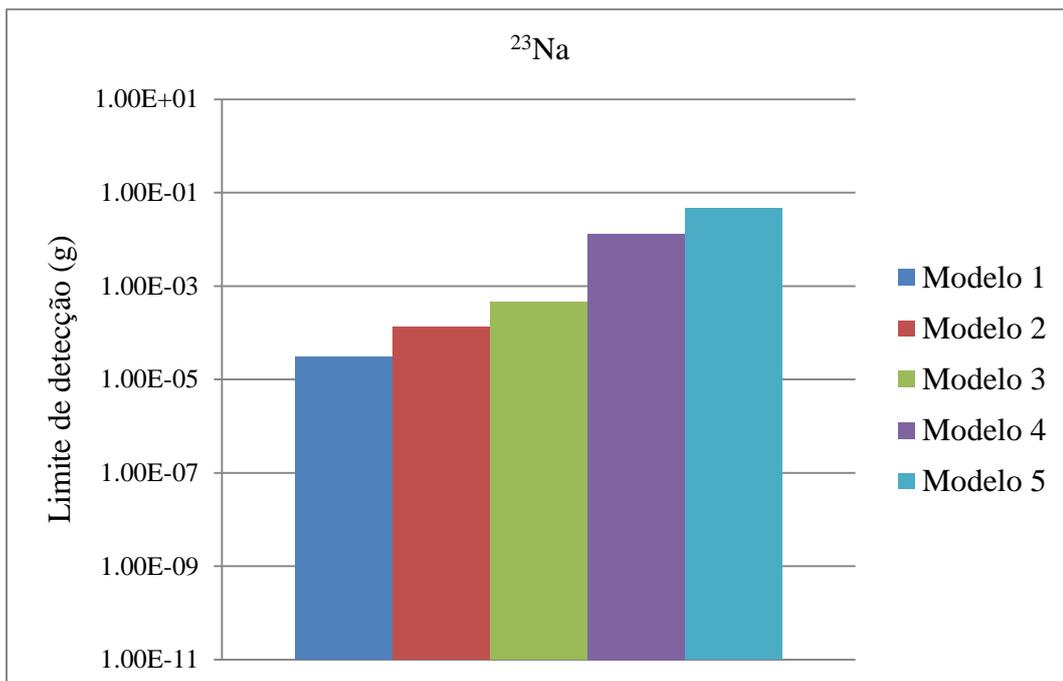


Figura 63 – Limite de detecção da amostra de ²³Na

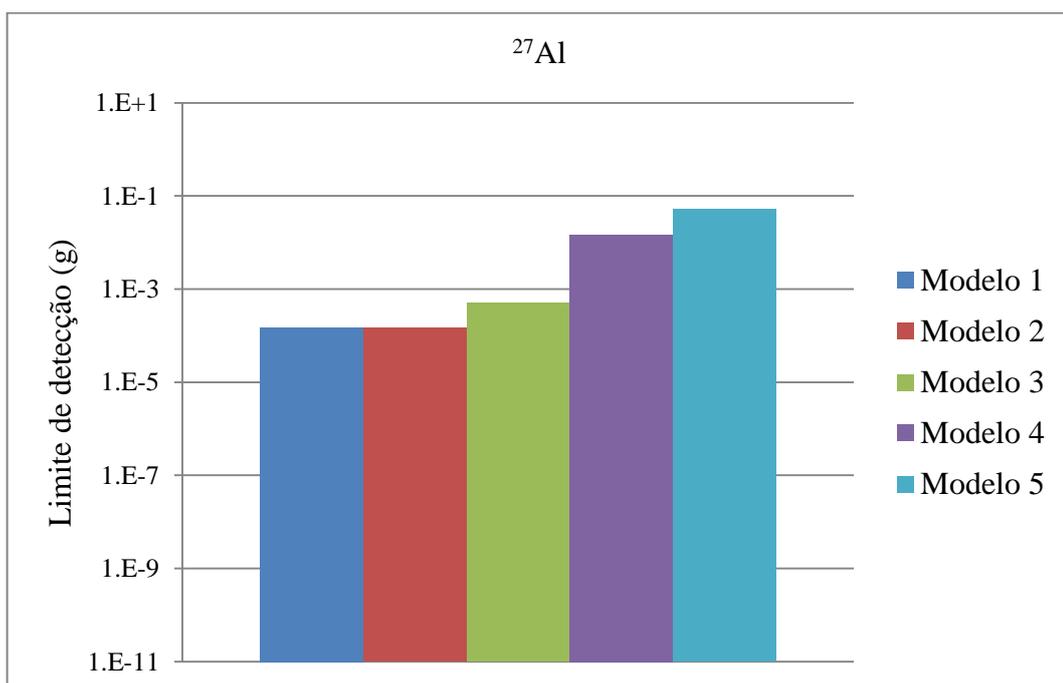


Figura 64 – Limite de detecção da amostra de ²⁷Al

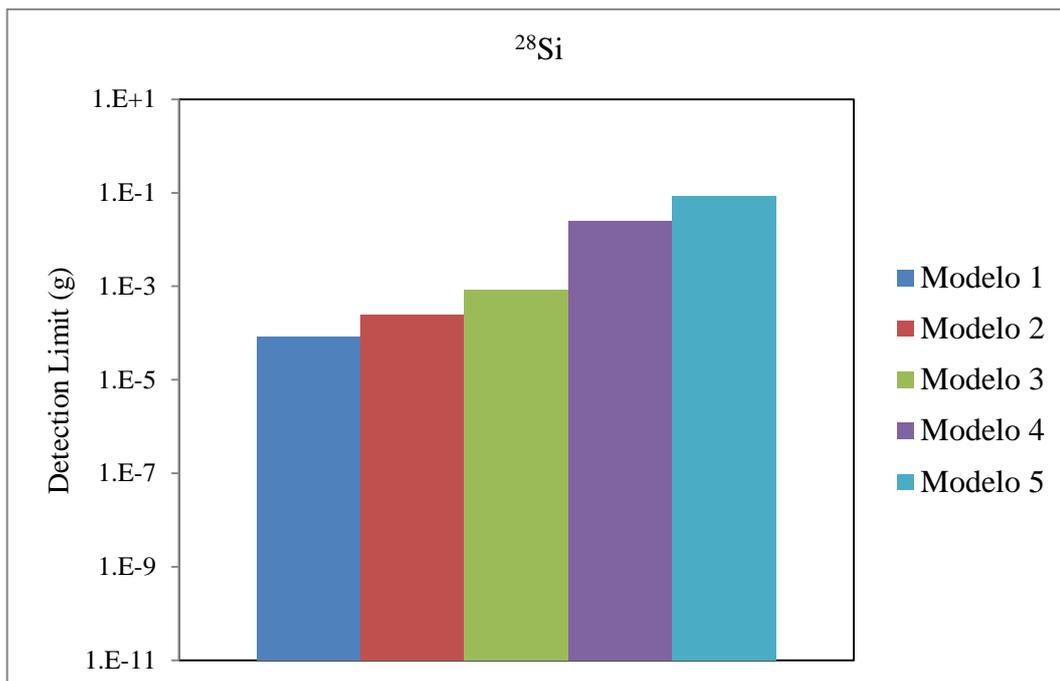


Figura 65 – Limite de detecção da amostra de ²⁸Si

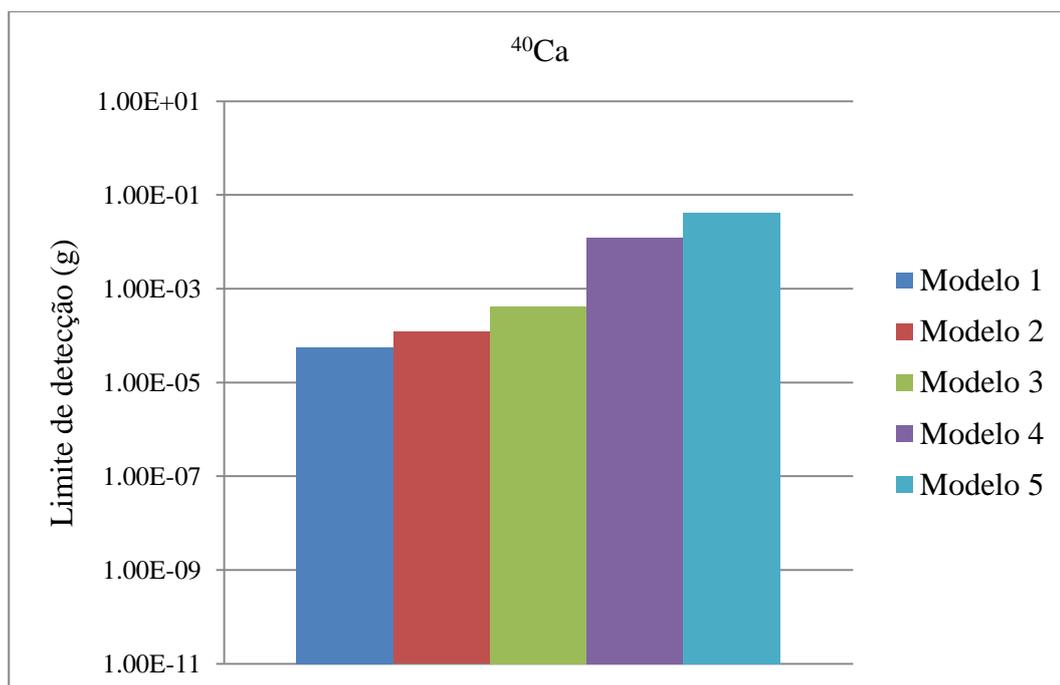


Figura 66 – Limite de detecção da amostra de ⁴⁰Ca

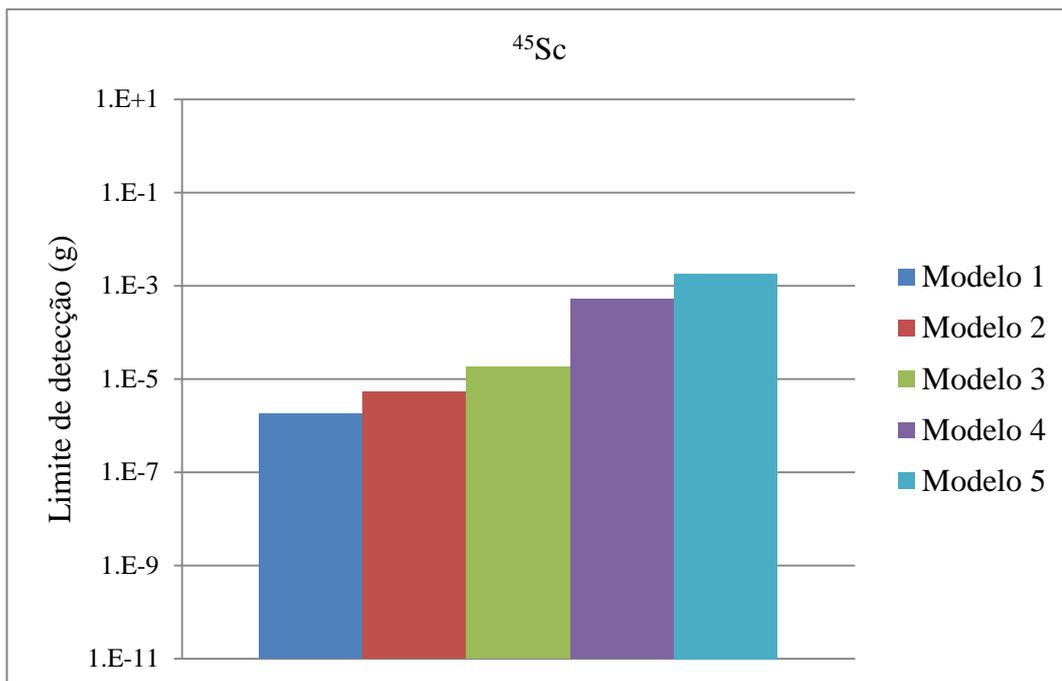


Figura 67 – Limite de detecção da amostra de ^{45}Sc

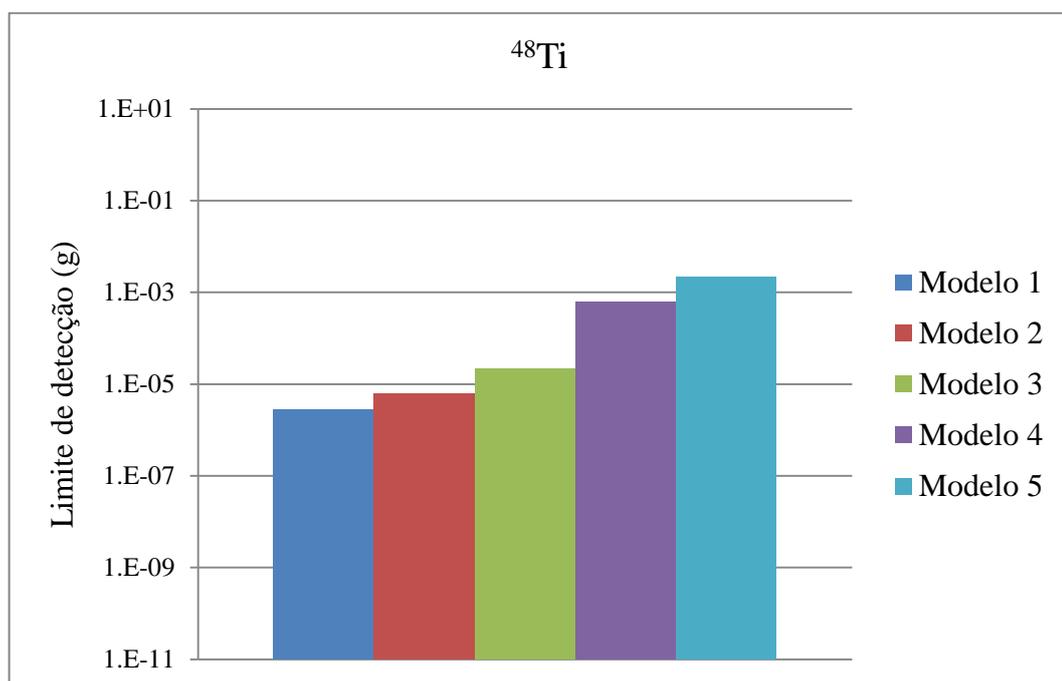


Figura 68 – Limite de detecção da amostra de ^{48}Ti

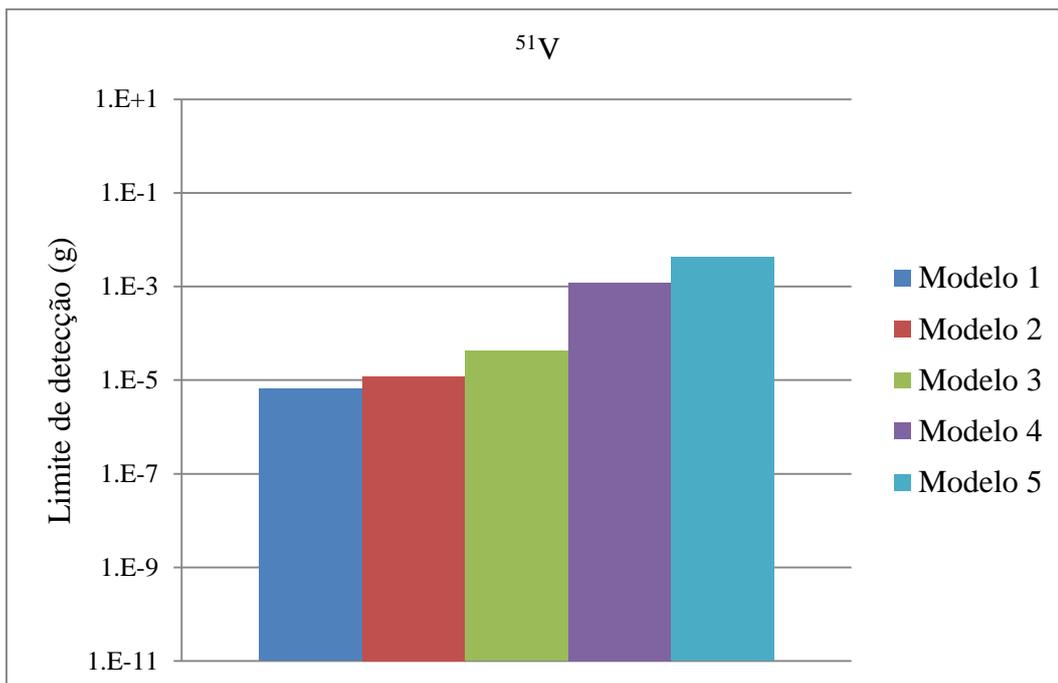


Figura 69 – Limite de detecção da amostra de ⁵¹V

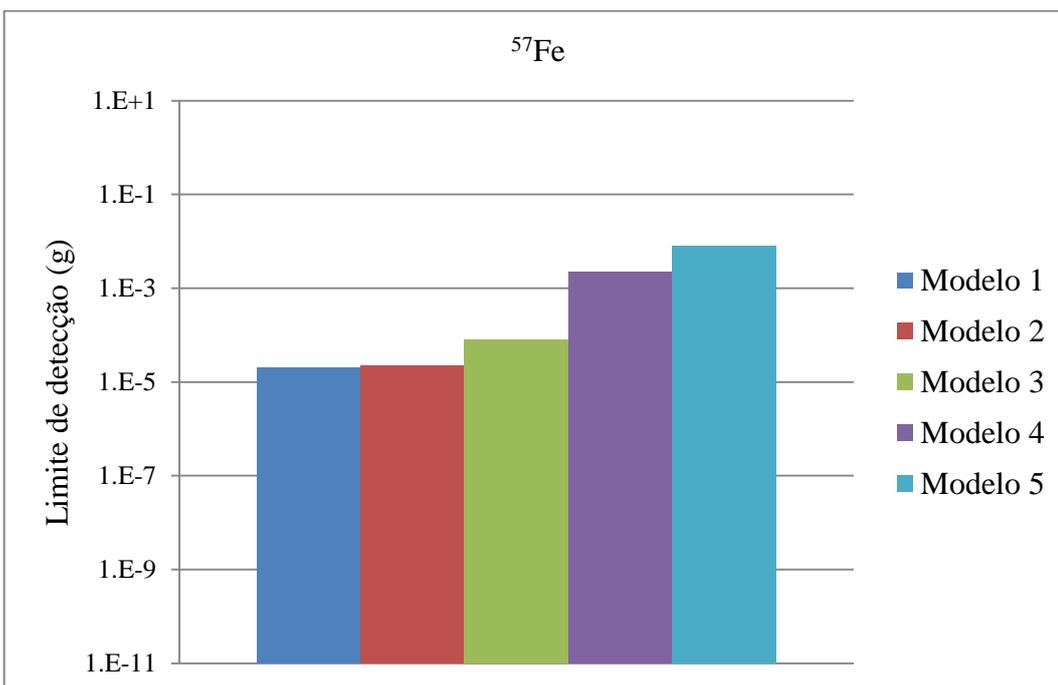


Figura 70 – Limite de detecção da amostra de ⁵⁷Fe

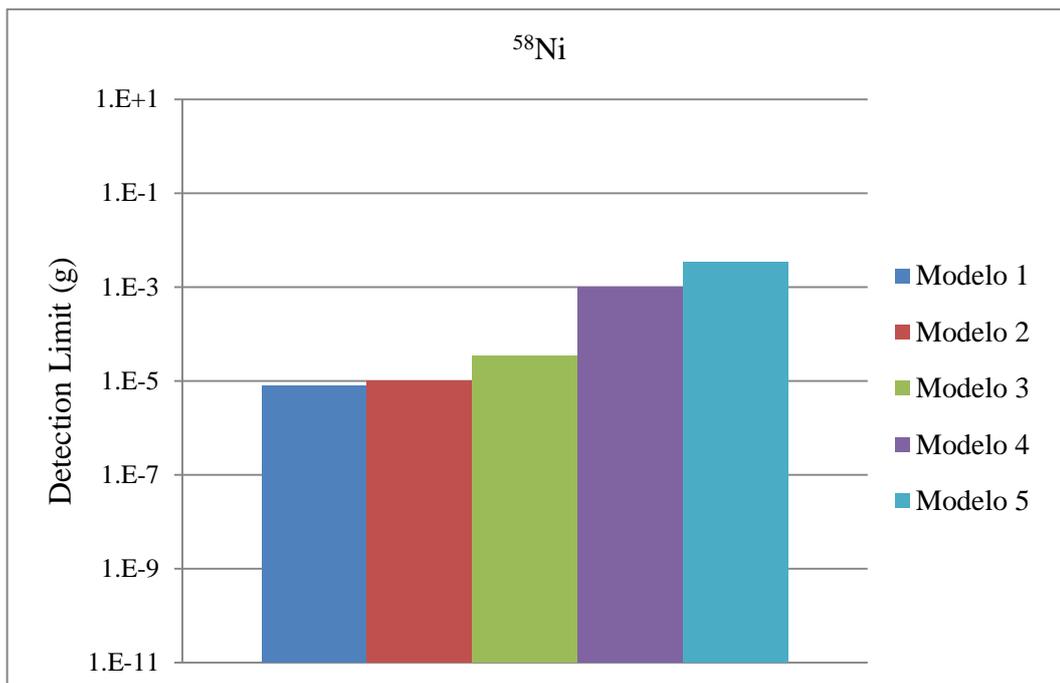


Figura 71 – Limite de detecção da amostra de ^{58}Ni

Tabela 15 – Limite de detecção (g)

Isótopo	Modelo				
	1	2	3	4	5
^1H	$3,00 \times 10^{-7}$	$1,98 \times 10^{-6}$	$6,87 \times 10^{-6}$	$1,98 \times 10^{-4}$	$6,87 \times 10^{-4}$
^{23}Na	$3,02 \times 10^{-5}$	$1,31 \times 10^{-4}$	$4,54 \times 10^{-4}$	$1,31 \times 10^{-2}$	$4,54 \times 10^{-2}$
^{27}Al	$1,50 \times 10^{-4}$	$1,46 \times 10^{-4}$	$5,08 \times 10^{-4}$	$1,46 \times 10^{-2}$	$5,08 \times 10^{-2}$
^{28}Si	$8,43 \times 10^{-5}$	$2,46 \times 10^{-4}$	$8,55 \times 10^{-4}$	$2,46 \times 10^{-2}$	$8,55 \times 10^{-2}$
^{40}Ca	$5,63 \times 10^{-5}$	$1,21 \times 10^{-4}$	$4,18 \times 10^{-4}$	$1,21 \times 10^{-2}$	$4,18 \times 10^{-2}$
^{45}Sc	$1,80 \times 10^{-6}$	$5,19 \times 10^{-6}$	$1,80 \times 10^{-5}$	$5,19 \times 10^{-4}$	$1,80 \times 10^{-3}$
^{48}Ti	$2,89 \times 10^{-6}$	$6,15 \times 10^{-6}$	$2,13 \times 10^{-5}$	$6,15 \times 10^{-4}$	$2,13 \times 10^{-3}$
^{51}V	$6,51 \times 10^{-6}$	$1,22 \times 10^{-5}$	$4,22 \times 10^{-5}$	$1,22 \times 10^{-3}$	$4,22 \times 10^{-3}$
^{57}Fe	$2,04 \times 10^{-5}$	$2,27 \times 10^{-5}$	$7,87 \times 10^{-5}$	$2,27 \times 10^{-3}$	$7,87 \times 10^{-3}$
^{58}Ni	$8,01 \times 10^{-6}$	$9,86 \times 10^{-6}$	$3,43 \times 10^{-5}$	$9,86 \times 10^{-4}$	$3,43 \times 10^{-3}$

A variação do limite de detecção entre os Modelos 1 e 2 para os isótopos ^{27}Al , ^{45}Sc , ^{48}Ti , ^{57}Fe e ^{58}Ni são da mesma ordem de grandeza e para os isótopos ^1H , ^{23}Na , ^{28}Si , ^{40}Ca e ^{51}V houve uma variação da ordem de 10^1 , Tabela 15. Essas variações podem ter sido ocasionadas devido ao valor encontrado do fluxo de nêutrons para o cálculo do limite de detecção de MOLNAR (2004) ser da ordem de $10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, ou seja, o valor exato pode variar de $1,0 \times 10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ a $9,9 \times 10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

Como esperado, a maior variação foi entre os Modelos Padrão (Modelo 1) em relação aos Modelos com os parâmetros para a aplicação PGNAA no reator IPR-R1 (Modelo

5), para a maioria dos isótopos a variação do limite de detecção foi na ordem dos 10^3 , apenas para os isótopos ^{27}Al e ^{57}Fe essa variação foi da ordem de 10^2 . Estas variações de 10^2 e 10^3 ocorrem porque o exemplo adquirida em MOLNAR (2004), Modelo 1, tem um valor de fluxo de nêutrons da ordem de $10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ e o fluxo de nêutrons estimado na posição de irradiação da amostra utilizando como fonte de nêutrons o reator IPR-R1 (Modelo 5) é da ordem de $10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Além disso, o tempo que as amostras são submetidas ao fluxo de nêutrons no Modelo 1 (MOLNAR, 2004) é de 10^5 segundos e no IPR-R1 (Modelo 5) o tempo utilizado é de $2,88 \times 10^4$ segundos devido sua rotina de funcionamento.

O limite de detecção é a mais baixa quantidade de um isótopo que pode ser identificada em uma amostra, ou seja, quanto menor o valor do limite de detecção maior será a precisão do método. Quanto maior for o fluxo de nêutrons que interage com a amostra, maior será a probabilidade de ocorrer à reação de captura radioativa, conseqüentemente maior será a taxa de reação de captura do isótopo a ser analisado e menor será seu limite de detecção.

É importante notar que o fluxo de nêutrons que o fluxo de nêutrons utilizado como exemplo por MOLNAR (2004) é da ordem de $10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ e o menor fluxo de nêutrons encontrado na literatura (MOLNAR, 2004) de $10^5 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Assim, pode concluir-se que é possível aplicar o método PGNAA no reator IPR-R1, porém com uma precisão inferior ao Modelo 1.

Para todos os cálculos de taxa de reação, o erro relativo do MCNP5 foi menor do que 1%, considerado aceitável pelo MCNP5 (BRIESMEISTER, 2000; BRIESMEISTER, 2003; BROOKES *et al.*, 1979).

4.7 Dose na sala do reator TRIGA com a instalação do sistema PGNAA

No Modelo 1 (sem o extrator de nêutrons, Figura 72) e no Modelo 2 (com o extrator de nêutrons angulado, Figura 73) foram calculadas as doses de nêutrons e de radiação gama utilizando o MCNP5. Os resultados são apresentados nas Tabelas 16 e 17.

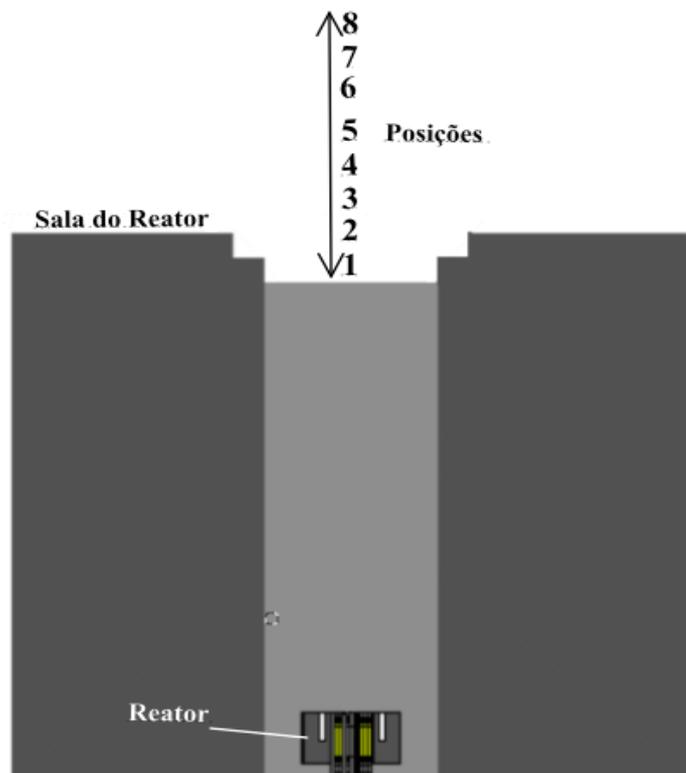


Figura 72 – Modelo 1 do reator IPR-R1, sem extrator de nêutrons, MCNP5

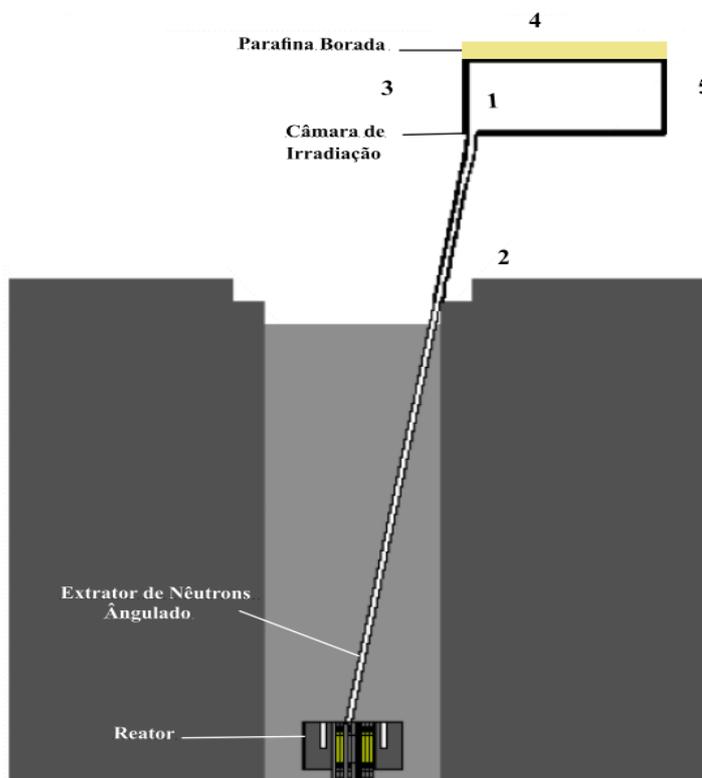


Figura 73 – Modelo 2 do reator IPR-R1 com a inserção do sistema PGNAA – MCNP5

Tabela 16 – Dose de radiação gama ($\mu\text{Sv/h}$)

Posição	Modelo 1	$E_{\text{sim.}}$ (%)	Modelo 2	$E_{\text{sim.}}$ (%)
1	0,30	5,4	$2,41 \times 10^{-3}$	5,67
2	0,26	6,58	$8,66 \times 10^{-3}$	8,35
3	0,23	7,33	0,35	4,94
4	0,21	7,72	0,49	4,27
5	0,19	8,25	$5,95 \times 10^{-9}$	6,05
6	0,17	8,59	-----	-----
7	0,15	8,77		
8	0,13	8,98		

$E_{\text{sim.}}$, erro relativo do código;

Tabela 17 – Dose de nêutrons ($\mu\text{Sv/h}$)

Posição	Modelo 1	$E_{\text{sim.}}$ (%)	Modelo 2	$E_{\text{sim.}}$ (%)
1	-	-	16,05	1,54
2	-	-	0,46	7,05
3	-	-	2,49	4,36
4	-	-	2,32	4,46
5	-	-	0,48	2,97
6	-	-	-----	-----
7	-	-		
8	-	-		

$E_{\text{sim.}}$, erro relativo do código;

Os resultados para as doses gama obtidos no Modelo 1 foram de 0,13 a $0,30\mu\text{Sv/h}$ e para as doses de nêutrons não foi possível estimar o valor de dose devido ao grande volume de água que blinda quase por completo os nêutrons emitidos pelo IPR-R1. No Modelo 2 (com extrator) a variação da dose gama ficou de $5,95 \times 10^{-9}$ a $0,49\mu\text{Sv/h}$ e para as dose de nêutrons 0,46 a $16,05\mu\text{Sv/h}$.

Além disso, em cada uma dessas metodologias foi considerado o erro relativo do código, $E_{\text{sim.}}$, para estes cálculos. No Modelo 1 o erro relativo para a dose de radiação gama foi de 5,40% a 8,98%. No Modelo 2 o erro relativo ficou entre 4,27% a 8,35%, para a dose gama e 1,54% até 7,05% para a dose de nêutrons.

Os maiores valores das doses de nêutrons e gama encontrados fora da câmara de irradiação foram convertidos de Sv/h para Sv/ano, considerando uma jornada de trabalho de 8 h/dia, 5 dias/semana, os valores encontrados são de 0,98 mSv/ano (gama) e 4,98 mSv/ano (nêutrons). Este valores ainda encontram-se abaixo do limite máximo permitido, que é de 20 mSv/ano, para os trabalhadores de acordo com a ICRP-60.

5 CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS FUTURAS

Por meio das simulações deste estudo, utilizando o código MCNP5, com a configuração de um extrator de nêutrons como um tubo inclinado de 10 cm de diâmetro, foi estimado um fluxo de nêutrons térmicos de $5,97 \times 10^5 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ e total de $1,13 \times 10^6 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ na câmara de irradiação da amostra. Esta câmara de irradiação e o sistema de espectrometria gama foram configurados a aproximadamente 2,8 m acima da superfície da sala do reator.

De acordo com MOLNAR (2004) e PAUL e LINDSTROM (2000), um feixe de nêutrons de $5 \times 10^5 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ é o suficiente para aplicar o método PGNAA.

Com base nesse dado de referência, nos fluxos de nêutrons medidos no extrator de nêutrons vertical e nas simulações dos extratores de nêutrons vertical e angulado a partir do núcleo do reator foi possível confirmar a possibilidade do estabelecimento do método PGNAA no reator TRIGA IPR-R1 operando a uma potência de 100 kW.

De acordo com os cálculos, o fluxo de nêutrons térmicos na câmara de irradiação pode ser mais intenso - até 10^7 - nas seguintes condições: o extrator de nêutron angulado ser posicionado mais próximo do poço do reator; o diâmetro do extrator ser maior e o reator operar a 250 kW.

Além disso, os cálculos de limite de detecção dos dez isótopos possibilitaram a identificação de cada isótopo com um grau de precisão aceitável. Isso considerando o tempo de operação do IPR-R1 com uma rotina de operação de 8 horas diárias e utilizando um extrator de nêutrons angulado com um diâmetro de 10 cm.

Os resultados do cálculo de dose gama obtidos no Modelo 2 (com extrator de nêutrons angulado) apresentaram valores menores do que os do Modelo de 1 (sem extrator de nêutrons). Os cálculos de dose gama em ambos os modelos, obtidos pelo código MCNP5, estão na faixa de valores aceitáveis, ou seja, incertezas menores do que 10%.

Já os resultados da estimativa de dose de nêutrons no Modelo 1 não foram estimados devido ao grande volume de água que blindava praticamente por completo os nêutrons emitidos pelo IPR-R1 proporcionando assim uma dose insignificante e um erro relativo acima do aceitável pelo código. A estimativa da dose de nêutrons no Modelo 2 foi possível devido à passagem de nêutrons no interior do extrator de nêutrons angulado que é preenchido por ar, que tem uma seção de choque menor que a água. Isso deve ter facilitado a passagem de nêutrons e, conseqüentemente o aumento da dose de nêutrons na sala do reator. Mesmo com este aumento da dose de nêutrons, os valores de dose obtidos foram da ordem de

grandeza de $\mu\text{Sv/h}$. Como os limites aceitáveis para os trabalhadores estão em torno mSv/a , este estudo mostrou que com a instalação do PGNAA não haverá um aumento significativo da dose, o que não impedirá que os operadores permaneçam na sala onde o reator está localizado.

A ferramenta MCNP5 se mostrou adequada para a modelagem do reator TRIGA IPR-1, bem como na simulação dos cálculos neutrônicos do reator, dos fluxos de nêutrons nos dispositivos de irradiação das amostras (instalados e propostos), das taxas de reação de captura de alguns isótopos, nas doses de radiação gama e de nêutrons, dentre outros. A eficiência da simulação foi comprovada ao se validar a metodologia desenvolvida neste estudo com os valores experimentais.

Finalmente, é importante observar que este estudo teórico provou que é possível aplicar o método PGNAA no IPR-R1, mas também será necessário efetuar uma análise experimental para avaliar com mais precisão os resultados obtidos neste estudo e, em seguida, confirmar a possibilidade de estabelecer este método no reator IPR-R1.

6 REFERÊNCIAS

AMORIM, V.A.; **Construção e Instalação de Um Protótipo de Extrator de Nêutrons no Reator IPR-R1**. Nota Técnica, CN-002/87, 1987.

BARROS, G. P.; **Combustíveis para ADS**. Tese de Doutorado, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte, 166 páginas, 2014.

BODE, P.; GREENBERG, R. R.; DE NADAI FERNANDES, E. A.; **Neutron activation analysis: a primary (ratio) method to determine SI-traceable values of element content in complex samples**. CHIMIA International Journal for Chemistry, v. 63, p. 678 - 680, 2009.

BRIESMEISTER, J. F.; **MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4C**. Los Alamos National Laboratory, Report LA-13709-M, 2000.

BRIESMEISTER, J. F.; **MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5**. Los Alamos National Laboratory, 2003.

BROOKES C. J., BETTELEY I. G., LOXTON S. M.; **Fundamentals of Mathematics and Statistics**. Birmingham, John Wiley & Sons, 1979.

CAMPOLINA, D. A. M.; **Utilização do Método da Amostragem para Propagação de Incertezas de Parâmetros Físicos em Sistemas com Material Físsil**. Tese de Doutorado – Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte, 123 páginas, 2015.

CANELLA, L.; KUDEJOVÁ, P.; SCHULZE, R.; TURLER, A.; JOLIE, J.; **Characterisation and optimisation of the new Prompt Gamma-ray Activation Analysis (PGAA) facility at FRM II**. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A; v. 636, p. 108 - 113, 2011.

CASTA, J.; GWOZDZ, R.; KATRIK, P.; GRASS, F.; **High-Flux Irradiation of Open Samples**. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; v. 244, p. 349 - 354, 2000.

CENAPAD - MG - Centro Nacional de Processamento de Alto Desempenho para Minas Gerais. Disponível em: <http://www.cenapad.ufmg.br>. Acesso em Abril de 2016.

COSTA, A. L.; **Análise das Aplicações de um Extrator de Nêutrons para o Reator TRIGA IPR-R1.** Nota Técnica, NI-IT4-008/02, 2002a.

COSTA, A. L.; AMORIM, V. A.; ROCHA, Z.; STASIULEVECIUS, R.; **Exploração do Feixe de Nêutrons Emergente do Reator TRIGA IPR-R1 para Aplicações Gerais.** International Nuclear Atlantic Conference, Rio de Janeiro. INAC 2002b.

COSTA, A. L.; AMORIM, V. A.; STASIULEVECIUS, R.; ROCHA, Z.; **Revisão de Trabalhos e Proposta de Exploração da Técnica de Neutronografia no Reator TRIGA IPR-R1 do CDTN.** International Nuclear Atlantic Conference, Rio de Janeiro. INAC 2002c.

COSTA, A. L.; **Exploração do Feixe de Nêutrons Emergente do Núcleo do Reator TRIGA IPR-R1 para Aplicações Gerais.** Nota Técnica, NI-IT4-001/03, 2003a.

COSTA, A. L.; **Aplicação do Extrator de Nêutrons do Reator TRIGA IPR-R1 na Implementação da Técnica de Neutronografia no CDTN.** Nota Técnica, NI-TR3-005/03, 2003b.

DALLE, H. M.; **Simulação do Reator TRIGA IPR-R1 Utilizando Métodos de Transporte por Monte Carlo.** Tese de Doutorado – Universidade Estadual de Campinas, Escola de Engenharia Química, Campinas, 194 páginas, 2005.

DE CORTE, F.; **The k_0 -Standardization Method. A Move to the optimization of Neutron Activation Analysis.** Ed. Ryksuniversiteit Gent Faculteit Van de Wetenschappen, 468 páginas, 1987.

DE CORTE, F.; SLUIJS, R. V.; SIMONITS, A.; KUCERA, J.; SMODIS, B.; BYRNE, A. R.; DE WISPELAERE, A.; BOSSUS, D.; FRÁNA, J.; HORÁK, Z.; JACIMOVIC, R.; **Installation and calibration of Kayzero-assisted NAA in three Central European countries via a Copernicus project.** Applied Radiation and Isotopes, v. 55, p. 347 - 354, 2001.

DE SOETE, D.; GIJBELS, R.; HOSTE, J.; **Neutron activation analysis.** Interscience.; Division of Wiley, New York, 856 páginas , 1972.

DIPRETE, D. P.; PETERSON, S. F.; SIGG, R. A.; **Low-Flux NAA Applications at the Savannah River Site.** Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; v. 244, p. 343 - 347, 2000.

DUDERSTADT, J.J.; HAMILTON L. J.; **Nuclear reactor analysis.** John Wiley & Sons, 1976.

EHRHARDT G. J.; KETRING A. R.; AYERS L. M.; **Reactor-produced Radionuclides at the University of Missouri Research Reactor.** Applied Radiation and Isotopes. v. 49, p. 295 - 297, 1998.

EMBER, P. P.; BELGYA, T.; WEIL, J. L.; MOLNÁR, G. L.; **Coincidence measurement setup for PGAA and nuclear structure studies.** Applied Radiation and Isotopes; v. 57, p. 573 - 577, 2002.

FANTIDIS, J. G.; NICOLAOU, G. E.; POTOLIAS, C.; VORDOS, N.; BANDEKAS, D. V.; **The comparison of four neutron sources for Prompt Gamma Neutron Activation Analysis (PGNAA) in vivo detections of boron.** Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; v. 290, p. 289 - 295, 2011.

FERREIRA, O. C.; **Relatórios de Atividades Ligadas ao Programa do Grupo do Reator, a Partir da Reunião de Agosto.** Belo Horizonte: Nota Interna do Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear - CDTN, 1962.

FRANCO, M. B.; **Levantamento de Parâmetros Nucleares do Reator TRIGA Mark I IPR R1 com Configuração Concêntrica Visando a Aplicação da Técnica de Ativação Neutrônica Paramétrica k_0 .** Tese de Doutorado – Universidade Estadual de Campinas, Faculdade de Engenharia Química, Campinas, 176 páginas, 2006.

GA – General Atomics and Affiliated Companies. Disponível em: <http://www.ga.com/triga>. Acesso em novembro de 2015.

GMÉLIING, K.; SIMONITS, A.; SZIKLAI LÁSZLÓ, I.; PÁRKÁNYI, D.; **Comparative PGAA and NAA results of geological samples and standars.** Journal Radioanalytical and Nuclear Chemistry, v. 300, p. 507 - 516, 2014.

GONÇALVES, R. G. F.; PINHEIRO, M. V. B.; LACERDA, R. G.; FERLAUTO, A. S.; LADEIRA, L. O.; KRAMBROCK, K.; LEAL, A. S.; VIANA, G. A.; MARQUES, F. C.; **New material for low-dose brachytherapy seeds: Xe-doped amorphous carbon films with post-growth neutron activated ^{125}I .** Applied Radiation and Isotopes, v. 69, p. 118 - 121, 2011.

GOZANI, T.; **The role of neutron based inspection techniques in the post 9/11/01 ERA.** Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B; v. 213, p. 460 - 463, 2004.

GRAFE, J. L.; MCNEILL, F. E.; BYUN, S. H.; CHETTLE, D. R.; NOSEWORTHY, M. D.; **A benchmarked MCNP model of the in vivo detection of gadolinium by prompt gamma neutron activation analysis.** Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B; v. 268, p. 2451 - 2457, 2010.

GUERRA, B. T.; **Obtenção dos Fluxos de Nêutrons Total e Térmicos na Mesa Giratória do Reator TRIGA Mark I IPR-R1 Utilizando o Método de Transporte Monte Carlo.** Dissertação de Mestrado – Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte, 78 páginas, 2011.

GUERRA, B. T.; JACIMOVIC, R.; MENEZES, M. A. B. C.; LEAL, A. S.; **Proposed design for the PGAA facility at the TRIGA IPR-R1 research reactor.** Journal Springer Plus, v. 2, p.597-607, 2013a.

GUERRA, B. T.; LEAL, A. S.; GRYNBERG, S. E.; MENEZES, M. A. B. C.; **The neutron and gamma-ray dose characterization using the Monte Carlo method to study the feasibility of the Prompt Gamma Activation Analysis technique at IPR-R1 TRIGA reactor in Brazil.** International Nuclear Atlantic Conference – INAC2013. Recife, 6 páginas, 2013b.

GUERRA, B. T.; LEAL, A. S.; PEREIRA, C.; MENEZES, M. A. B. C.; **Analysis of neutron flux distribution using the Monte Carlo method for the feasibility study of the Prompt Gamma Activation Analysis technique at the IPR-R1 TRIGA reactor.** International Nuclear Atlantic Conference - INAC2015. São Paulo, 6 páginas, 2015.

GUIMARÃES, R. R. R.; **Levantamento das Distribuições dos Fluxos de Nêutrons Térmicos e Rápidos no Núcleo do Reator IPR-R1.** Dissertação de Mestrado – Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte, 133 páginas, 1985.

IDIRI, Z.; MAZROU, H.; AMOKRANE, A.; BEDEK, S.; **Characterization of an Am-Be PGNA set-up developed for in situ liquid analysis: Application to domestic waste water and industrial liquid effluents analysis.** Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B; v. 268, p. 213 - 218, 2010.

IAEA - International Atomic Energy Agency; **Database of Prompt Gamma Rays from Slow Neutron Capture for Elemental Analysis.** Vienna, 2007.

JACIMOVIĆ, R.; MAUČEC, M.; TRKOV, A.; **Verification of Monte Carlo calculations of the neutron flux in the carousel channels of the TRIGA MARK II reactor, Ljubljana.** Proceedings of the International Conference Nuclear Energy for New Europe, Kranjska Gora, Slovenia, 2002.

JACIMOVIĆ, R., MAUČEC, M., TRKOV, A. **Verification of Monte Carlo calculations of the neutron flux in typical channels of the TRIGA reactor, Ljubljana.** Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, v. 257, p. 513 - 517, 2003a.

JACIMOVIC, R.; STIBILJ., V.; BENEDIK, L.; SMODIS, B.; **Characterization of the neutron flux gradients in typical irradiation channels of a TRIGA Mark II reactor;** Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; v. 257, p. 545 - 549b, 2003b.

KASZTOVSZKY, Z.; REVAY, Z., BELGYA, T.; MOLNAR, G. L.; **Nondestructive analysis of metals by PGAA at the Budapest Research Reactor.** Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; v. 244, p. 379 - 382, 2000.

KELLNER R., MERMET, J.-M.; OTTO, M.; VALCÁRCEL, M.; WIDMER, H. M.; **Analytical Chemistry.** Ed. WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2004.

KHELIFI, R.; IDIRI, Z., OMARI, L., SEGHIR, M.; **Prompt gamma neutron activation analysis of bulk concrete samples with an Am-Be neutron source.** Applied Radiation and Isotopes; v. 51, p. 9 - 13, 1999.

KHELIFI, R.; AMOKRANE, A.; BODE, P.; **Detection limits of pollutants in water for PGNAA using Am-Be source.** Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A; v. 262, p. 329 - 332, 2007.

KIRÁLY, B.; SANAMI, T.; DÓCZI, R.; CSIKAI, J.; **Detection of explosives and illicit drugs using neutrons.** Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B; v. 213, p. 452 - 456, 2004.

LAMARSH, J. R.; BARATTA, A. J.; **Introduction to Nuclear Engineering.** 2001.

LEAL, A. S.; MENEZES, M. A. B. C.; **Neutron Activation Analysis at CDTN/CNEN using the TRIGA Mark I Reactor.** 3rd World TRIGA Users Conference, Belo Horizonte, 2006a.

LEAL, A. S.; CARVALHO JÚNIOR, A., D.; ABRANTES, F. M.; MENEZES, M. Â. B. C.; FERRAZ, V.; CRUZ, T. S.; CARDOSO, V. N.; OLIVEIRA, M. C.; **Production of the radioactive antitumoral cisplatin.** Applied Radiation and Isotopes, v. 64, p. 178 - 181, 2006b.

LEAL, A. S.; MENEZES, M. Â. B. C.; VERMAERCKE, P.; SNEYERS, L.; JENSEN, C. E. M.; **Investigation of chemical impurities in formulations, phytotherapies and polyvitaminic medicines by k_0 -instrumental neutron activation analysis.** Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, v. 564, p.729 - 732, 2006c.

LEAL, A. S.; KRAMBROCK, K.; RIBEIRO, L. G. M.; MENEZES, M. Â., B. C.; VERMAERCKE, P.; SNEYERS, L.; **Study of neutron irradiation-induced colors in Brazilian topaz.** Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, v. 580, p. 423 - 426, 2007.

LEAL, A. S.; REVAY, Z., CAMPOLINA, D.; **Feasibility of the Prompt Gamma Activation Analysis Facility at TRIGA.** Em: Abstracts of the International Conference on Research Reactors. Safe Management and Effective Utilization Research Reactors, Rabat/Morocco, 2011.

MACKEY, E. A.; ANDERSON, D. L., LIPOSKY, P.J., LINDSTROM, R. M., CHEN-MAYER, H.; LAMAZE, G.P.; **New thermal neutron prompt γ -ray activation analysis instrument at the National Institute of Standards and Technology Center for**

Neutron Research. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, v. 226, p. 426 - 440, 2004.

MENEZES, M. Â. B. C.; SABINO, C. DE V. S.; FRANCO, M. B.; KASTNER, G. F.; MONTOYA ROSSI, E. H.; **k_0 -Instrumental Neutron Activation Analysis Establishment at CDTN, Brazil: A successful story.** Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, v. 257, p. 627 - 632, 2003.

MENEZES, M. Â. B. C.; PALMIERI, H. E. L.; LEONEL, L. V.; NALINI JR., H. A.; JACIMOVIC, R.; **Iron Quadrangle, Brazil, elemental concentration determined by k_0 -instrumental neutron activation analysis, Part I: Soil samples.** Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, v. 270, p. 111–116, 2006a.

MENEZES, M. Â. B. C.; PALMIERI, H. E. L.; LEONEL, L. V.; NALINI JR., H. A.; JACIMOVIC, R.; **Iron Quadrangle, Brazil, elemental concentration determined concentration determined by k_0 -instrumental neutron activation analysis, Part II: kale samples.** Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, v. 270, p. 117–121, 2006b.

MENEZES, M. Â. B. C.; JACÍMOVIĆ. R.; **Optimised k_0 -instrumental neutron activation method using the TRIGA MARK I IPR-R1 reactor at CDTN/CNEN, Belo Horizonte, Brazil.** Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, v. 564, p. 707-715, 2006c.

MENEZES, M.Â.B.C., JACÍMOVIĆ, R., SEBASTIÃO, R.C.O., LEAL, A.S., SOUZA, R.M. G.P.; **Experimental and modeling thermal neutron fluxes characterization of the carousel irradiation channels in the TRIGA MARK I IPR-R1 reactor, Brazil.** Technical Report - CDTN/Belo Horizonte, Brazil, p. 1 - 5, 2008.

MESQUITA, A. Z.; **Experimental investigation on temperatures distributions in a research nuclear reactor TRIGA IPR-R1 (em portugues).** Campinas, UNICAMP, Brazil, PhD Thesis, p. 183, 2005.

MOHAMED, A. B.; MOHAMAD, A.; LIVINGSTON, R.; SALEH, H.; **Monte Carlo simulations of a portable prompt gamma system for nondestructive determination of**

chloride in reinforced concrete. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, v. 266, p. 3397 - 3405, 2008.

MOLNAR, G. L.; **Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis with Neutron Beams.** Ed. Kluwer Academic Publishers, the Netherlands, 2004.

MTAEK - Hungarian Academy of Sciences Centre for Energy Research. Disponível em: <http://www.energia.mta.hu/content/instruments>. Acesso em julho de 2016.

NAQVI, A. A.; NAGADI, M.M.; KHATEEB-UR-REHMAN; MASLEHUDDIN, M.; KIDWAI, S.; **Monte Carlo simulations for design of the KFUPM PGNAA facility.** Radiation Physics and Chemistry, v. 66, p. 89 - 98, 2003.

NAQVI, A. A.; NAGADI, M. M.; **Performance comparison of an ^{241}Am -Be neutron Source-based PGNAA setup with the KFUPM PGNAA setup.** Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; v. 260, p. 641 - 646, 2004.

NDS-IAEA – Nuclear Data Services International Atomic Energy Agency. Disponível em: <https://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm>. Acesso em julho de 2016.

PARRY, S.; **Handbook of Neutron Activation Analysis with Neutron Beams.** Ed. Viridian Publishers, UK, 2003.

PAUL, R. L.; LINDSTROM, R. M.; **Prompt Gamma-Ray Activation Analysis Fundamentals and Applications.** Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; v. 243, p. 181 - 189, 2000.

PELOWITZ, D. B.; **MCNPX User's Manual, Version 2.6.0.** Los Alamos National Laboratory, Report LA-CP-07 - 1473, 2008.

REIS, P. A.; COSTA, A. L.; PEREIRA, C.; SILVA, C. A. M.; VELOSO, M. A. F.; SOARES, H. V.; **Thermal hydraulic and neutron kinetic simulation of the TRIGA IPR-R1 research reactor using RELAP5-PARCS coupled model.** European Research reactor conference, 2015.

REVAY, Z.; MOLNÁR, G. L.; BELGYA, T.; KASZTOVSZKY, Z; FIRESTONE, R. B.; **A new gamma-ray spectrum catalog for PGAA.** Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry;v. 248, p. 395 - 399, 2001.

RÉVAY, Z.; MOLNÁR, G. L.; BELGYA, T.; KASZTOVSZKY, Z.; **In-beam determination of k_0 factors for short-lived nuclides.** Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry; v. 257, p. 561 - 564, 2003.

SALOMÉ, J. A. D.; **Avaliação do Fluxo de Nêutrons em Liga de Al-Au de Diferentes Dimensões no Reator TRIGA IPR-R1 Utilizando o Método de Monte Carlo.** Dissertação de Mestrado, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte, 115 páginas, 2012.

SALOMÉ, J. A. D.; GUERRA, B.T.; PEREIRA, C.; MENEZES, M. A. B. C.; SILVA, C. A. M.; DALLE, H. M.; PEREIRA, C.; **Evaluation of the thermal neutron flux in samples of Al–Au alloy irradiated in the carousel channels of the TRIGA MARK I IPR-R1 reactor using MCNP code.** Nuclear Engineering and Design, v. 273, p. 576 - 583, 2014.

SANTORO, C. A. B.; **Determinação do Espectro de Nêutrons no Reator TRIGA pelo Método de Ativação.** Dissertação de Mestrado – Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte, 149 páginas, 1975.

SCHMITZ, T.; APPELMAN, K.; KUDEJOVA, P.; SCHUTZ, C.; KRATZ, J.V.; OTTO, G.; HAMPEL, G.; **Determination of boron concentration in blood and tissue samples from patients with liver metastases of colorectal carcinoma using Prompt Gamma Ray Activation Analysis (PGAA).** Applied Radiation and Isotopes, v. 69, p. 936 - 941, 2011.

SHAKHASHIRO A., AZEREDO A. M. G. F., SANSONE U., KIM C. K., KIS-BENEDEK G., TRINKL A., BENESCH T., SCHORN R.; **IAEA, Report on the IAEA-CU-2006-05 proficiency test on determination of ^{137}Cs and ^{210}Pb in spiked soil,** IAEA / AL /167, 2006.

SILVA, C. A. M.; PEREIRA, C.; GUERRA, B. T.; VELOSO, M. A. F.; COSTA, A. L.; DALLE, H. M.; MENEZES, M. Â. B. C.; **MCNP5 modelling of the IPR-R1 TRIGA reactor for criticality calculation and reactivity determination.** Nuclear Engineering and Design, v. 241, p. 4889 - 4993, 2011.

SILVA, C. A. M.; SALOMÉ, J. A. D.; GUERRA, B. T.; PEREIRA, C.; COSTA, A. L.; VELOSO, M. A. F.; MENEZES, M. Â. B. C.; DALLE, H. M.; **Sensitivity Analysis of the TRIGA IPR-R1 Reactor Models Using the MCNP Code**. International Journal of Nuclear Energy, p. 9, 2014.

SILVA, M. R. S. **Densímetros nucleares de superfície e profundidade usando cintiladores plásticos e módulo digitalizador de pulsos de luz**. Tese de Doutorado, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte, 91 páginas, 2010.

SNOJ, L.; TRKOV, A.; JACIMOVIC, R.; ROGAN, P.; ZEROVNIK, G.; RAVNIK, M.; **Analysis of neutron flux distribution for the validation of computational methods for the optimization of research reactor utilization**. Applied Radiation and Isotopes, v. 69, p. 136 - 141, 2011.

SNOJ, L.; ZEROVNIK, G.; TRKOV, A.; **Computational analysis of irradiation facilities at the JSI TRIGA reactor**. Applied Radiation and Isotopes; v. 70, p. 483 - 488, 2012.

SOARES, M. A.; Mattos, J. L.; Pujatti, P. B.; Leal, A. S.; Santos, W. B.; Santos R. G.; **Evaluation of the synergetic radio-chemotherapy effects of the radio labelled cisplatin for the treatment of glioma**. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, v. 292, p. 61 - 65, 2012.

SPYROU, N. M.; AWOTWI-PRATT, J. B.; WILLIAMS, A. M.; **Monte Carlo calculations and neutron spectrometry in quantitative prompt gamma neutron activation analysis (PGNAA) of bulk samples using an isotopic neutron source**. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, v. 259, p. 287 - 291, 2004.

SZENTMIKLÓSI, L. **Application of time-dependent processes in the Prompt- γ Activation Analysis**, Tese de Doutorado, Instituto de Isótopos, Academia Húngara de Ciências (Institute of Isotopes, Hungarian Academy of Sciences), Budapeste, 2006.

SZENTMIKLÓSI, L.; BELGYA, T., RÉVAY, Z., KIS, Z. **Upgrade of the prompt gamma activation analysis and the neutron-induced prompt gamma spectroscopy facilities at the Budapest research reactor**. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, v. 286, p. 501 - 505, 2010.

TÓFANI, P. C.; PAIANO, M. C.; **Uses of a Small Research Reactor in Brazil.** NUCLEBRÁS, CDTN, CNEN/CDTN-611, Belo Horizonte, 1989.

VELOSO, M. A.; **Avaliação Termo-hidráulica do Reator TRIGA IPR-R1 a 250 kW.** Belo Horizonte: Nota Interna do Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear – CDTN, NI-EC3-05/05, 2005.

ZAMBONI, C. B.; **Fundamentos da física de nêutrons.** Editora Livraria da Física, São Paulo, 2007.

ZANGIROLAMI, D. M.; **Fluxo Neutrônico a 100kw nos Terminais de Irradiação do Reator TRIGA IPR-R1.** Dissertação de Mestrado – Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte, 2009.

ZANGIROLAMI, D. M.; FERREIRA, A.V.; OLIVEIRA, A.H.; **Thermal and Epithermal Neutron Fluence Rates in the Irradiation Facilities of the TRIGA.** Brazilian Journal of Physics, v. 40, p. 47-51, 2010.


```

664-      c -----
665-      c -----
666-      dxt:n  28.7 0 225.2 2.4 8 44.8 0 317 2.4 8
667-           78 0 520  2.4 8 102 0 640  2.4 8 131 0 807  2.4 8 100  1e-12
668-      c -----
669-      c      M A T E R I A L S
670-      c -----
671-      c
672-      m14  6000.70c      0.083728  $ graphite
673-      c
674-      m31  5010.70c      0.023432  $ B4C
675-           5011.70c      0.085779 6000.70c      0.027686
676-      m32  13027.92c     0.060261  $ Aluminum
.....

```

```

26201 cell 229
26202 energy
26203 5.5000E-07 1.90110E-10 0.0119
26204 1.0000E-03 4.06523E-11 0.0425
26205 2.0000E+01 9.79723E-11 0.0285
26206 total 3.28734E-10 0.0122
26207
26208 cell 230
26209 energy
26210 5.5000E-07 1.52598E-10 0.0074
26211 1.0000E-03 3.13049E-11 0.0201
26212 2.0000E+01 8.03381E-11 0.0143
26213 total 2.64241E-10 0.0068
26214
26215 cell 231
26216 energy
26217 5.5000E-07 1.26931E-10 0.0102
26218 1.0000E-03 2.56534E-11 0.0276
26219 2.0000E+01 6.63855E-11 0.0184
26220 total 2.18970E-10 0.0089
26221
26222 cell 232
26223 energy
26224 5.5000E-07 1.05742E-10 0.0111
26225 1.0000E-03 2.15397E-11 0.0344
26226 2.0000E+01 5.66951E-11 0.0240
26227 total 1.83977E-10 0.0108
26228
26229 cell 233
26230 energy
26231 5.5000E-07 8.92692E-11 0.0118
26232 1.0000E-03 1.83683E-11 0.0375
26233 2.0000E+01 4.90987E-11 0.0297
26234 total 1.56736E-10 0.0124
26235
26236
26237 =====
26238
26239 results of 10 statistical checks for the estimated answer for the tally fluctuation chart (tfc) bin of tally 4
26240
26241 tfc bin --mean-- -----relative error----- ----variance of the variance---- --figure of merit-- --pdf-
26242 behavior behavior value decrease decrease rate value decrease decrease rate value behavior slope
26243
26244 desired random <0.10 yes 1/sqrt(nps) <0.10 yes 1/nps constant random >3.00
26245 observed random 0.01 yes yes 0.05 yes yes constant random 2.34
26246 passed? yes yes yes yes yes yes yes yes yes no
26247
26248 =====
26249
26250 .....
26251

```

```

26363
26364 *****
26365
26366 dump no. 51 on file ft50r nps = 25493954 coll = 24352473261 ctm = 13511.65 nrn =
26367 1180437450890
26368
26369 29 warning messages so far.
26370
26371
26372 run terminated when 2550 kcode cycles were done.
26373
26374 computer time =13514.89 minutes
26375
26376 mcnp version 5 09282010 03/30/14 08:11:27 probid = 03/27/14 18:33:41
26377

```