



COPPE/UFRJ

ESTUDO DE UM SISTEMA ALTERNATIVO PARA DETERMINAÇÃO DA
EFICIÊNCIA DO BANHO DE SULFATO DE MANGANÊS

Sandro Passos Leite

Tese de Doutorado apresentada ao Programa de
Pós-graduação em Engenharia Nuclear, COPPE,
da Universidade Federal do Rio de Janeiro, como
parte dos requisitos necessários à obtenção do
título de Doutor em Engenharia Nuclear.

Orientadores: Ademir Xavier da Silva
Walsan Wagner Pereira

Rio de Janeiro
Março de 2010

ESTUDO DE UM SISTEMA ALTERNATIVO PARA DETERMINAÇÃO DA
EFICIÊNCIA DO BANHO DE SULFATO DE MANGANÊS

Sandro Passos Leite

TESE SUBMETIDA AO CORPO DOCENTE DO INSTITUTO ALBERTO LUIZ
COIMBRA DE PÓS-GRADUAÇÃO E PESQUISA DE ENGENHARIA (COPPE) DA
UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO COMO PARTE DOS
REQUISITOS NECESSÁRIOS PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE DOUTOR EM
CIÊNCIAS EM ENGENHARIA NUCLEAR.

Examinada por:

Prof. Ademir Xavier da Silva, D.Sc.

Prof. Walsan Wagner Pereira, D.Sc.

Prof. Delson Braz, D.Sc.

Prof. José Antonio Carlos Canedo Medeiros, D.Sc.

Prof. Akira Iwahara, D.Sc.

Prof. Claudio de Carvalho Conti, D.Sc.

RIO DE JANEIRO, RJ – BRASIL

MARÇO DE 2010

Leite, Sandro Passos

Estudo de um Sistema Alternativo para Determinação da Eficiência do Banho de Sulfato de Manganês/ Sandro Passos Leite – Rio de Janeiro UFRJ/COPPE, 2010.

XVII, 104 p: Il.; 29,7 cm.

Orientador: Ademir Xavier da Silva

Walsan Wagner Pereira

Tese (Doutorado) – UFRJ/ COPPE/ Programa de Engenharia Nuclear, 2010.

Referências Bibliográficas: p. 84-87

1. Banho de Sulfato de Manganês. 2. Monte Carlo. 3. Eficiência do Sistema Banho de Sulfato de Manganês. 4. Padronização de Radionuclídeos. I. da Silva, Ademir Xavier, *et al.* II. Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, Programa de Engenharia Nuclear. III. Título.

Ao Senhor Jesus, autor da minha vida e meu salvador.
Aos meus pais, Dario da Silva Leite e Maria Lúcia Passos Leite, com amor e admiração.
Às minhas irmãs Fabiane e Viviane, amigas fiéis.

AGRADECIMENTOS

Ao senhor Jesus, pela graça de sua presença, que sempre renova o meu ânimo.

Aos meus pais, pelo incentivo, amor, exemplo e amizade.

Às minhas irmãs e sobrinhas Raissa e Esther, pelo o amor, incentivo e compreensão nos momentos de minha ausência.

À minha querida namorada Erica Albuquerque, pelo apoio, amor, amizade e paciência.

Aos meus orientadores Dr. Ademir Xavier da Silva e Dr. Walsan Wagner Pereira, pela disponibilidade, confiança, incentivo e orientação.

Ao Dr. Carlos José da Silva, ao Jamir Loureiro e as queridas Estela Bernardes e Vanessa de Bonis, por gentilmente cederem os seus tempos para a padronização da atividade da solução de MnSO_4

Às Secretárias do Programa de Engenharia Nuclear, Tânia e Josevalda

Aos meus colegas do Laboratório de Nêutrons Roberto, Joubert, Leonardo, Ana Paula, Luciane, Leandro, Guilherme, Jeferson, Carlos, Rosângela, Bruno, Nilson, Maurício e Gisele.

Aos servidores do Laboratório de Nêutrons, Dr. Evaldo Simões da Fonseca, Dra. Karla de Souza Patrão e Maria Letícia Dantas.

Ao suporte acadêmico e técnico fornecido pelo Programa de Engenharia Nuclear da COPPE/UFRJ, Laboratório de Nêutrons e de Radionuclídeos do LNMRI/IRD/CNEN e ao setor de Engenharia Mecânica do IRD.

Ao suporte financeiro da CNEN.

Resumo da Tese apresentada à COPPE/UFRJ como parte dos requisitos necessários para a obtenção do grau de Doutor em Ciências (D.Sc.).

ESTUDO DE UM SISTEMA ALTERNATIVO PARA DETERMINAÇÃO DA EFICIÊNCIA DO BANHO DE SULFATO DE MANGANÊS

Sandro Passos Leite

Março/2010

Orientadores: Ademir Xavier da Silva

Walsan Wagner Pereira

Departamento: Engenharia Nuclear

Um sistema alternativo de irradiação, que utiliza fontes radioisotópicas de nêutrons e um pequeno volume de solução de MnSO_4 foi proposto neste trabalho para a determinação da eficiência do sistema Banho de Sulfato de Manganês (BSM). O sistema foi caracterizado através de simulações com o código de transporte de radiação MCNP, a partir da modelagem de fontes de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ em vários volumes de solução de MnSO_4 e diferentes meios refletores de nêutrons para esta solução. O parâmetro calculado nas simulações foi a captura específica de nêutrons pelo manganês (CENM), que está relacionada com a atividade específica da solução de MnSO_4 . Com os sistemas propostos para as fontes de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ e de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ foi possível aumentar centenas de vezes a CENM, com relação aquela alcançada na simulação do sistema BSM do LN/LNMRI/IRD quando irradiado por cada uma destas fontes de nêutrons. Durante esse estudo de caracterização do sistema de irradiação o conceito deste sistema foi verificado utilizando-se os arranjos de irradiação de teste (AIT), que foram cavidades esféricas de vidro, de poucos centímetros de raio, preenchidas de solução de MnSO_4 e com e sem a presença de um meio refletor de nêutrons. Com esses arranjos foram realizadas quatro medições de eficiência sendo obtido seu valor médio.

Abstract of Thesis presented to COPPE/UFRJ as a partial fulfillment of the requirements for the degree of Doctor of Science (D.Sc.).

STUDY OF AN ALTERNATIVE SYSTEM FOR MANGANESE BATH
EFFICIENCY DETERMINATION

Sandro Passos Leite

March/2010

Advisors: Ademir Xavier da Silva

Walsan Wagner Pereira

Department: Nuclear Engineering

An alternative irradiation system, using radioisotope neutron sources and a small MnSO_4 solution volume, was proposed in this work to determine the Manganese Bath System (MBS) efficiency. The irradiation system was characterized through simulations with the MCNP radiation transport code from the modeling of $^{252}\text{Cf}(f,n)$ and $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ neutron sources in several MnSO_4 solution volumes and different neutron reflector medium for this solution. The parameter calculated in the simulations was the manganese neutron specific capture (MNSC), which is related to the MnSO_4 solution specific activity. From the proposed systems for $^{252}\text{Cf}(f, n)$ and $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ the NSCM was increased hundred times, in relation with that achieved in the LN/LNMRI/IRD MBS system simulation when irradiated by each these neutron sources. During study for irradiation system characterization its concept was verified using a assemble of test irradiation (ATI), which were spherical glass cavities, with few centimeter in radius, filled with MnSO_4 solution, with and without presence of a neutron reflector medium. These TIA were used in four efficiency measurements and the average value was obtained.

Sumário

CAPÍTULO I – INTRODUÇÃO	1
I.1 Generalidades	1
I.2 Motivação	3
I.3 Objetivo	4
I.4 Organização do Trabalho da Tese	4
CAPÍTULO II – REVISÃO DE LITERATURA.....	8
II.1 O Método do Banho de Sulfato de Manganês e a Medida de Fontes Radioisotópicas de Nêutrons Isotópicas	10
CAPÍTULO III – FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA	16
III.1 Interação do Nêutron com a Matéria.....	16
III.2 Espectros de Nêutrons de Referência.....	18
III.3 O Método Banho de Sulfato de Manganês	18
III.3.1 Nêutrons no Banho de Sulfato de Manganês	22
III.3.2 Determinação da Taxa de Emissão de uma Fonte de Nêutrons pelo Método Banho de Sulfato de manganês	23
III.3.3 A determinação da Eficiência do Sistema BSM do LN/LNMRI/IRD	29
III.4 Padronização de Radionuclídeos por Cintilação Líquida	29
III.4.1 O Método CIEMAT/NIST (C/N)	30
III.4.2 O Método de Anti-Coincidência	32
III.5 O Código Computacional MCNP	34
III.5.1 Estrutura do Arquivo de Entrada do MCNP	35
III.5.1.1 Título do Problema	36
III.5.1.2 Descrição das Células (CELL Cards)	36
III.5.1.3 Descrição das Superfícies (SURFACE Cards)	36
III.5.1.4 Descrição dos Dados Físicos (DATA Cards)	36
III.5.1.4.1 Tipo de Radiação (MODE Card)	36

III.5.1.4.2 Importância da Célula – (IMP Card)	37
III.5.1.4.3 Especificação da Fonte	37
III.5.1.4.4 Tipo de Grandeza Calculada na Simulação (TALLY)	37
III.5.1.4.5 Especificação de Materiais	38
III.5.1.4.6 Delimitação do Problema (Cutoffs)	38
III.5.2 Determinação da Média, Variância e Desvio Padrão na Técnica de Monte Carlo	39
III.5.3 Estimativa do Erro Relativo no MCNP	40
III.5.4 A versão MCNP5	41
 CAPÍTULO IV – MATERIAIS E MÉTODOS	42
 IV.1 O BSM do LN/LNMRI/IRD	42
IV.2 Parâmetros Controlados no BSM do LN/LNMRI/IRD	42
IV.3 As Fontes de Nêutrons do LN/LNMRI/IRD.....	45
IV.4 Procedimento de Medição de uma Fonte de Nêutrons no BSM do LN/LNMRI/IRD	47
IV.5 A Eficiência do Sistema BSM do LN/LNMRI/IRD	48
IV.5.1 Proposta de um Novo Sistema de Irradiação da Solução de Sulfato Manganês para Determinação da Eficiência do LN/LNMRI/IRD	48
IV.5.2 Desenvolvimento do Sistema de Irradiação	50
IV.5.2.1 O Projeto do Sistema de Irradiação	54
IV.5.3 Determinação da Eficiência do Sistema BSM Utilizando o Arranjo de Irradiação de Teste (AIT)	55
IV.5.3.1 A utilização do AIT	55
IV.5.3.2 Padronização da Atividade Específica da Solução de Sulfato de Manganês Irradiada no AIT.....	58
IV.5.3.3 Determinação da Taxa de Contagem Específica da Solução do AIT Inserida no BSM.....	58
IV.5.3.4 Simulação do Arranjo de Irradiação de Teste (SAIT)	58
 CAPÍTULO V – RESULTADOS	60

V.1 Estudo da Captura Específica de Nêutrons pelo Manganês (CENM) para a Solução de MnSO_4 Imersa no Vácuo	60
V.2 Estudo da CENM para a Solução Imersa em Diferentes Meios Refletores de Nêutrons. Definição do Tipo e da Dimensão do Material Refletor de Nêutrons para a Solução.....	61
V.3 Estudo da CENM em Função do Volume de Solução Imerso em um Meio Refletor de Nêutrons.....	65
V.4 Projeto do Sistema de Irradiação Proposto (SIP).....	67
V.4.1 O SIP para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$	67
V.4.2 O SIP para a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$	69
V.4.3 Comparação entre os Sistemas de Irradiação Propostos.....	72
V.5 Determinação da Eficiência do Sistema BSM do LN/LNMRI/IRD Utilizando o AIT.....	73
V.5.1 Resultados da Irradiação (A)	73
V.5.2 Resultados da Irradiação (B).....	75
V.5.3 Resultados da Irradiação (C).....	75
V.5.4 Resultados da Irradiação (D)	76
V.6 Comparação entre os Sistemas de Irradiação Propostos e a Simulação do AIT	78
 CAPÍTULO VI – CONCLUSÕES	79
 VI.1 – Aspectos Gerais do Trabalho.....	79
VI.2 – Estudo de Caracterização dos Sistemas de Irradiação.....	80
VI.2.1 - Estudo da captura específica de nêutrons pelo manganês (CENM) para a solução de MnSO_4 imersa no vácuo	80
VI.2.2 - Estudo da captura específica de nêutrons pelo manganês para a solução imersa em diferentes meios. Definição do tipo e da dimensão do material refletor de nêutrons para a solução	80
VI.2.3 - Estudo da captura específica de nêutrons pelo manganês (CENM) em função do volume de solução imerso em um meio refletor de nêutrons.....	81
VI.3 – Proposta dos Sistemas de Irradiação para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$	81

VI.4 – Realização do Procedimento de Obtenção da Eficiência do Sistema BSM do LN/LNMRI/IRD utilizando o Arranjo de Irradiação de Teste (AIT)	82
VI.5 – Trabalhos futuros.....	82
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	84
ANEXO I.....	88
ANEXO II.....	96
ANEXO III	103

Índice de Figuras

Figura I.1 Diagrama de desenvolvimento deste trabalho de tese, para propor o sistema alternativo de irradiação para a solução utilizada no procedimento de obtenção da eficiência do sistema BSM	7
Figura III.1 Apresentação de alguns sistemas de padronização primária nêutrons que utilizam o BSM ao redor do mundo. Imagens retiradas dos sítios de cada instituição na rede internacional. (A) BSM circulante do National Institute of Standards and Technology NIST dos Estados Unidos da América, (B) BSM circulante da Korea Research Institute of Standards and Science (KRISS) da Coréia do Sul, (C) BSM estático do Czech Metrology Institute (CMI) da República Tcheca, (D) BSM circulante do National Physical Laboratory (NPL) da Inglaterra, (E) BSM circulante D. I. Mendeleyev Institute for Metrology St. Petesburg (VNIIM) da Rússia	19
Figura III.2 Espectro de decaimento do ^{56}Mn	20
Figura III.3 Esquema de um BSM circulante	21
Figura III.4 Esquema de um BSM estático	21
Figura III.5 Curva de crescimento e decaimento da atividade do ^{56}Mn no BSM	25
Figura III.6 Secções de choque para a captura de nêutrons rápidos por núcleos de oxigênio e enxofre através de reações (n, α) e (n,p)	26
Figura III.7 Esquema do método CIEMAT/NIST	32
Figura IV.1 Sistema de padronização primária absoluta de fontes de nêutrons do LN/LNMRI/IRD	43
Figura IV.2 Detector de NaI(Tl) no recipiente de imersão	43

Figura IV.3 Misturador utilizado para homogeneizar a atividade no BSM	44
Figura IV.4 Sistema eletrônico de contagem BSM do LN/LNMRI/IRD.....	44
Figura IV.5 Fonte de nêutrons $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ de 1850 GBq.....	45
Figura IV.6 Fonte de nêutrons de $^{252}\text{Cf}(f,n)$	46
Figura IV.7 Espectro da fonte $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$	46
Figura IV.8 Espectro da fonte $^{252}\text{Cf}(f,n)$	46
Figura IV.9 Fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ de 1850GBq no sistema de imersão.....	47
Figura IV.10 Representação gráfica da região de interação do nêutron no sistema BSM do LN/LNMRI/IRD.....	50
Figura IV.11 – Geometria utilizada para determinar o volume de solução para o máximo valor de CENM	50
Figura IV.12 Modelo da fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ simulada no MCNP	51
Figura IV.13 Esquema da fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ simulada no MCNP	52
Figura IV.14 – Geometria utilizada para definir o meio refletor de nêutrons para a solução de MnSO_4	53
Figura IV.15 O arranjo de irradiação de teste (AIT) sem meio refletor	55
Figura IV.16 AIT com meio refletor cilíndrico sem o recipiente de acrílico que fica posicionado na parte superior do sistema	57

Figura IV.17 SAIT com meio refletor cilíndrico	59
Figura IV.18 Visualização tridimensional do SAIT com meio refletor irradiado pela fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ (Moritz®).....	59
Figura V.1 CENM em função do raio da esfera de solução de MnSO_4	60
Figura V.2 Aumento da CENM para a solução imersa em diferentes meios refletores infinitos, fonte $^{252}\text{Cf}(f,n)$	62
Figura V.3 Aumento da CENM para a solução imersa em diferentes meios refletores infinitos, fonte $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$	62
Figura V.4 Variação da CENM em função do volume de solução imerso no meio refletor, $^{252}\text{Cf}(f,n)$	66
Figura V.5 Variação da CENM em função do volume de solução imerso no meio refletor, $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$	66
Figura V.6 Representação gráfica dos tubos de inserção das fontes de $^{252}\text{Cf}(f,n)$, (A), e $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$, (B).....	67
Figura V.7 Sistema de irradiação proposto para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$	68
Figura V.8 - Visualização tridimensional do sistema de irradiação proposto para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ (Moritz®).....	69
Figura V.9 Sistema de irradiação proposto para a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$	70
Figura V.10 Visualização tridimensional do sistema de irradiação proposto para a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ (Moritz®).....	70

Figura V.11 Esquema das concentrações de atividade obtidas em cada etapa estudada para propor os sistemas de irradiação para as fontes de $^{252}\text{Cf}(\text{f},\text{n})$ e de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,\text{n})$	71
Figura V.12 Aparência do cintilador líquido Hisafe III com 1 g de solução de MnSO_4	74
Figura V.13 Eficiências do sistema BSM do LN/LNMRI/IRD obtidas nas irradiações (A) e (B), realizadas com o método CIEMAT/NIST, e nas irradiações (C) e (D), realizadas com o método de anti-coincidência	77
Figura AI.1 Diagrama de comparação da eficiência de contagem dos solventes utilizados em soluções cintiladoras	89
Figura AI.2 Diagrama do processo de excitação para os níveis singletos ou tripletos	92
Figura AI.3 Diagrama de transferência da energia de excitação	93
Figura AI.4 Esquema de uma fotomultiplicadora	94
Figura AIII.1 Eficiência do ^{56}Mn x Eficiência do ^3H	104

Lista de Símbolos e Abreviaturas

- $A(t)_a$ - Atividade da amostra de solução inserida no BSM;
- $A(t)_{conc}$ - Concentração de atividade padronizada da amostra de solução irradiada (atividade do ^{56}Mn por massa de solução de MnSO_4)
- σ_H – Secção de choque de captura térmica do hidrogênio;
- σ_{Mn} – Secção de choque de captura térmica do manganês;
- σ_O – Secção de choque de captura térmica do oxigênio;
- σ_S – Secção de choque de captura térmica do enxofre;
- C_i – Taxa de contagem da amostra de solução inserida no BSM medida durante o intervalo de tempo τ_c , após correções para tempo morto e radiação de fundo;
- C_{ij} – Taxa de contagem medida durante τ_c , após correções para tempo morto e radiação de fundo;
- F – Fração de nêutrons capturados pelo ^{55}Mn ;
- K – Fator de Correção ;
- L – Fuga de nêutrons do BSM;
- m_a - Massa da amostra de solução irradiada inserida no BSM
- N – Captura de nêutrons rápidos no BSM ;
- $N(C_i, \lambda_m, \tau_c, T_0)$ – Taxa de contagem no BSM da massa da amostra irradiada inserida no volume do Banho;
- $N(C_{ij}, \lambda_s, \lambda_m, \tau_c, T_{is}, T_{ij}, T_j)$ – Contagem de saturação do ^{56}Mn na solução do BSM;
- N_H – Número de átomos de hidrogênio presente em 1 cm³ de solução;
- N_{Mn} – Número de átomos de manganês presente em 1 cm³ de solução;
- N_O – Número de átomos de oxigênio presente em 1 cm³ de solução;
- N_S – Número de átomos de enxofre presente em 1 cm³ de solução;
- Q – Taxa de emissão para a fonte calibrada no BSM;
- S – Captura de nêutrons pelos materiais da fonte;
- T_0 – Intervalo de tempo entre a data de referência e o início da contagem C_i ;
- T_i – Tempo no qual a fonte permanece no BSM;
- T_{ij} – Intervalo de tempo entre a retirada da fonte do BSM e início da contagem j ;
- T_{is} – Intervalo de tempo entre a data de referência e a inserção da fonte no BSM;
- Σ – Secção de choque macroscópica para nêutrons;
- ε - Eficiência do sistema de detecção do BSM;

$\epsilon_{\text{radionuclídeo}}$ – Eficiência de detecção no método CIEMAT/NIST;
 λ_m – Constante de decaimento do ^{56}Mn ;
 λ_s – Constante de decaimento da fonte de nêutrons;
 τ_c – Duração do período de contagem;
 AIT – Arranjo de Irradiação de Teste
 BIPM – Bureau International des Poids et Mesures, França;
 BSM – Banho de Sulfato de Manganês;
 CCRI - Comité Consultatif des Rayonnements Ionisants;
 CENM – Captura específica de nêutrons pelo manganês;
 CIEMAT – Centro de Investigaciones Energéticas Medioambientales y tecnológicas;
 CMI – Czech Metrology Institute, Republica Tcheca;
 CN – CIEMAT/NIST;
 cps – contagem por segundo;
 ICRM - International Committee for Radionuclide Metrology;
 INMETRO – Instituto Nacional de Metrologia, Normalização e Qualidade Industrial;
 IRD - Instituto de Radioproteção e Dosimetria, Brasil;
 ISO – International Organization for Standardization;
 KRISS - Korea Research Institute of Standards and Science, Coréia;
 LN – Laboratório de Nêutrons, LNMRI/IRD, Brasil;
 LNMRI – Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes, Brasil;
 MCA – Multichannel Analyzer;
 MCNP – Monte Carlo N-Particle;
 NIST - National Institute of Standards and Technology, Estados Unidos da América;
 NPL - National Physical Laboratory, Inglaterra;
 RCTD – Razão entre a Coincidência Tripla e Dupla;
 SIP – Sistema de Irradiação Proposto;
 SNRC – Soreq Nuclear Research Center;
 VNIIM - D. I. Mendeleyev Institute for Metrology St. Petesburg, Rússia.

CAPÍTULO I

Introdução

Pauca sed matura (J.C.F.Gauss)

I.1 – Generalidades

Nos últimos 35 anos o Laboratório de Nêutrons (LN) tem medido absolutamente a taxa de emissão de fontes de nêutrons (Q) através do método do Banho de Sulfato de Manganês (BSM). Entretanto, somente em 1996, através do programa de cooperação entre o *Bureau International de Poids et Mesure* (BIPM), o Instituto Nacional de Metrologia, Normalização e Qualidade Industrial (INMETRO) e o Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI), foi possível estabelecer no Laboratório de Nêutrons (LN), com a instalação do sistema BSM doado pelo BIPM, o Sistema de Padronização Primária de Fontes de Nêutrons. Atualmente, o LN/LNMRI/IRD é responsável pela guarda e manutenção do Padrão Brasileiro de Fluência de Nêutrons (Fonte de $^{241}\text{AmBe}(\alpha, n)$ de 3,7GBq), e pela realização da grandeza fluência de nêutrons. O LN/LNMRI/IRD ainda promove a disseminação dessa grandeza para instrumentos de medição de nêutrons utilizados na indústria, em centros de pesquisa, hospitais e em universidades, assegurando-lhes rastreabilidade. Juntamente com mais sete laboratórios, o LN faz parte do *Comité Consultatif des Rayonnements Ionisants* (CCRI), seção III (nêutrons), organizado pelo BIPM, onde são discutidos os trabalhos de pesquisa e as próximas comparações interlaboratoriais relacionadas à metrologia de nêutrons.

O método do Banho de Sulfato de Manganês, desenvolvido pelos pesquisadores que construíram a bomba nuclear (SZILARD *et al.*, 1939), foi desenvolvido originalmente para o estudo da emissão secundária de nêutrons em processos de fissão. Este método foi primeiramente adaptado para uso metrológico por O'NEAL e SHARFF-GOLDHABER (1946), que realizaram a medição absoluta da taxa de emissão de uma fonte de nêutrons. Fisicamente, um sistema BSM é uma cavidade, geralmente esférica, com aproximadamente 0,5 m³ de solução concentrada de sulfato de manganês. Atualmente, o BSM é o principal método utilizado em laboratórios de metrologia para medir a taxa de emissão de fontes radioisotópicas de nêutrons (SCHUHMACHER, 2004).

O princípio do método Banho de Sulfato de Manganês é a determinação da taxa de emissão de uma fonte de nêutrons através da ativação do manganês. Essa ativação ocorre quando os nêutrons, emitidos pela fonte imersa na solução de sulfato de manganês, perdem energia, principalmente ao interagir com o hidrogênio, e atingem a faixa de energia entre $2,5 \times 10^{-5}$ e 1 keV. Ao capturar o nêutron, o manganês (^{55}Mn) transmuta-se para ^{56}Mn , emissor das radiações beta, gama e de anti-neutrino. Então, a partir da contagem da radiação do decaimento do ^{56}Mn é possível determinar a taxa de emissão da fonte de nêutrons. Entretanto, como o manganês não é o único ator na história do nêutron no BSM, não se pode correlacionar diretamente a contagem da radiação do decaimento do ^{56}Mn com a taxa de emissão da fonte de nêutrons. Deste modo, para determinar a taxa de emissão da fonte de nêutrons é necessário realizar correções considerando, os demais eventos produzidos pelos nêutrons no sistema BSM. Além dessas correções, é necessário também considerar a eficiência de detecção do sistema BSM para a radiação do decaimento do ^{56}Mn .

A contagem do decaimento do ^{56}Mn é realizada no LN/LNMRI/IRD utilizando um detector cintilador de iodeto de sódio ativado com tálio. Esse detector está contido em um recipiente de acrílico (PMMA) e é posicionado no centro do sistema BSM após a retirada da fonte. Portanto, para ser corretamente determinada, a eficiência do sistema BSM deve considerar essa geometria de detecção (detector no BSM).

No LN/LNMRI/IRD, a eficiência do sistema BSM tem sido obtida, conforme o procedimento descrito por SCHUCH (1978), através da contagem de uma alíquota de solução de sulfato de manganês ativada no reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear e com atividade padronizada no Laboratório de Radionuclídeos do LNMRI/IRD. Nesse reator, distante cerca de 20 km do LN/LNMRI/IRD, um volume de aproximadamente 4mL de solução é irradiado durante 10 minutos em um fluxo de nêutrons térmicos de $10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Após este período, esse volume de solução é trazido novamente para o LNMRI/IRD. Então, uma parte dele é padronizada pelo sistema de coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$ ou pela câmara de ionização. O volume de solução restante é por fim inserido no BSM e, após a homogeneização física de sua solução, é feita a contagem com o detector cintilador de iodeto de sódio imerso na posição de referência. A eficiência é enfim determinada através da razão entre a contagem do decaimento da

solução inserida no BSM e a sua atividade determinada no sistema de padronização de radionuclídeos.

O procedimento de determinação da eficiência do sistema BSM apresentado acima é semelhante ao adotado pelos laboratórios que fazem parte do *Comité Consultatif des Rayonnements Ionisants* (CCRI), seção III (nêutrons) e que utilizam o detector cintilador de iodeto de sódio. Sempre é utilizado um intenso fluxo de nêutrons e, freqüentemente, a utilização do método $4\pi\beta\text{--}\gamma$ para padronizar a atividade da solução devido ao ^{56}Mn [Documento CCRI(III)/07-11]. A principal diferença está no objeto de irradiação, onde em alguns casos é utilizado pó de manganês, ao invés de solução aquosa de sulfato de manganês.

A dependência da ativação externa do manganês para a realização do procedimento de obtenção da eficiência está relacionada com a baixa concentração de atividade alcançada pela solução do BSM, mesmo quando irradiada por uma intensa fonte de nêutrons. No caso do sistema BSM do LN/LNMRI/IRD, quando padronizadas as fontes mais intensas do laboratório, a concentração de atividade alcançada pela solução fica na faixa de 0,02 a 0,06 Bq/mg. Considerando que o ^{56}Mn tem meia-vida de $2,57878\pm 0,00046$ horas (LNHB, 2008) é muito difícil padronizar uma amostra com esse valor de atividade.

I.2 – Motivação

Como foi visto acima, para determinar a eficiência de detecção de um sistema BSM é necessário ativar externamente o manganês, de modo que se produza uma amostra com concentração de atividade que possa ser contada no BSM e também ser padronizada. Como a irradiação é feita geralmente em um reator nuclear e nem sempre esse sistema de irradiação está próximo ao laboratório do BSM, a distância torna-se uma dificuldade no procedimento de obtenção da eficiência. No caso LNMRI, o reator utilizado está localizado a uma distância de cerca 20 km. Outro problema é conciliar a agenda de irradiação do reator nuclear com a agenda do Laboratório de Radionuclídeos do LNMRI/IRD e ainda conciliar as agendas destes laboratórios com a agenda do próprio LN/LNMRI/IRD. Essas dificuldades, que restringem o estabelecimento de uma rotina de acompanhamento da eficiência do BSM do LN/LNMRI/IRD, motivaram a

realização deste trabalho para propor um sistema de irradiação da solução de MnSO_4 que pudesse ser operado no próprio LN/LNMRI/IRD (sistema de irradiação local).

I.3 – Objetivo

Propor um sistema de irradiação local, alternativo ao reator nuclear, para ser utilizado no procedimento de obtenção da eficiência do sistema BSM.

I.4 – Organização do Trabalho da Tese

O estudo para propor o sistema de irradiação está baseado na evidência que a maior parte da interação do nêutron na solução ocorre nas proximidades da fonte. Essa evidência foi constatada no esboço gráfico da interação dos nêutrons emitidos pela fonte no sistema BSM modelado no código de transporte de radiação MCNP (BRIESMEISTER, 2001). Sendo assim, foi possível estabelecer a hipótese que a concentração de atividade da solução de MnSO_4 , quando irradiada por uma fonte radioisotópica de nêutrons em seu interior, aumenta com a redução do seu volume. Sendo isso verdade permitirá a criação de um procedimento de obtenção da eficiência. Para verificar essa hipótese e atingir o objetivo, este trabalho foi dividido em duas abordagens paralelas: uma experimental e outra apoiada na simulação de Monte Carlo.

A abordagem teórica foi realizada modelando-se inicialmente no código de transporte de radiação MCNP5 uma fonte de califórnio e outra de plutônio-berílio, as mais intensas do LN/LNMRI/IRD, em diferentes volumes esféricos de solução de sulfato de manganês. Essa modelagem foi utilizada para definir o volume de máxima captura específica de nêutrons pelo manganês. Em seguida, para definir o tipo e a dimensão do meio externo à solução, com o propósito de aumentar a captura de nêutrons pelo manganês através da reflexão de nêutrons, aquele volume de máxima captura foi modelado dentro de esferas de diferentes materiais. Definido o meio externo à solução, foi estudado também o comportamento da captura específica de nêutrons pelo manganês em função do volume de solução imerso no meio refletor nêutrons. Por último, foram propostos, considerando os resultados da simulação, os sistemas de irradiação para as fontes de califórnio e plutônio-berílio.

Na abordagem experimental, foram utilizados recipientes esféricos de vidro, com raios de 7,5 e 9,75 cm, cheios de solução de sulfato de manganês. Essas esferas com solução foram usadas com e sem a presença de um material refletor de nêutrons, sendo denominadas de arranjos de irradiação de teste (AIT). Esses arranjos foram usados para verificar o aumento da concentração de atividade da solução alcançada com a redução do volume irradiado e realizar o procedimento de obtenção da eficiência. Ao todo foram realizadas 4 irradiações, utilizando as fontes de nêutrons de califórnio, amerício-berílio e plutônio-berílio. Cabe ressaltar que os AIT não são os sistemas que foram propostos através do estudo teórico. Esses arranjos foram utilizados para validar indiretamente os sistemas propostos teoricamente antes que estes fossem construídos.

Na Figura I.1 é apresentado um esquema gráfico do desenvolvimento deste trabalho.

A apresentação e desenvolvimento deste trabalho estão organizados da forma descrita a seguir:

No Capítulo II, página 8, encontra-se uma discussão com respeito aos trabalhos pesquisados e consultados. Foi feito um breve relato sobre o desenvolvimento da técnica banho de sulfato de manganês e a utilização desta técnica na padronização de fontes radioisotópicas de nêutrons.

No Capítulo III, página 17, é realizada uma sucinta apresentação sobre os temas: interação dos nêutrons com a matéria, técnica do Banho Sulfato de Manganês, padronização de radionuclídeos por métodos de cintilação líquida e código de transporte de radiação MCNP.

No Capítulo IV, página 42, são definidos os materiais e métodos utilizados na caracterização dos sistemas de irradiação propostos e na verificação experimental, através de um arranjo de irradiação de teste, da aplicabilidade no procedimento de eficiência.

No Capítulo V, página 59, são mostrados e discutidos os resultados das simulações, a proposta dos sistemas de irradiação para as fontes estudadas e ainda os resultados experimentais obtidos com os arranjos de irradiação de teste.

Finalmente, no Capítulo VI, página 79, são manifestadas as conclusões e sugestões de trabalhos futuros.

Neste trabalho, encontram-se também alguns anexos, que estão essencialmente relacionados aos temas desenvolvidos no capítulo III:

Anexo I, página 86, são abordados os parâmetros relacionados à medição de radionuclídeos por cintilação líquida.

Anexo II, página 93, é apresentado o modelo do parâmetro livre, que é um tratamento estatístico utilizado para descrever a detecção do sinal luminoso pela a fotomultiplicadora de modo a obter a eficiência teórica de contagem dos métodos CIEMAT/NIST e RCTD (Razão entre a Coincidência Tripla e Dupla)

Anexo III, página 101, é descrito o procedimento de cálculo da eficiência de detecção do método CIEMAT/NIST para o caso do ^{56}Mn utilizando o programa CN2001.

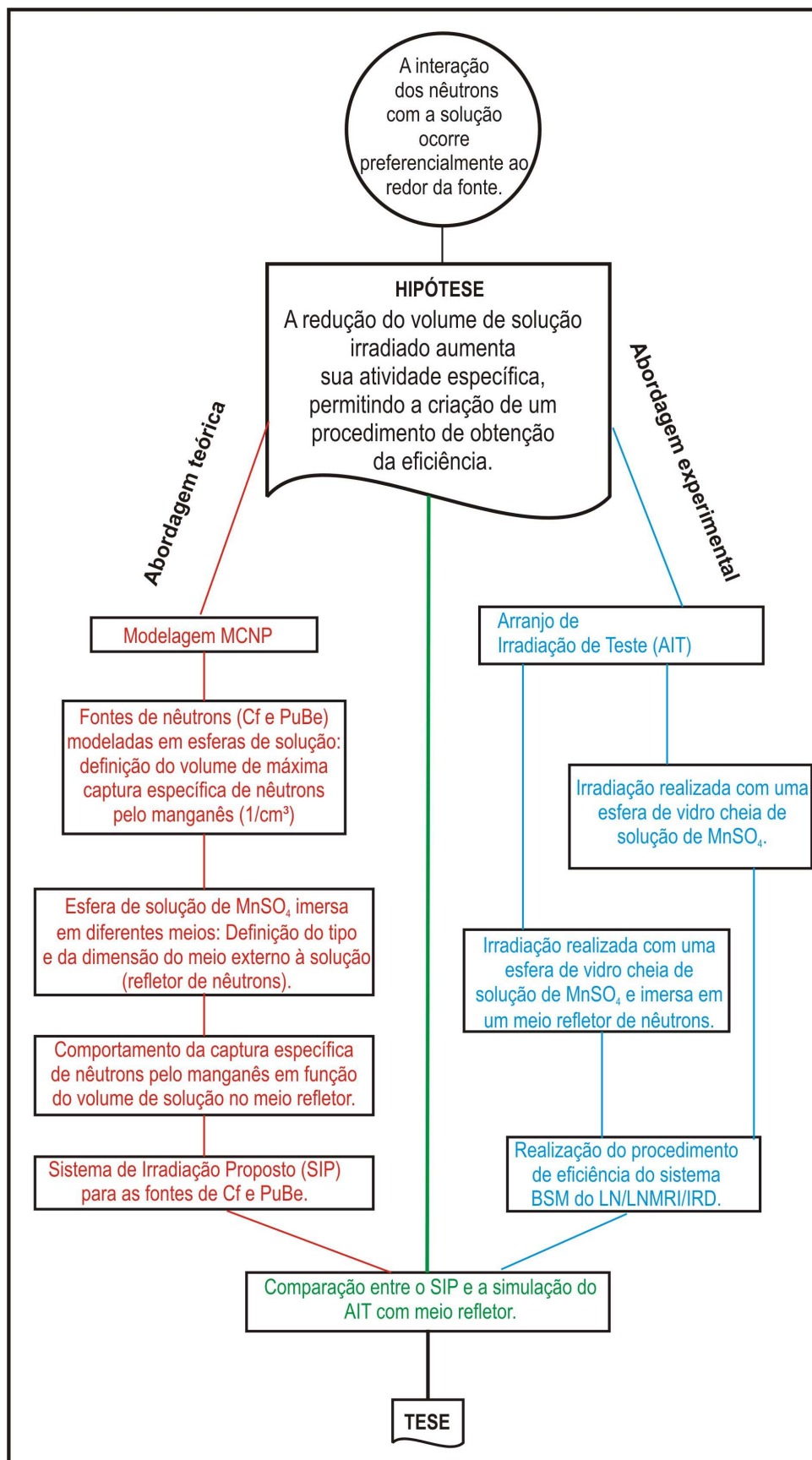


Figura I.1 – Diagrama de desenvolvimento deste trabalho de tese, para propor o sistema alternativo de irradiação para a solução utilizada no procedimento de obtenção da eficiência do sistema BSM

CAPÍTULO II

Revisão de Literatura

Após a descoberta do nêutron, em 1932, a radiação neutrônica logo passou a ser utilizada como ferramenta de investigação da estrutura nuclear. A vantagem desta radiação, em relação àquelas que possuem carga, é que ela pode penetrar facilmente o núcleo atômico; já que não precisa vencer o forte campo eletronuclear que o cerca.

Um hábil explorador desta ferramenta foi Enrico Fermi (1901-1954). Ele demonstrou que era possível transformar os núcleos atômicos bombardeando-os com nêutrons; ao bombardear o urânio, o mais pesado dos elementos naturais, esperava obter os elementos transurânicos, que viriam completar a Tabela periódica.

Também trabalhando com experimentos relacionados com o bombardeio de núcleos por nêutrons, Hahn (1879-1968) e Strassmann (1902-1980), publicaram um trabalho no qual concluíram que o bombardeio de núcleos de urânio por nêutrons dava origem à formação de núcleos de massa intermediária. Imediatamente após este trabalho, Meitner (1878-1968) e Frisch (1904-1979) concluíram que a absorção de nêutrons deixava os núcleos de urânio instáveis, levando-os a se dividirem em dois fragmentos de massa aproximadamente iguais. Em analogia ao processo de divisão celular, eles batizaram esse fenômeno de fissão nuclear (CHUNG, 2001). Depois da descoberta da fissão, Fermi foi um dos primeiros a considerar que fragmentos de fissão poderiam emitir nêutrons e que uma consequência direta disso seria a produção de uma reação em cadeia (SZILARD e ZINN, 1939). Os primeiros meses do ano de 1939 foram de intensas buscas por evidências sobre essa emissão secundária de nêutrons; que poderia ocorrer a partir de fragmentos de fissão altamente excitados (o mais provável) ou no momento da fissão.

HANSTEIN *et al* (1939), EUA, buscaram evidências daquela emissão secundária de nêutrons, através de um experimento que consistia em colocar uma fonte de nêutrons no centro de um grande tanque cilíndrico [90 cm de altura x 90 cm de diâmetro] cheio de água, onde também era colocado óxido de urânio acondicionado em varetas. A

constatação do eventual aumento de nêutrons era feita comparando-se o número de nêutrons presentes no tanque em situações dicotômicas: uma quando apenas a fonte estava presente e a outra quando o conjunto fonte-óxido de urânio estava no tanque. O número de nêutrons presentes na água era determinado através de medidas de folhas de ativação (folhas de ródio), colocadas em diferentes posições dentro do tanque. As folhas de ativação eram utilizadas para determinar a densidade de nêutrons em função da distância, informação utilizada no cálculo do número de nêutrons presente na água. Este método de medida depende de que os nêutrons sejam moderados dentro de um volume com simetria esférica. HANSTEIN *et al.* (1939) observaram um aumento de 5% no número de nêutrons quando o óxido de urânio estava presente no tanque. Mas eles não aceitaram de pronto que este acréscimo era devido à presença do óxido de urânio. A desconfiança sobre resultado surgiu porque a fonte utilizada por eles emitia nêutrons com energia suficiente para produzir reações nucleares do tipo $(n,2n)$. Para evitar este tipo de reação, eles montaram uma fonte de Ra-Be (γ,n). Esta fonte consistia de um bloco de berílio com um grama de rádio. Devido às dimensões da fonte (maior do que a anterior), a suposição de que os nêutrons moderados pela água teriam uma simetria esférica não era mais verdadeira, fazendo com que os resultados obtidos para o número de nêutrons presentes no tanque, nas duas situações mencionadas acima, fossem inconclusivos. Deste modo, não foi possível verificar o aumento (ou não) no número de nêutrons.

Para vencer a dependência com relação à simetria esférica dos nêutrons moderados, SZILARD *et al.* (1939), EUA, propuseram uma solução aquosa que não apenas moderasse os nêutrons, mas que também pudesse ser ativada. Eles utilizaram para isso uma solução aquosa com 10% de Sulfato de Manganês ($MnSO_4$). O manganês é o elemento alvo da ativação e sua atividade induzida pela captura de nêutrons é proporcional ao número de nêutrons térmicos presente na solução. Agora, o cálculo realizado para determinar o número de nêutrons térmicos presente no tanque, foi substituído pela medida da contagem da solução, após ser homogeneizada. Neste trabalho, não foi apenas desenvolvido o Método do Banho de Sulfato de Manganês (originalmente denominado de “Método de Integração Física” (O’NEAL e SHARFF-GOLDHABER, 1946)), mas também foram dados os primeiros passos para se fazer uma reação em cadeia sustentada. Isto possibilitou, nos anos seguintes, a construção de reatores e de bombas nucleares.

II.1 – O Método do Banho de Sulfato de Manganês e a Medida de Fontes Radioisotópicas de Nêutrons

O trabalho de Szilard, Fermi e Anderson, no qual foi desenvolvido o método do Banho de Sulfato de Manganês foi publicado em primeiro de agosto de 1939, e em primeiro de setembro a Alemanha invadiu a Polônia, iniciando a Segunda Guerra Mundial. Neste terrível período da história da humanidade, a comunicação científica esteve bastante prejudicada. Nos EUA, artigos relacionados à pesquisa de nêutrons eram retidos pelos editores e só voltaram a ser publicados após o término da II Guerra Mundial.

Um desses trabalhos foi o de O'NEAL e SHARFF-GOLDHABER (1946), EUA, que foi recebido em 1942, mas publicado apenas em 1946. Eles foram os primeiros a desenvolver uma técnica para medir absolutamente a taxa de emissão de uma fonte de nêutrons utilizando o método do Banho de Sulfato de Manganês. A técnica de medição da taxa de emissão de uma fonte de nêutrons (Q) desenvolvida por eles era a seguinte: A fonte de nêutrons a ser medida era colocada no centro de um tanque com solução aquosa de $MnSO_4$, até que a atividade induzida na solução pelos nêutrons alcançasse o equilíbrio. Após este momento, a solução era agitada e a contagem era realizada com um detector Geiger de paredes finas imerso nela. Outra irradiação ainda era feita, porém era inserido à solução um absorvedor de nêutrons. Após, novamente, atingir a atividade de equilíbrio da solução, e dela retirar o absorvedor, a contagem da solução era novamente realizada. A taxa de emissão da fonte de nêutrons era enfim determinada através da expressão $N=N_a/(1-R)$, onde N é a taxa de emissão, N_a é o número de nêutrons capturados pelo absorvedor e R é a razão entre contagem da solução medida com e sem a presença do absorvedor. A fonte de $RaBe(\alpha,n)$ calibrada neste artigo teve o seu valor da taxa de emissão determinado com incerteza de 9,3%.

Os trabalhos de DE JUREN e CHIN (1955a, 1955b), EUA, possibilitaram a redução daquele valor de incerteza para aproximadamente 2%. Esta redução está relacionada com um novo procedimento realizado por eles na medição de uma fonte de nêutrons pelo método do BSM. Diferenciando-se da técnica original, abandonaram o uso do absorvedor e passaram a calibrar o conjunto Banho-Detector através da medição

de uma alíquota de solução com alta concentração de atividade. Este procedimento foi realizado retirando-se um pouco mais de um litro de solução de sulfato de manganês do BSM. Em seguida, esta quantidade foi irradiada em um intenso feixe de nêutrons, e então, a atividade de uma alíquota dessa amostra foi padronizada em um detector $4\pi\beta$ e o restante dela novamente introduzida no Banho inativo. Após homogeneizar a solução com a amostra irradiada, a contagem de seu decaimento foi realizada com o detector imerso na solução. A eficiência de detecção para a radiação do ^{56}Mn foi determinada por meio da razão entre o valor da contagem da solução do BSM e o valor da atividade do ^{56}Mn medida pelo detector $4\pi\beta$.

GEIGER e WHYTE (1959), Canadá, mediram a taxa de emissão da fonte de Ra-Be(α ,n) do National Research Council, Canadá, utilizando o BSM. Eles utilizaram um procedimento semelhante ao apresentado por De Juren e Chin para calibrar o detector imerso na solução. Porém, utilizaram o processo Szilard-Chalmers (SZILARD e CHALMERS, 1934) para produzir uma alíquota de solução com alta concentração de atividade de ^{56}Mn . Um processo Szilard-Chalmers é basicamente a quebra de uma molécula devido ao recuo produzido pela captura do nêutron. Uma inovação no procedimento que determina a taxa de emissão de uma fonte de nêutrons foi a correção deste valor para as perdas devido à captura de nêutrons pela fonte, à captura de nêutrons rápidos [reações (n, α) e (n, γ) produzidas devido à absorção de nêutrons pelos núcleos de O e S presentes na solução] e à fuga de nêutrons da solução.

YARITSINA (1964), Rússia, descreve os três métodos utilizados no Mendeleev Institute of Metrology (VNIIM) para determinar absolutamente a taxa de emissão de nêutrons de uma fonte. Dentre os métodos utilizados, o BSM é citado como sendo o principal método usado em laboratórios de metrologia para calibrar fontes de nêutrons. O detector utilizado pelo VNIIM é um detector de NaI(Tl), com cristal cintilador de tamanho 4,0cmx4,0cm. Este detector foi acondicionado em um recipiente de alumínio e inserido na solução após a retirada da fonte. A contagem do decaimento da solução foi realizada acompanhando-se a radiação gama do ^{56}Mn de energia de 845keV. A janela inferior do discriminador foi controlada durante todo o tempo de medição através da energia de 661keV do ^{137}Cs .

Para calibrar o detector, foi adicionada à solução presente no tanque uma conhecida quantidade de solução irradiada em um reator. A concentração de atividade da solução inserida no tanque foi determinada por meio do contador $4\pi\beta$. A incerteza na contagem da radiação β do ^{56}Mn foi de $\pm 1\%$.

GURFINKEL e AMIEL (1965), Israel, descrevem o sistema BSM do Soreq Nuclear Research Center (SNRC), fazem uma revisão sobre o método BSM e apresentam o resultado da calibração de fontes de nêutrons do tipo (γ, n) , (α, n) e de fissão espontânea. O BSM do SNRC é de geometria cilíndrica, com 85cm de altura e 85cm de diâmetro. A densidade da solução aquosa de sulfato de manganês era de $(1,3204 \pm 0,0040) \text{ g/cm}^3$, correspondendo a uma concentração de $27,44 \pm 0,02\%$. Para prevenir a produção de óxido de manganês durante a irradiação, foi adicionado ácido sulfídrico à solução. O que tornou o pH da solução 2,8. A razão entre o número de átomos de hidrogênio e de manganês na solução ($N_{\text{H}}/N_{\text{Mn}}$) foi igual a 44,31 e o detector utilizado foi um cintilador de NaI(Tl), com dimensão de 3,8cm x 3,8cm, que é imerso na solução após a retirada da fonte de nêutrons. A contagem do decaimento da solução é medida acompanhando-se a energia de 845keV do ^{56}Mn .

Para calibrar o detector imerso no Banho, um volume de 5mL de solução foi irradiado durante alguns minutos em um feixe de nêutrons térmicos de $3,2 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2/\text{s}$. Deste volume, uma alíquota de 25 μL foi padronizada em um detector $4\pi\beta$. O restante da solução irradiado foi vertido no Banho e foi medido considerando-se o mesmo procedimento adotado durante a calibração de uma fonte de nêutrons. A eficiência do sistema de detecção foi obtida por meio da razão entre a contagem do decaimento da solução do BSM e a atividade da solução medida no detector $4\pi\beta$. Neste artigo foi mostrado também que há uma região efetiva de detecção, que está compreendida em um volume de 60L de solução ao redor do detector. Assim, para o sistema BSM estudado, que tem volume de solução de 480L, a eficiência do sistema de detecção poderia ser aumentada em 8 vezes colocando-se um conjunto de oito detectores igualmente espaçados dentro do Banho. Eles também constataram que a eficiência é maior quando a concentração da solução está próxima da saturação.

AXTON *et al* (1965), Reino Unido, inauguraram o uso do BSM circulante. Desenvolveram um experimento através da variação da concentração de sulfato de manganês para tornar a medida do ^{56}Mn “virtualmente independente” da razão entre as seções de choque do hidrogênio e do manganês; uma das principais fontes de incerteza. Outra importante fonte de incerteza, mencionada por eles, era aquela devido à medida da atividade do ^{56}Mn . Esta incerteza era devido principalmente à correção da radiação beta absorvida pelo suporte da alíquota de solução do detector $4\pi\beta$. Eles eliminaram esta fonte de incerteza passando a realizar aquela medição através do método de coincidência $4\pi\beta-\gamma$. Utilizando os procedimentos acima, a incerteza que era de cerca de 2% passou a ser de 0,3% do valor da taxa de emissão da fonte calibrada no National Physical Laboratory (NPL).

GEIGER (1967), Canadá, descreve diferentes métodos utilizados na calibração de fontes de nêutrons, entretanto, focaliza o artigo no método BSM. Relata que o método BSM pode ser realizado de duas maneiras: realizando-se a contagem do decaimento da solução com um detector imerso no próprio BSM (Banho estático) ou fazendo-se a solução proveniente do BSM circular por um detector localizado fora do Banho (Banho circulante). Apresenta que a eficiência do conjunto Banho-detector é determinada a partir da contagem do decaimento da solução do BSM após a inserção de uma alíquota de solução com alta concentração de atividade de ^{56}Mn . E a atividade desta alíquota é calibrada por meio do método de coincidência $4\pi\beta-\gamma$. A incerteza avaliada para a padronização do ^{56}Mn foi da ordem de 0,1%.

DE VOLPI e PORGES (1969), EUA, realizaram um extenso programa de calibração de fontes de nêutrons utilizando o método BSM. Foram determinadas as taxas de emissão de fontes de nêutrons de $\text{RaBe}(\alpha, n)$, ^{252}Cf e de $^{241}\text{AmBe}(\alpha, n)$. O sistema BSM utilizado era um tanque esférico de aço, com 101cm de diâmetro, que estava conectado, por canos de aço, a um recipiente externo por onde a solução fluía pelo detector numa velocidade de 250L/h. O detector utilizado era um cintilador de NaI(Tl) e foi calibrado utilizando-se um sistema de coincidência por cintilação líquida $4\pi\beta-\gamma$. O procedimento de calibração de detector foi realizado irradiando-se, durante 3s num feixe de 10^{13} neutrons/cm²/s, aproximadamente 25mg de sal de MnSO_4 monohidratado. Então, este sal ativado, foi diluído em água desmineralizada e a esta

solução foi adicionado peróxido de hidrogênio (a 30%) e ácido sulfídrico, ambos na proporção de 12 gotas por 100mL de solução aquosa de MnSO_4 . Para evitar que o manganês ativado se fixasse às paredes do frasco de cintilação, a solução foi diluída em etanol, na proporção de cinco partes de etanol por parte de solução. Então, foram preparados 4 frascos de cintilação, com 0,1mL daquela solução em cada um, para ser medido no sistema de coincidência. Um volume de 2,5mL daquela solução foi inserido no BSM para ser contado. Para facilitar a dispersão desta amostra no BSM, foi vertido nele 25mL de H_2O_2 . A incerteza avaliada para a medição da atividade pelo sistema de coincidência foi de 0,1%.

RODONTI (1974), Itália, estabelece o padrão italiano de nêutrons rápidos através de uma fonte de $^{241}\text{AmBe}(\alpha, n)$ calibrada pelo método do Banho de Sulfato de Manganês. A razão N_H/N_{Mn} foi igual a $47,45 \pm 0,10$ e a concentração de MnSO_4 foi de $(26,07 \pm 0,04)\%$. O detector utilizado nas contagens da radiação gama proveniente do decaimento do ^{56}Mn foi um cintilador de NaI(Tl) com tamanho de 5,08cm x 5,08 cm mergulhado na solução do BSM. Para determinar a eficiência desse detector foram realizadas as seguintes etapas. Um volume de 5cm³ de solução foi irradiado em um intenso fluxo de nêutrons e em seguida este volume foi diluído para 25 cm³ usando solução de 0,5N HCl. Feito isso, uma alíquota dessa solução foi preparada para ser padronizada pelo método de coincidência $4\pi\beta-\gamma$. Ao mesmo tempo, o restante daquela solução foi inserido no Banho onde, após misturar sua solução, foi colocado o detector para realizar as contagens. A eficiência de detecção determinada para o sistema BSM italiano foi de $1,656 \times 10^{-4} \pm 0,4\%$.

SCHUCH (1978), Brasil, descreveu, em sua dissertação de mestrado sobre calibração de monitores de nêutrons, o sistema do BSM do LN/LNMRI/IRD utilizado na época para padronizar fontes de nêutrons. Nesse trabalho, foi descrito o procedimento de obtenção da eficiência adotado pelo LN/LNMRI/IRD. Nele, alíquotas de solução de MnSO_4 foram irradiadas durante 10 minutos num fluxo de nêutrons térmicos de $10^9 \text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ do reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear. Então, para padronizar a concentração de atividade da solução irradiada, um conjunto de 5 amostras de massa conhecida desta solução foram medidas pelo método de coincidência $4\pi\beta-\gamma$. Concentração de atividade da solução medida pelo método $4\pi\beta-\gamma$ foi de 716

Bq/mg. O restante da solução irradiada (cerca de 9g) foi vertido no BSM e a sua contagem foi realizada seguindo o mesmo procedimento de uma calibração de fonte de nêutrons. O valor da eficiência obtido nesse procedimento foi de $6,2511 \times 10^{-4} \pm 1,5\%$.

PARK *et al* (2005), Coréia do Sul, descrevem o procedimento de medição de fontes radioisotópicas de nêutrons no BSM do Korea Research Institute of Standards and Science, KRISS. A técnica BSM utilizada é da solução circulante e o sistema do KRISS é constituído de dois tanques. O tanque maior tem 125cm de diâmetro e o menor, utilizado para fontes de nêutrons de menor intensidade, tem 65,5 de diâmetro. Ambos os tanques estão abastecidos de solução aquosa com concentração de sulfato de manganês de $(0,046798 \pm 7,5 \times 10^{-5})$ g/cm³ e densidade de $(1,0459 \pm 9,5 \times 10^{-5})$ g/cm³ a 20°C. A razão N_H/N_{Mn} é de $341,44 \pm 0,54$. A contagem do decaimento da solução é realizada por dois detectores de NaI(Tl) de tamanho 3,81cm X 3,81cm, localizados em um tanque de 10L, por onde circula solução numa velocidade de 10L/min. A eficiência do sistema de detecção é determinada a partir da irradiação, em um intenso fluxo de nêutrons, de um floco de manganês com 99,98% de pureza. Este manganês ativado é dissolvido em 50mL de uma solução de 0,1N HCl. Então esta solução é dividida em duas partes através de um preciso processo de pesagem. Uma parte desta solução é vertida no Banho e a outra levada para o sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$, onde a concentração de atividade da solução foi determinada. A eficiência foi determinada três vezes, sendo o valor médio destas medições de $3,25 \times 10^{-4} \pm 0,3\%$.

ROBERTS e JONES (2008), Reino Unido, descrevem as medições realizadas para validar as novas instalações do sistema BSM do National Physical Laboratory, construído em 2007. Nessas medições, a eficiência foi determinada através da irradiação de uma amostra sólida de ⁵⁵Mn no reator de pesquisa CONSORT situado em Ascot. Então, dessa amostra foi produzida no NPL solução de sulfato de manganês com alíquotas sendo padronizadas na câmara de ionização ou no sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$. O restante da solução foi vertido na cavidade do Banho e em seguida a solução foi agitada por no mínimo 10 minutos para alcançar a homogeneidade antes que a solução fosse bombeada através reservatórios de contagem. Nesses reservatórios estão dispostos quatro detectores de NaI(Tl). Através da medição do decaimento da solução inserida no Banho a eficiência dos detectores foi obtida em termos da contagem por decaimento do ⁵⁶Mn.

CAPÍTULO III

Fundamentação Teórica

III.1 – Interação do Nêutron com a Matéria

A interação dos nêutrons com a matéria é um processo bastante diferente daquele que ocorre com partículas carregadas ou radiações eletromagnéticas. Por ser o nêutron uma partícula que não possui carga elétrica, não interage eletromagneticamente com elétrons e núcleos constituintes do meio material. O processo da interação do nêutron com a matéria ocorre através da força nuclear, que é de curto alcance e restrita ao tamanho do núcleo. Portanto, em seu processo de interação com a matéria, o nêutron, necessariamente deve penetrar no núcleo ou então passar muito próximo à sua superfície, dentro dos limites de ação da força nuclear. O parâmetro que rege e quantifica essa interação é chamada de seção de choque e assume valores diferentes para cada tipo de interação. Este parâmetro dependerá do núcleo (material) objeto da interação e da energia do nêutron. Em casos práticos, a energia do nêutron costuma ser classificada em faixas: de 0,0001 a 0,5 eV, de nêutrons térmicos; entre 0,5 eV e 100 keV, de nêutrons epitérmicos; e acima de 100 keV, de nêutrons rápidos. Entretanto, alguns autores costumam variar ligeiramente os valores das faixas conforme o estudo realizado.

A interação dos nêutrons com a matéria pode ser dividida em dois principais processos, considerando o estado energético do núcleo alvo após a interação. Um desses processos ocorre quando a energia cinética total da interação do nêutron com o núcleo alvo é conservada. O núcleo permanece em seu estado fundamental e não há alteração de sua estrutura nuclear. Este processo é denominado de espalhamento elástico.

O outro processo, denominado de absorção, ocorre quando o nêutron incidente é absorvido pelo núcleo alvo, e pelo menos parte da energia cinética do nêutron incidente é absorvida por ele, deixando-o instável. Esta instabilidade gera outros fenômenos, dentre os quais se destacam o espalhamento inelástico, a captura radioativa e a fissão induzida.

No espalhamento inelástico, o nêutron incidente é absorvido pelo núcleo alvo. Em seguida, o núcleo instável emite um nêutron com energia diferente do incidente. Mesmo após essa emissão, o núcleo poderá ainda não ter alcançado a estabilidade, sendo necessário liberar o excesso de energia através da emissão de radiação gama. A emissão de radiação gama ocorrerá se o nêutron incidente possuir energia superior a 1,0 MeV para núcleos leves e a partir de 0,1 a 1,0 MeV para núcleos médios e pesados. Se a energia do nêutron incidente for maior do que 10 MeV, reações (n,2n) poderão ocorrer.

Na captura radioativa, o nêutron incidente forma com o núcleo alvo um núcleo composto que apresenta energia de excitação igual à energia de ligação do nêutron, acrescida a energia cinética do nêutron incidente. Em todas as faixas de energia do nêutron incidente observa-se captura radioativa, porém ocorre com maior frequência para nêutrons térmicos (nêutrons com energia da ordem de frações de eV).

Nêutrons térmicos têm energia mais próxima da energia de equilíbrio térmico do meio. Portanto, permanecem maior tempo nas vizinhanças dos núcleos, o que aumenta a probabilidade de serem capturados. Estes nêutrons ao serem capturados pelo núcleo produzem reações do tipo (n, γ), que são possíveis de ocorrer para praticamente todos os elementos químicos. Na solução de sulfato de manganês, a captura de nêutrons térmicos é realizada pelos núcleos de ^{55}Mn , ^1H , ^{32}S e ^{16}O .

Nêutrons rápidos, ao serem capturados, fornecem ao núcleo energia suficiente para que partículas carregadas possam ser emitidas a partir dele, isto é, para que tais partículas vençam a barreira da força forte que mantém o núcleo coeso. As principais reações de captura de nêutrons rápidos são as do tipo (n, α), (n,d) e (n,p). Na solução de sulfato de manganês, os núcleos de O e S capturam nêutrons rápidos através de reações do tipo $^{16}\text{O}(\text{n},\alpha)^{13}\text{C}$, $^{32}\text{S}(\text{n},\alpha)^{29}\text{Si}$ e $^{32}\text{S}(\text{n},\text{p})^{32}\text{P}$.

A fissão induzida é a fragmentação do núcleo em duas ou mais partes após absorver o nêutron. Este tipo de reação é mais provável com nêutrons térmicos no ^{235}U , ^{239}Pu e ^{233}U . Com nêutrons rápidos, este processo ocorre na maioria dos núcleos pesados. Durante a fissão induzida, ocorre a liberação de diversos tipos de radiação, dentre as quais nêutrons e raios gama.

Quando o nêutron é espalhado em um meio constituído por núcleos leves, ele é submetido a um processo denominado de moderação/termalização. Este processo é importante, pois, como foi dito anteriormente, os nêutrons térmicos, possuem maior probabilidade de serem capturados pelo núcleo. Materiais de baixo número atômico, que são utilizados para reduzir a energia dos nêutrons são chamados de moderadores. No BSM, a moderação dos nêutrons emitidos pela fonte é realizada, essencialmente pela água, isto ocorre devido aos átomos de hidrogênio. A redução na energia do nêutron é necessária porque a secção de choque de captura de nêutrons pelo manganês está compreendida na faixa de energia de nêutrons térmicos e epitérmicos, e é proporcional ao inverso da velocidade dos nêutrons.

III.2 – Espectros de Nêutrons de Referência

A ISO 8529 (ISO 8529-1, 2001) especifica os seguintes campos de nêutrons:

- Nêutrons produzidos por fontes radioisotópicas, incluindo fontes de nêutrons em um moderador;
- Nêutrons produzidos através de reações nucleares utilizando partículas carregadas provenientes de um acelerador (geradores de nêutrons);
- Nêutrons de reatores

A ISO 8529 também estabelece quais espectros de fontes radioisotópicas de nêutrons que devem ser utilizadas na rotina de calibração e de irradiação dos laboratórios de metrologia. Estes espectros de referência são os das fontes de amerício-berílio, califórnio-252 e amerício-boro; sendo também o califórnio-252 imerso em um recipiente com água pesada (esfera de aço com 30 cm de diâmetro e revestida com folhas de cádmio) definido como espectro de referência.

III.3 – O Método Banho de Sulfato de Manganês

Como apresentado no Capítulo I, o método BSM é o preferido por laboratórios de metrologia para determinar a taxa de emissão de fontes radioisotópicas de nêutrons. Na

Figura III.1, são apresentados alguns sistemas BSM encontrados em alguns desses laboratórios.



(A)



(B)



(C)



(D)



(E)

Figura III.1 – Apresentação de alguns sistemas de padronização primária nêutrons que utilizam o BSM ao redor do mundo. Imagens retiradas dos sítios de cada instituição na rede internacional. (A) BSM circulante do National Institute of Standards and Technology NIST dos Estados Unidos da América, (B) BSM circulante da Korea Research Institute of Standards and Science (KRISS) da Coréia do Sul, (C) BSM estático do Czech Metrology Institute (CMI) da República Tcheca, (D) BSM circulante do National Physical Laboratory (NPL) da Inglaterra, (E) BSM circulante D. I. Mendeleyev Institute for Metrology St. Petesburg (VNIIM) da Rússia

Um sistema BSM é constituído, basicamente, de um grande tanque ou cavidade com solução aquosa concentrada de sulfato de manganês ($\text{H}_2\text{O} + \text{MnSO}_4$). A medição da taxa de emissão de uma fonte de nêutrons é realizada inserindo a fonte de nêutrons na solução, onde deve ficar até que atividade da solução alcance a saturação. O grande volume de solução é necessário para que a maior parte dos nêutrons emitidos pela fonte seja termalizado e, deste modo, capturados pelo manganês. Nêutrons que porventura não sejam termalizados também podem ser capturados ou escaparem da solução; estas duas circunstâncias do nêutron no BSM serão discutidas adiante.

Os nêutrons termalizados são capturados principalmente pelos núcleos de hidrogênio (^1H) e manganês (^{55}Mn). Este último, ao capturar um nêutron transforma-se no manganês radioativo (meia vida do ^{56}Mn : $2,57878 \pm 0,00046$ horas (LNHB, 2008)), cujo espectro de decaimento é apresentado na Figura III.2. Ao decair o ^{56}Mn emite radiações beta e gama, e através da medida de uma destas radiações é possível determinar a taxa de emissão de uma fonte de nêutrons (Q). Nos primeiros trabalhos (O'NEAL e SHARFF-GOLDHABER, 1946; DE JUREN e CHIN, 1955a) que aplicaram o método BSM para calibrar fontes de nêutrons, no final da década de 1940, a radiação beta era utilizada para realizar as medidas, porém, com o aprimoramento dos detectores de cintilação, passou-se a utilizar a radiação gama.

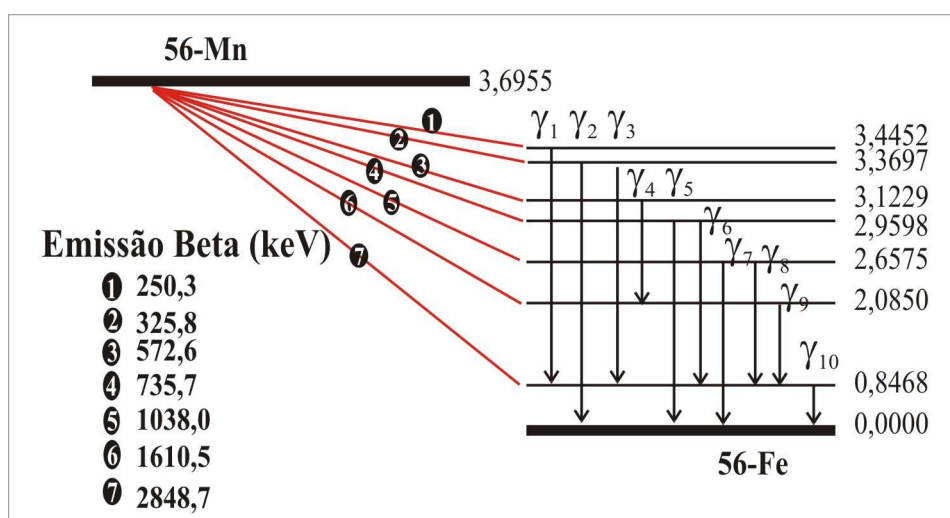


Figura III.2 – Espectro de decaimento do ^{56}Mn (TABLE OF NUCLIDES, 2008)

O Método do Banho de Sulfato de Manganês pode ser realizado através de duas técnicas: o BSM estático e o BSM circulante. A diferença entre as duas técnicas está no

modo de medida da atividade da solução. No BSM circulante (Figura III.3) a solução circula continuamente através de tubos e passa por detectores, geralmente dois, colocados em um recipiente externo ao Banho. Neste sistema, tanto o crescimento como o decaimento da atividade da solução, induzida pela fonte de nêutrons, pode ser acompanhada. Já no BSM estático (Figura III.4), apenas o decaimento da solução pode ser acompanhado, pois a medida é realizada apenas após a retirada da fonte e imersão do detector na solução. O BSM estático é o sistema utilizado no LN/LNMRI/IRD.

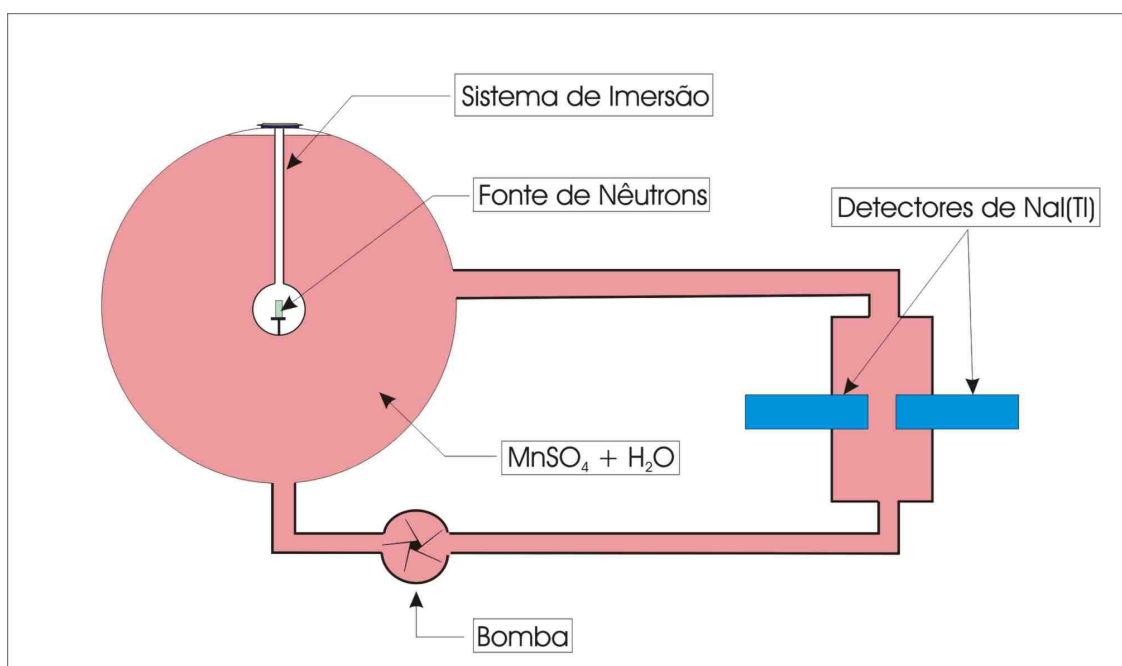


Figura III.3 – Esquema de um BSM circulante

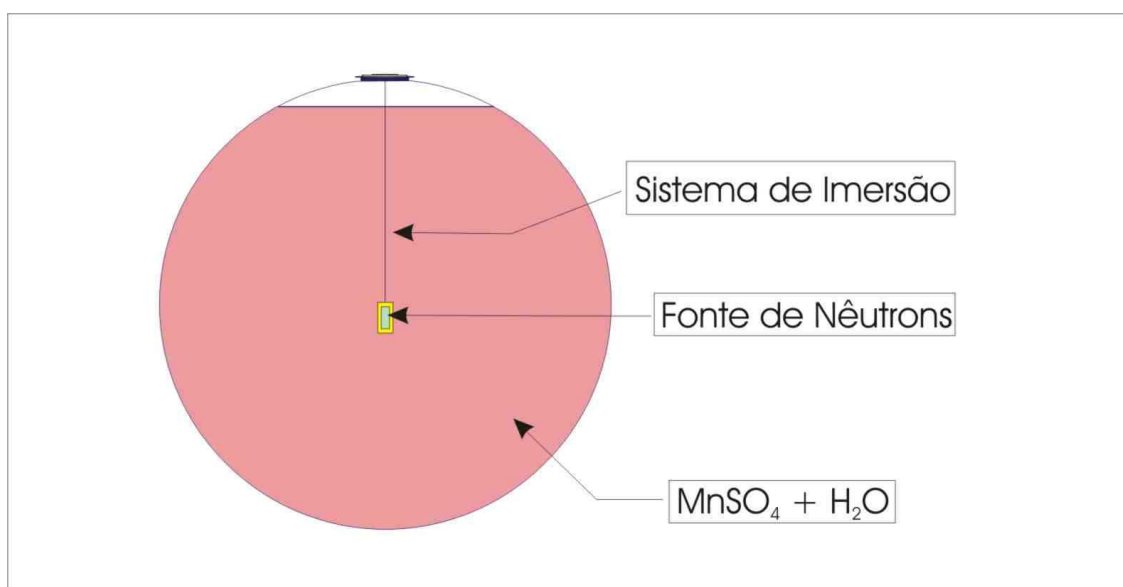


Figura III.4 – Esquema de um BSM estático

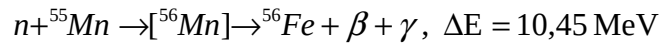
III.3.1 – Nêutrons no Banho de Sulfato de Manganês

Considerando os mais prováveis eventos do nêutron dentro do BSM, a equação geral para o cálculo da Q pode ser escrita como:

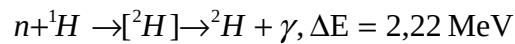
$$Q = R_{Mn} + R_H + R_S + R_O + R_L + R_{CP} + R_{FT} - R_{Mult} \quad \text{III.1}$$

Onde,

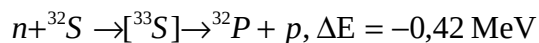
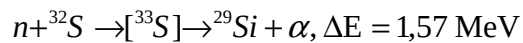
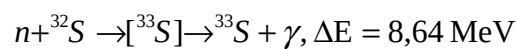
- R_{Mn} representa a taxa de absorção de nêutrons pelo manganês, que é igual a taxa de produção do ^{56}Mn . O manganês ativado é formado principalmente pela captura de nêutrons térmicos, sua secção de choque de captura é de 13,3 b. Ele é formado segundo a reação abaixo:



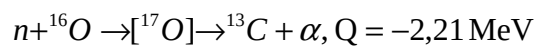
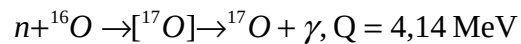
- R_H representa a taxa de nêutrons capturados pelo hidrogênio. O hidrogênio, por ser o elemento mais abundante na solução, é, depois do manganês, o que mais captura nêutrons térmicos. Sua secção de choque de captura é de 0,33 b e a reação de captura é dada por:



- R_S é a taxa de nêutrons capturados pelo enxofre. Este núcleo captura tanto nêutrons térmicos $[(n,\gamma)]$, secção de choque de 0,53 b, como nêutrons rápidos $[(n,\alpha)$ e $(n,p)]$. As reações de captura são dadas pelas equações abaixo:



- R_O é a taxa de captura de nêutrons pelo oxigênio. A captura de nêutrons térmicos pelo oxigênio, que possui seção de choque de 0,19 mb, é pouco relevante se comparada às demais capturas na faixa térmica dos núcleos presentes na solução. Porém, a captura de nêutrons rápidos (reações do tipo (n,α)) é importante, principalmente, para fontes que emitem nêutrons com energias acima de 3 MeV;



- R_L é a taxa de nêutrons que escapam do BSM. Depende do volume de solução do BSM.
- R_{CP} representa a taxa de nêutrons capturados pelo recipiente que protege a fonte quando submersa na solução. Este efeito é minimizado usando-se recipientes de paredes finas e com baixa seção de choque de absorção;
- R_{FT} é a taxa de nêutrons absorvidos pela fonte. Só são contabilizados nessa taxa os nêutrons aqueles que, após serem espalhados pela solução, são capturados por seu material e sistema de imersão.
- R_{Mult} é a taxa de multiplicação de nêutrons. Ocorre geralmente através de reações de captura do tipo $(n,2n)$ com os átomos presentes na solução. No sistema BSM do LN/LNMRI/IRD essa multiplicação de nêutrons dificilmente ocorre, pois as fontes rotineiramente calibradas não emitem nêutrons com energia suficiente para produzir reações $(n,2n)$.

III.3.2 – Determinação da Taxa de Emissão de uma Fonte de Nêutrons pelo Método Banho de Sulfato de Manganês

No método BSM, o parâmetro experimental que permite determinar a taxa de emissão de uma fonte de nêutrons é a contagem do decaimento do ${}^{56}\text{Mn}$ (C_{ij}). Essa contagem deve ser corrigida para contagem de saturação (N) para então ser utilizada no

cálculo da taxa de emissão de uma fonte de nêutrons. O valor da contagem de saturação é determinado por meio da equação III.2. A atividade de saturação da solução representa o momento no qual o número de átomos de ^{56}Mn que estão sendo produzidos é igual ao número átomos de ^{56}Mn que estão decaindo.

$$N(C_{ij}, \lambda_s, \lambda_m, \tau_c, T_{is}, T_{ij}, T_i) = \frac{C_{ij} \tau_c e^{\lambda_s T_{is}} e^{\lambda_m T_{ij}} (\lambda_m - \lambda_s)}{(1 - e^{-\lambda_m \tau_c}) (e^{-\lambda_s T_i} - e^{-\lambda_m T_j})} \quad \text{III.2}$$

onde,

C_{ij} : Taxa de contagem medida durante o intervalo de tempo τ_c , após correções para tempo morto e radiação de fundo;

λ_s : Constante de decaimento da fonte de nêutrons;

λ_m : Constante de decaimento do ^{56}Mn ;

τ_c : Duração do período de contagem;

T_{is} : Intervalo de tempo entre a data de referência e a inserção da fonte no BSM;

T_{ij} : Intervalo de tempo entre a retirada da fonte do BSM e início da contagem j-ésima;

T_i : Intervalo de tempo no qual a fonte permanece no BSM.

Os termos da equação III.2 estão ilustrados na Figura III.5, que apresenta as curvas de crescimento e de decaimento da atividade do ^{56}Mn presente na solução.

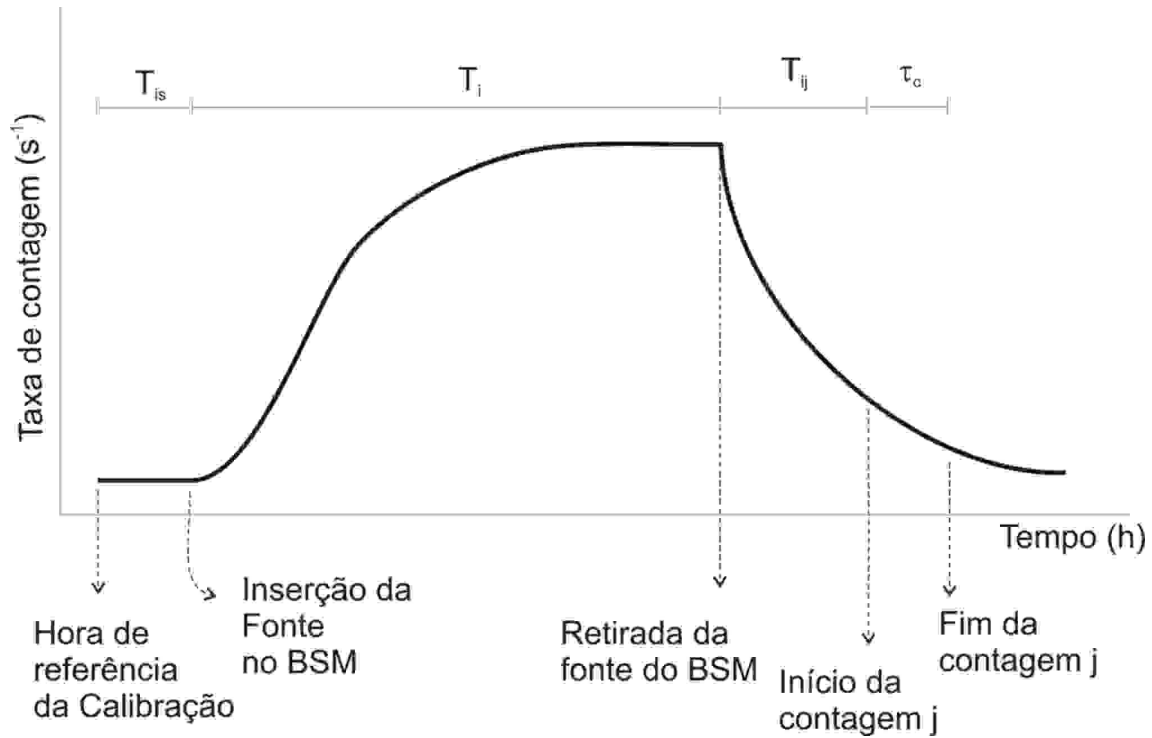


Figura III.5 – Curva de crescimento e decaimento da atividade do ⁵⁶Mn no BSM

Como descrito na seção III.3.1, além da interação dos nêutrons com o manganês, ocorrem outros processos de interação para os nêutrons emitidos pela fonte no BSM, que devem ser determinados para uma correta determinação de $Q(t)$. Um desses processos é a captura de nêutrons térmicos, na solução, pelos átomos de hidrogênio, enxofre e oxigênio. Assim, para corrigir os nêutrons térmicos não capturados pelo manganês é calculado o parâmetro F , que pode ser entendido como a eficiência de captura de nêutrons térmicos pelos átomos de manganês. O valor de F é determinado através da equação III.3.

$$F = \frac{\sigma_{Mn}(1+a)}{\sigma_{Mn}(1+a) + \sigma_S + \sigma_O + \frac{N_H}{N_{Mn}}\sigma_H} \quad \text{III.3}$$

Onde, N_{Mn} e N_H são, respectivamente, o número de átomos de manganês e hidrogênio por centímetro cúbico de solução e σ_{Mn} , σ_H , σ_S e σ_O são as secções de choque microscópicas de captura de nêutrons térmicos pelo manganês, hidrogênio, enxofre e oxigênio, respectivamente. O fator $(1+a)$ corresponde a um fator de correção

devido às ressonâncias na secção de choque do manganês, onde o valor de a é dado por $(33N_H/N_{Mn} + 0,8)$ (LOUWRIER, 1966). Observando a expressão de F , temos que essa quantidade depende principalmente da razão N_H/N_{Mn} . Este parâmetro é calculado considerando a concentração de água e de sulfato de manganês presentes na solução. As concentrações são determinadas geralmente pelo método gravimétrico.

Os outros processos de interação que competem com a captura de nêutron pelo átomo de manganês são reunidos no parâmetro K , que é determinado através da equação III.4.

$$K = \frac{1}{1 - N - S - L} \quad \text{III.4}$$

onde, as componentes N , S e L são correções devido a:

N (*nuclide*): Captura de nêutrons rápidos pela solução. Essa componente é importante quando a energia dos nêutrons emitidos pela fonte é superior a 2 MeV (Figura III.6).

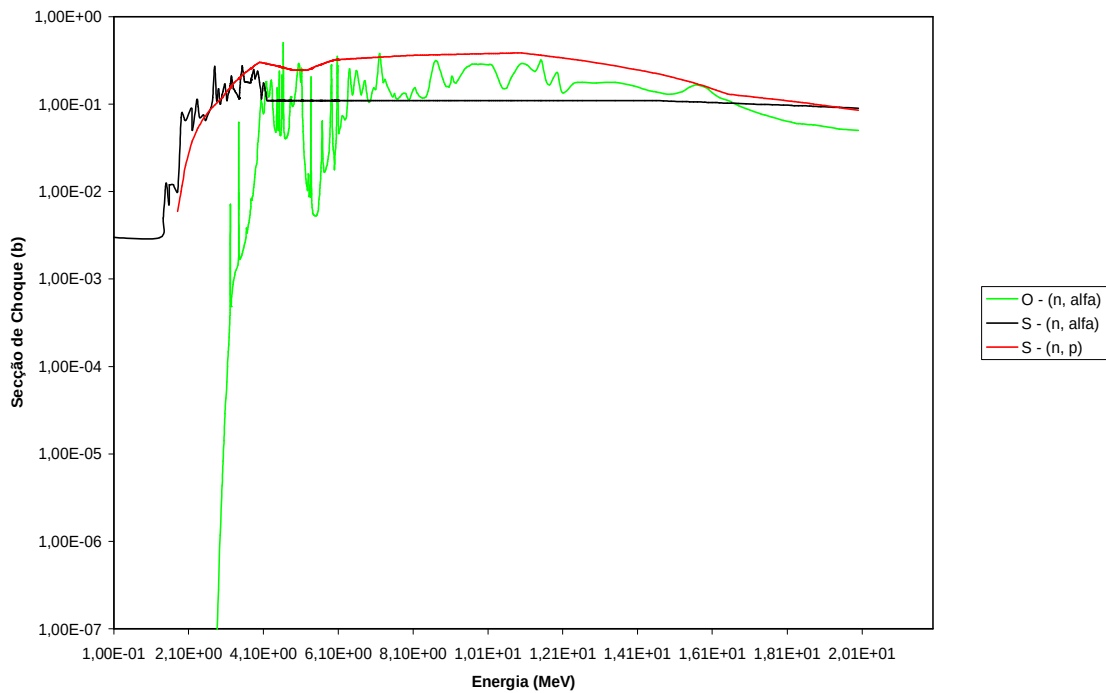


Figura III.6 – Secções de choque para a captura de nêutrons rápidos por núcleos de oxigênio e enxofre através de reações (n,α) e (n,p) (TABLE OF NUCLIDES, 2008).

Os nêutrons rápidos são capturados pelos núcleos de oxigênio e enxofre presentes através de reações do tipo (n,α) e (n,p). Como as fontes consideradas neste trabalho possuem energia média acima daquele limite de energia, esta componente foi considerada nos cálculos.

S (*source*): Essa componente refere-se aos nêutrons espalhados pela solução e que porventura são capturados pelo material da fonte. Também é acrescentado ao valor de S os nêutrons capturados pelo sistema de imersão. Este sistema é utilizado para proteger e posicionar a fonte até o centro do BSM.

L (*leakage*): Fuga de nêutrons do BSM. Depende principalmente das dimensões do BSM e da energia do nêutron emitido pela fonte.

Os termos N, S e L são determinados através de cálculos de Monte Carlo (LEITE, 2005; ROBERTS, 2001)

Os parâmetros F e K permitem corrigir o valor da atividade de saturação para os nêutrons não capturados pelo manganês, mas ainda é necessário determinar a eficiência do sistema de detecção para enfim se obter a taxa de emissão da fonte de nêutrons. A eficiência (ϵ) é obtida a partir da contagem no BSM de uma amostra de solução com atividade padronizada. Seu valor é obtido através da razão entre o valor da taxa de contagem no BSM da massa da amostra irradiada inserida no volume do Banho ($N(C_{ij}, \lambda_m, \tau_c, T_0)$) e o valor da atividade desta amostra de solução ($A(t)_a$), considerando a mesma data de referência (equação III.5).

$$\epsilon = \frac{N(C_{ij}, \lambda_m, \tau_c, T_0)}{A(t)_a} \quad \text{III.5}$$

Sendo,

$$N(C_{ij}, \lambda_m, \tau_c, T_0) = \frac{C_{ij} \tau_c \lambda_m e^{\lambda_m T_0}}{(1 - e^{-\lambda_m \tau_c})} \quad \text{III.6}$$

C_{ij} : Taxa de contagem no BSM da amostra de solução vertida no Banho, medida

durante o intervalo de tempo τ_c , após correções para tempo morto e radiação de fundo;

λ_m : Constante de decaimento do ^{56}Mn ;

τ_c : Duração do período de contagem;

T_0 : Intervalo de tempo entre a data de referência e o início da j-ésima contagem

C_{ij} ;

E,

$$A(t)_a = m_a \cdot A(t)_{conc}$$

Onde,

$A(t)_{conc}$: Concentração de atividade padronizada da amostra de solução irradiada (atividade do ^{56}Mn por massa de solução de MnSO_4);

m_a : Massa da amostra de solução irradiada inserida no BSM.

Geralmente, os laboratórios de metrologia de nêutrons utilizam, no procedimento de obtenção da eficiência do sistema BSM, um reator nuclear para irradiar a solução e um sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ para padronizar a concentração da atividade da amostra.

Reunindo os termos $N(C_{ij}, \lambda_s, \lambda_m, \tau_c, T_{is}, T_{ij}, T_j)$, K , ϵ e F na equação III.7 tem-se a taxa de emissão da fonte de nêutrons ($Q(t)$):

$$Q(t) = \frac{N(C_{ij}, \lambda_s, \lambda_m, \tau_c, T_{is}, T_{ij}, T_j) \cdot K}{\epsilon \cdot F} \quad \text{III.7}$$

É importante salientar que o valor de Q é definido como sendo o número total de nêutrons emitidos pela fonte por segundo, considerando-a como isolada no espaço (NCRP, 1960). Por causa desta definição, nêutrons produzidos por reações nucleares dentro da fonte, mas que são absorvidos antes de serem emitidos, não são contabilizados no valor de Q . Entretanto, se os nêutrons emitidos pela fonte forem espalhados pelo meio em direção a própria fonte e esta os absorver, esses nêutrons serão contabilizados em Q .

III.3.3 – A determinação da Eficiência do Sistema BSM do LN/LNMRI/IRD

A eficiência do sistema de detecção tem sido determinada a partir de amostras de solução do BSM irradiadas no reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear. O procedimento seguido para obtenção da eficiência foi descrito por SCHUCH (1978). Nesse trabalho, alíquotas de solução de MnSO_4 foram irradiadas durante 10 minutos num fluxo de nêutrons térmicos de $10^9 \text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. Então, para padronizar a concentração da atividade da solução irradiada, um conjunto de 5 amostras de massa conhecida desta solução foi medida pelo método de coincidência $4\pi\beta-\gamma$. O valor da concentração de atividade da solução determinada nessa medição foi de 716 Bq/mg. O restante da solução irradiada (cerca de 9g) foi vertido no BSM e a contagem do decaimento desse volume foi realizada seguindo o mesmo procedimento de uma calibração de fonte de nêutrons.

III.4 – Padronização de Radionuclídeos por Cintilação Líquida

Métodos de padronização baseados em cintilação líquida são potencialmente indicados à metrologia de radionuclídeos de baixa atividade e meia-vida curta. Isto é devido, principalmente, a rápida e simples preparação da amostra. Por exemplo, enquanto que em um sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$, quando utiliza um detector proporcional, tem período de preparação de sua amostra de medição na ordem de algumas horas, na cintilação líquida essa preparação leva apenas alguns minutos.

No laboratório de radionuclídeos do LNMRI/IRD existem dois métodos, baseados em cintilação líquida, que são utilizados na rotina de padronização de radionuclídeos: O CIEMAT/NIST, estabelecido no ano de 1999 (LOUREIRO, 1999) e o Sistema de anti-coincidencia $4\pi\text{NaI(Tl)}\text{-CL}$, estabelecido no ano de 2008 (DA SILVA, 2008). As padronizações da solução de MnSO_4 , realizadas pelo laboratório da radionuclídeos para este trabalho de tese, foram feitas utilizando esses dois métodos.

III.4.1 – O método CIEMAT/NIST (C/N)

Esse método de padronização de radionuclídeos foi primeiramente idealizado por Augustín Grau Malonda (L'ANNUNZIATA, 2003) em 1978, com o objetivo de desenvolver um procedimento de medição de atividade que pudesse ser realizado em qualquer contador de cintilação líquida, usando qualquer cintilador líquido e para qualquer tipo de radionuclídeo. Em 1984, com a parceria entre o *Centro de Investigaciones Energéticas Medioambientales y tecnológicas* (CIEMAT, Madri) e o *National Institute of Standards and Technology* (NIST, Gaithersburg) foi possível estabelecer um método de referência de padronização de radionuclídeos que pudesse ser realizado por qualquer laboratório que tivesse um contador de cintilação líquida convencional.

Devido ao C/N utilizar um traçador, ele é considerado um método relativo de medição da atividade. Esse traçador, que geralmente é um padrão de ^3H , é utilizado para encontrar a eficiência do radionuclídeo medido. Essa eficiência depende tanto do tipo como da energia da radiação e também de fatores relacionados ao equipamento de detecção (geometria, qualidade das fotomultiplicadoras, influência da eletrônica nuclear, composição e densidade óptica da solução cintiladora). A contribuição no valor da eficiência devido ao tipo e a energia da radiação é determinada teoricamente por meio de programas como o CN2001, desenvolvido por GUNTHER (2002) e disponibilizado gratuitamente no site do ICRM¹. Esse programa calcula a eficiência do radionuclídeo medido em função da eficiência do traçador, considerando o modelo do parâmetro livre. No ANEXO III é apresentado a eficiência do ^{56}Mn em função da eficiência do traçador calculada pelo programa CN2001 e no ANEXO II é discutido o modelo do parâmetro livre. Já a contribuição relativa ao equipamento de detecção não pode ser determinada teoricamente, apenas com o auxílio de um padrão (traçador).

O ^3H é o traçador preferido quando são analisados radionuclídeos beta emissores. Padrões de ^3H são facilmente encontrados na forma aquosa ou na forma orgânica. Têm relativamente meia vida longa ($12,312 \pm 0,025$ anos, (LNHB, 2008)) e devido a energia da radiação beta emitida (20keV) a eficiência de contagem é mais sensível às

¹ http://www.nucleide.org/ICRM_LSC_WG/CN2003_PTB.zip

características do equipamento e ao comportamento da solução cintiladora se comparado à padrões de alta energia. Outra vantagem do ^3H é que o impacto das incertezas deste padrão é minimizado quando são medidos beta emissores de alta energia (BRODA *et al*, 2007).

Como o C/N foi desenvolvido para ser aplicado a contadores de cintilação líquida comerciais, que geralmente possuem duas fotomultiplicadoras em coincidência, o primeiro passo é calcular a eficiência de contagem para duas fotomultiplicadoras conforme discutido no ANEXO II, com $P(E,\lambda)$ e $R=2$ (Ver Tabela AII.1). Este cálculo deve ser realizado tanto para o ^3H como para o radionuclídeo em análise. Em seguida a resposta do contador de cintilação líquida é calibrada utilizando um conjunto de frascos de cintilação com conhecidas quantidades do padrão num cintilador líquido com diferentes quantidades de um agente de extinção luminosa. Deste modo é obtida uma curva de eficiência do padrão em função de um parâmetro de extinção luminosa. Por último, é realizada a contagem e determinado o nível de extinção luminosa da solução cintiladora do radionuclídeo analisado. A eficiência de contagem do radionuclídeo é obtida a partir da curva de eficiência do padrão e da eficiência teórica do padrão e do radionuclídeo analisado. Um esquema do método C/N é apresentado na Figura III.7. Determinada a eficiência do radionuclídeo, sua atividade é determinada através da equação III.7.

$$A = \frac{cps}{P_{\gamma} \cdot \epsilon_{\text{radionuclídeo}}} \quad \text{III.7}$$

Onde,

cps: contagem do decaimento da amostra por segundo

P_{γ} : probabilidade de emissão gama

$\epsilon_{\text{radionuclídeo}}$: eficiência de detecção para o radionuclídeo medido.

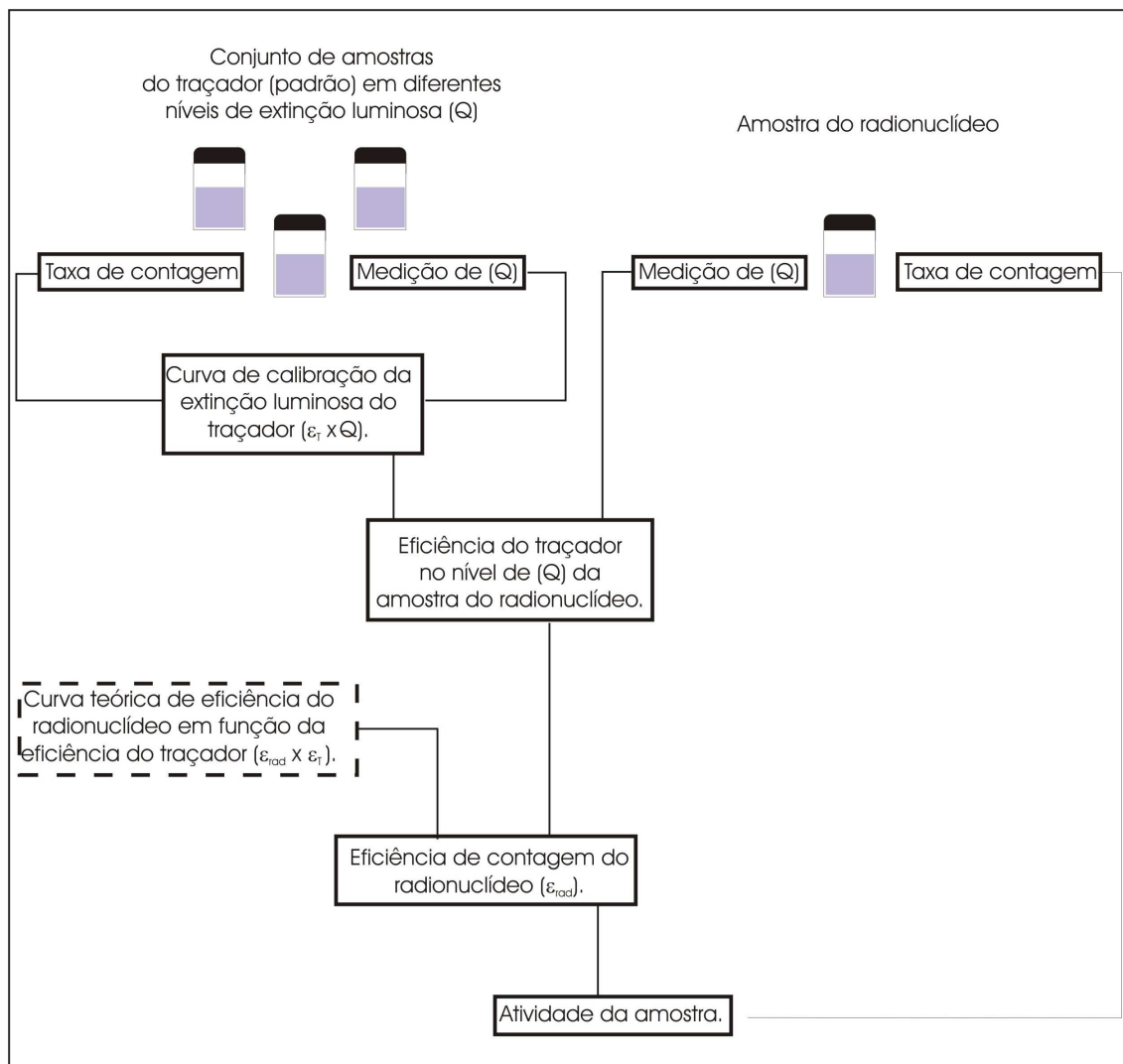


Figura III.7 – Esquema do método CIEMAT/NIST

III.4.2 – O método de Anti-Coincidência

O método de anti-coincidência, que foi inicialmente proposto por BRYANT (1962, 1967), é um método complementar ao de coincidência, sendo sua principal vantagem em relação a esse último pela possibilidade de eliminação das correções devido ao efeito Gandy (flutuação do retardo $\beta-\gamma$) (GANDY, 1961). Naquele método pode-se também evitar coincidências acidentais, necessitando somente de correções de tempo morto e radiação de fundo. Entretanto, quando se aplica o técnica de contagem em tempo vivo, que é obtido utilizando-se um dispositivo de tempo morto extensível, ao método de anti-coincidência, como foi proposto por BAERG *et al* (1976), pode-se eliminar ainda a correção de tempo morto. Com a medição em tempo vivo elimina-se também a correção instrumental, que passa ser feita automaticamente, tornado o

procedimento mais prático e exato (DA SILVA, 2008).

Diferentemente do método CIEMAT/NIST, o de anti-coincidência é um método primário, não necessitando de um padrão para realizar as medições. No sistema de anti-coincidência são geralmente utilizados detectores proporcionais ou cintiladores líquidos para a radiação alfa e beta; e detectores de NaI(Tl) ou de germânio para detectar fótons. No caso do LNMRI, o sistema de anti-coincidência utiliza cintilação líquida para as radiações alfa e beta e o detector de NaI(Tl) para a radiação gama.

Com a contagem em anti-coincidência, a emissão gama não correlacionada com a emissão beta (N_{anc}) é contada juntamente com as taxas de contagem observadas nos canais beta (N_β) e gama (N_γ), que podem ser determinadas, respectivamente pelas equações III.8, III.9 e III.10.

$$N_{anc} = N_0 \sum a_r \left[(1 - \epsilon_{\beta r}) \left(\frac{\epsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} \right) \right] \quad \text{III.8}$$

$$N_\beta = N_0 \sum a_r \left[\epsilon_{\beta r} + (1 - \epsilon_{\beta r}) \left(\frac{\alpha \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta \gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \right] \quad \text{III.9}$$

$$N_\gamma = N_0 \sum a_r \frac{\epsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} \quad \text{III.10}$$

Onde:

N_0	é a atividade da fonte que está sendo medida;
N_β , N_γ e N_{anc}	são as taxas de contagem observadas nos canais β , γ e de anti-coincidência, corrigidos para a radiação de fundo, decaimento, e perdas por tempo morto;
$\epsilon_{\beta r}$ e $\epsilon_{\gamma r}$	são as eficiências dos detectores β e γ para o ramo r do decaimento β ;
a_r	é a intensidade β do ramo r ;

α_r	é o coeficiente de conversão interna dos raios γ associados aos ramos β_r ;
$\alpha_{\beta_{cr}}$	é a eficiência do detector beta, para elétrons de conversão, associada ao ramo β_r ;
$\varepsilon_{\beta_{gr}}$	é a eficiência do detector beta aos raios gamas associados com o ramo β_r .

A taxa de contagem no canal de coincidência (N_c) pode ser obtida diretamente pela subtração entra a taxa de contagem gama total (N_γ) e da taxa de contagem em anti-coincidência (N_{anc}), sendo representada pela equação III.11.

$$N_c = N_\gamma - N_{anc} \quad \text{III.11}$$

A atividade da amostra e a eficiência podem então ser determinadas usando as equações III.12 e III.13, respectivamente.

$$A = \frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \quad \text{III.12}$$

e

$$N_c = A \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma \quad \text{III.13}$$

III.5 – O Código Computacional MCNP

O código MCNP (Monte Carlo N-Particle) aplica o método de Monte Carlo para o transporte de nêutrons, fótons, elétrons, ou concomitantemente nêutron/fótons/elétrons em problemas de transporte (BRIESMEISTER, 2001).

O usuário desenvolve um arquivo de entrada que contém informações sobre o problema, especialmente sobre a especificação da geometria; descrição dos materiais;

biblioteca de secção de choque selecionada; localização e características da fonte radioativa; e os tipos de respostas (TALLY) desejadas.

III.5.1 – Estrutura do Arquivo de Entrada do MCNP

Um arquivo contendo dados de entrada do MCNP possui a seguinte estrutura geral:

Título do Problema

CELL Cards

....

Linha em Branco - Delimitando partes do arquivo de entrada

SURFACE Cards

....

Linha em Branco - Delimitando partes do arquivo de entrada

DATA Cards

....

Linha em Branco – finalização dos dados de entrada

Cabe ressaltar que toda atenção deve ser dada na construção do arquivo de dados de entrada de um problema particular que deseja-se representar no MCNP, prestando-se atenção nas opções de entrada, inclusive na digitação correta dos mnemônicos que representam estas opções. O código realiza diversas verificações na construção do arquivo de entrada, verificando os possíveis erros do usuário. Todas essas verificações são feitas antes de qualquer simulação de transporte de radiação, e qualquer erro encontrado na estrutura dos dados de entrada é apresentado como um erro fatal (fatal error), sendo a primeira mensagem a que representa o erro encontrado, as demais mensagens podem ser ou não mensagens que representam erros encontrados, pois podem estar apenas relacionadas à primeira mensagem. Quando um erro deste tipo ocorre, o MCNP envia uma ou mais mensagens de erro e interrompe a execução, sem que nenhum cálculo seja realizado.

III.5.1.1 – Título do Problema

Esta é a primeira linha que aparece nos dados de entrada do MCNP e, como as demais linhas, está limitada a 80 colunas. Esta linha pode conter qualquer informação; porém, recomenda-se que deva descrever sucintamente o problema que está sendo simulado, pois aparecerá em várias partes do arquivo de saída do MCNP.

III.5.1.2 – Descrição das Células (*CELL Cards*)

Nesta parte dos dados de entrada, é feita a construção da geometria do problema. Para essa representação geométrica, utiliza-se combinações de formas geométricas pré-definidas, como planos, esferas, elipsóides, dentre outras, que são selecionadas e descritas no item a seguir (*SURFACE*). As regiões são combinadas utilizando-se operadores booleanos tais como: interseções e uniões, nesta parte também são representados os materiais que irão compor a geometria do problema.

III.5.1.3 – Descrição das Superfícies (*SURFACE Cards*)

São selecionadas as formas geométricas a serem utilizadas na representação geométrica do problema; para isto, são usados caracteres mnemônicos indicando o tipo de superfície e em seguida os coeficientes da equação da superfície selecionada.

III.5.1.4 – Descrição dos Dados Físicos (*DATA Cards*)

Região dos dados de entrada onde é descrita a parte da física do problema; de uma forma geral, esta parte é composta dos seguintes itens:

III.5.1.4.1 – Tipo de Radiação (*MODE Card*):

Onde é feita seleção do tipo de radiação (ou radiações) que será analisada no problema. No MCNP, as possibilidades são:

- N: Apenas o transporte de nêutrons;
- N P: Transporte de nêutrons e fótons;

P: Apenas o transporte de fótons;
E: Apenas o transporte de elétrons;
P E: Transporte de fótons e elétrons;
N P E: Transporte de nêutrons, fótons e elétrons.

O intervalo de energia, que é possível de ser representado no MCNP, para cada tipo de radiação é:

Nêutrons: de 10^{-11} MeV a 20 MeV;
Fótons: de 1 keV a 1 GeV, e;
Elétrons: de 1 keV a 1 GeV.

III.5.1.4.2 – Importância da Célula – (*IMP Card*):

O “IMP” pode ser escrito como IMP:N ou P ou E.

Este é o mnemônico para importância, que é utilizada no MCNP para:

a) Finalizar a história da partícula;
b) Realizar a separação das regiões geométricas de maior importância para as de menor importância. As importâncias normalmente são representadas por:

0: menos importantes

1: mais importantes

III.5.1.4.3 – Especificação da Fonte

Existem várias opções para descrever a fonte no MCNP; porém, algumas características são comuns, tais como: posição da fonte, energia, tipo de partículas, dentre outros dados que caracterizam a fonte.

III.5.1.4.4 – Tipo de Grandeza a Ser Calculada na Simulação (*TALLY*)

Esta opção, denominada de *TALLY* no MCNP é utilizada para especificar-se o que o usuário quer que seja escrito nos dados de saída, ao final de uma execução. Existem

algumas opções, que podem ser selecionadas através do uso de seu mnemônico correspondente, que são apresentados na Tabela III.1:

Tabela III.1 – Grandezas que podem ser calculadas pelo MCNP (BRIESMEISTER, 2001).

Mnemônico	Descrição
F1:N ou F1:P ou F1:E	Corrente integrada sobre uma superfície
F2:N ou F2:P ou F2:E	Fluxo médio sobre uma superfície
F4:N ou F4:P ou F4:E	Fluxo médio sobre uma célula
F5 :N ou F5 :P	Fluxo em um ponto
F6:N ou F6:N,P ou F6:P	Energia depositada em uma célula
F7:N	Deposição da energia média de fissão em uma célula
F8:E ou F8:P,E	Distribuição de pulsos de energia criados em um detetor
+F8:E	Deposição de carga

III.5.1.4.5 – Especificação de Materiais

Os materiais são representados no MCNP pela composição isotópica, através da estrutura:

ZAID₁ fração₁ ZAID₂ fração₂

Onde,

* ZAID_n é uma representação numérica na forma ZZZAAA.nnX, contendo o número atômico do elemento (Z), a massa do elemento (A) e com nn e X sendo opções para acionamento de bibliotecas de seções de choques especiais.

* fração_n é a fração de ZAID_n presente no material. Pode ser positiva ou negativa.

III.5.1.4.6 – Delimitação do Problema (*Cutoffs*)

Nesta opção são apresentados os limites impostos pelo usuário para a finalização do problema, tais como: tempo, energia, número de histórias, etc. O MCNP irá utilizar este parâmetro como um limitador para cada uma das opções selecionadas. Como exemplo pode-se citar a seleção do número de histórias (mnemônico NPS), que quando for atingido o número total de histórias selecionado, o código irá interromper sua

execução, apresentando então uma mensagem de finalização e terminará a execução do problema.

Deve-se sempre lembrar que o MCNP utiliza uma linha em branco, para realizar a separação dos conjuntos de dados entre CELL, SURFACE e DATA.

Neste item, não foram apresentadas todas as opções que podem ser utilizadas na representação de um problema no MCNP. Outras informações podem ser encontradas no manual do código e em um fórum de discussão do próprio MCNP na internet. Porém, aqui, procurou-se dar uma idéia geral do que é necessário para a construção de um arquivo de entrada deste código.

III.5.2 – Determinação da Média, Variância e Desvio Padrão na Técnica de Monte Carlo

O resultado de um cálculo, utilizando-se o método de Monte Carlo, representa a média de várias "histórias" executadas durante a simulação. As histórias são geradas por amostragem aleatória e um valor da grandeza estudada é associado a cada "história". Seja $f(x)$ a função densidade de probabilidade de uma "história" selecionada de valor x . A resposta verdadeira (média real) é o valor esperado de x , $E(x)$, onde:

$$E(x) = \int xf(x)dx \quad \text{III.14}$$

A função $f(x)$ raramente é conhecida; porém, a média verdadeira, x , pode ser estimada através do método de Monte Carlo pela equação:

$$\bar{x} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N x_i \quad \text{III.15}$$

onde x_i é o valor de x correspondente à "história" i , e N é o número total de "histórias". A variância, S^2 , pode ser estimada através do método de Monte Carlo pela equação:

$$S^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2}{N-1} \quad \text{III.16}$$

sendo S o desvio padrão da população x, obtido utilizando-se os valores x_i que foram gerados por amostragem aleatória. A variância da distribuição da média $\bar{x}$ é calculada por:

$$S_{\bar{x}}^2 = \frac{S^2}{N} \quad \text{III.17}$$

É importante ressaltar que $S_{\bar{x}}$ é proporcional a $1/\sqrt{N}$. Para reduzir $S_{\bar{x}}$ à metade é necessário executar quatro vezes o número de "histórias", que é um problema inerente ao método de Monte Carlo. A grandeza $S_{\bar{x}}$ também pode ser reduzida mantendo-se N constante, utilizando-se técnicas de redução de variância.

III.5.3 – Estimativa do Erro Relativo no MCNP

Todas as grandezas calculadas no MCNP aparecem nos arquivos de dados de saída seguidas por um número, que é o erro relativo definido por:

$$R \equiv \frac{S_{\bar{x}}}{\bar{x}} \quad \text{III.18}$$

Baseando-se em análises qualitativas e na experiência de alguns usuários, o manual do MCNP apresenta a Tabela III.2, como uma recomendação para interpretar os valores de R das grandezas calculadas. Esta interpretação de R assume que todas as porções da fase espacial do problema foram corretamente amostradas pelo processo de Monte Carlo.

Tabela III.2 – Recomendação para a interpretação do erro relativo R (BRIESMEISTER, 2001).

Valor de R	Classificação da grandeza calculada
0,5 a 1	Descartável
0,2 a 0,5	Pouco confiável
0,1 a 0,2	Questionável
< 0,10	Geralmente digna de confiança (exceto detector pontual)
< 0,05	Geralmente digna de confiança

III.5.4 – A versão MCNP5

O MCNP5 é a versão mais atual do código MCNP. Esta versão foi liberada para o mercado norte-americano em abril de 2003. Para usuários de versões anteriores, a liberação do código ocorreu, gratuitamente, em abril de 2004. Contém todos os recursos das versões 4C mais os novos recursos, tais como: mais cores para plotar a geometria e resultados, novas opções de definição de fontes e tallies para radiografia.

CAPÍTULO IV

Materiais e Métodos

IV.1 – O BSM do LN/LNMRI/IRD

O BSM do LN/LNMRI/IRD é uma cavidade esférica de aço inox com 1 m de diâmetro interno e com espessura de 1,5 mm. Este tanque está abastecido com aproximadamente 520 L de solução aquosa concentrada de sulfato de manganês (Figura IV.1). Para realizar a contagem do decaimento da solução é utilizado um detector de NaI(Tl) de 7,62x7,62 cm (Canberra modelo Am12512) colocado em um recipiente de acrílico (Figura IV.2). Este detector é inserido no BSM através de uma abertura localizada na parte superior do tanque (Figura IV.1), por onde também são inseridos a fonte e o misturador (utilizado para uniformizar a distribuição do átomos de ^{56}Mn formados durante a irradiação) Figura IV.3. A eletrônica acoplada ao detector de NaI(Tl) é constituída por uma fotomultiplicadora, modelo 2007P; um amplificador Canberra amp/tsca 2015A; um analisador monocanal da Oxford Instruments, modelo PCA3, v.2.42; um analisador multicanal da Oxford Instruments, modelo quantum MCA, v.3.60.06 e uma fonte de alta tensão Ortec 556. Esta eletrônica está disposta em um bastidor da Canberra, modelo 1400 (Figura IV.4). O registro e acompanhamento das contagens são assistidos por um computador, utilizando-se os programas PCA Ranger e Quantum MCA que controlam os analisadores mono e multicanal utilizados.

IV.2 – Parâmetros Controlados no BSM do LN/LNMRI/IRD

Para manter constantes as condições de medição da taxa de emissão de uma fonte de nêutrons padronizada no BSM do LN/LNMRI/IRD, alguns parâmetros devem ser controlados ou acompanhados. A sala onde está o BSM é mantida refrigerada em uma faixa de temperatura que varia entre 18 e 22 °C. Esta temperatura é medida por um termômetro digital e acompanhada um dia antes da realização da irradiação do BSM e também acompanhada durante o processo de contagem do decaimento da solução.

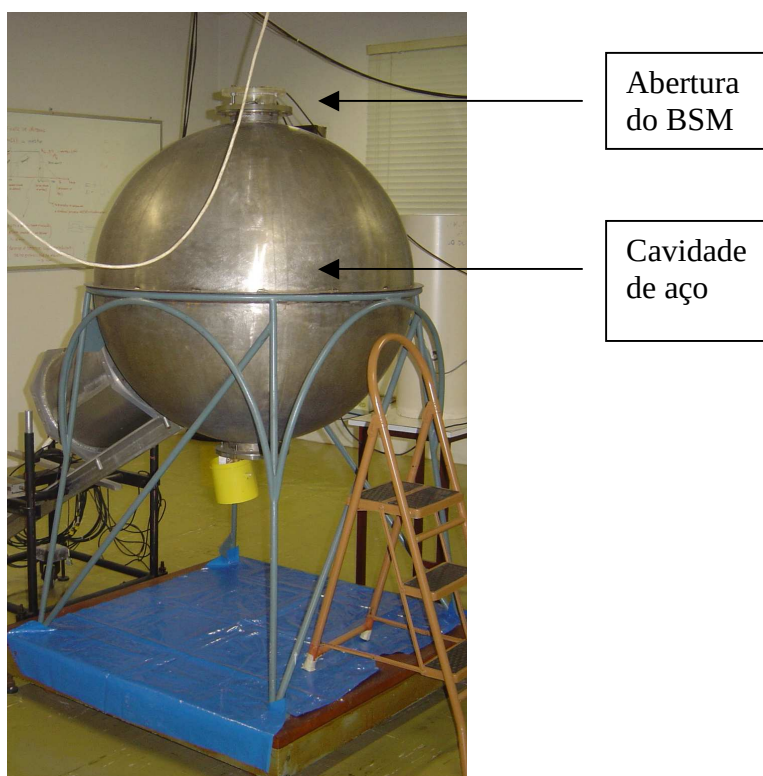


Figura IV.1 – Sistema de padronização primária absoluta de fontes de nêutrons do LN/LNMRI/IRD

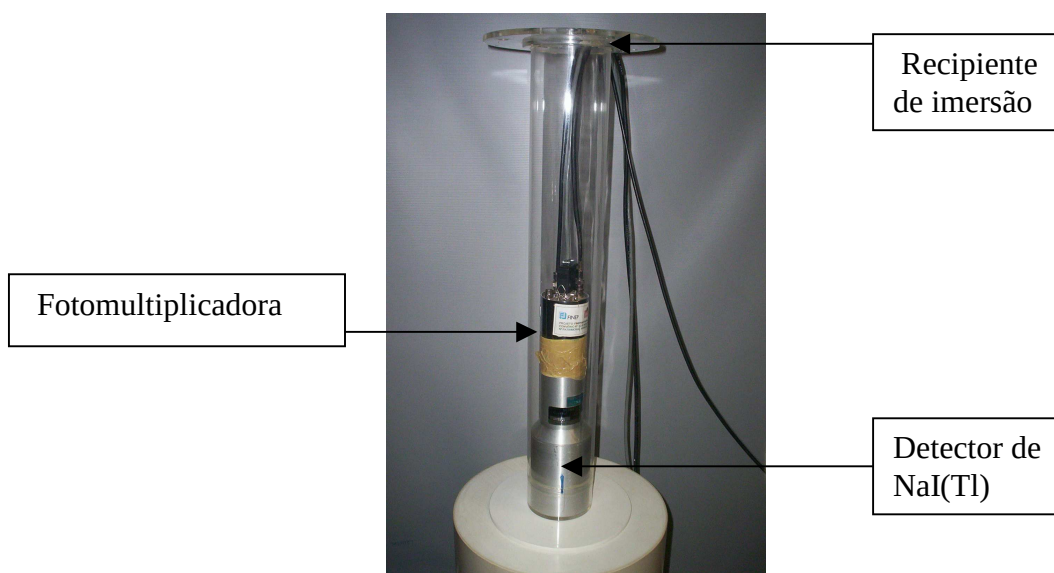


Figura IV.2 – Detector de NaI(Tl) no recipiente de imersão



Figura IV.3 – Misturador utilizado para homogeneizar a atividade no BSM

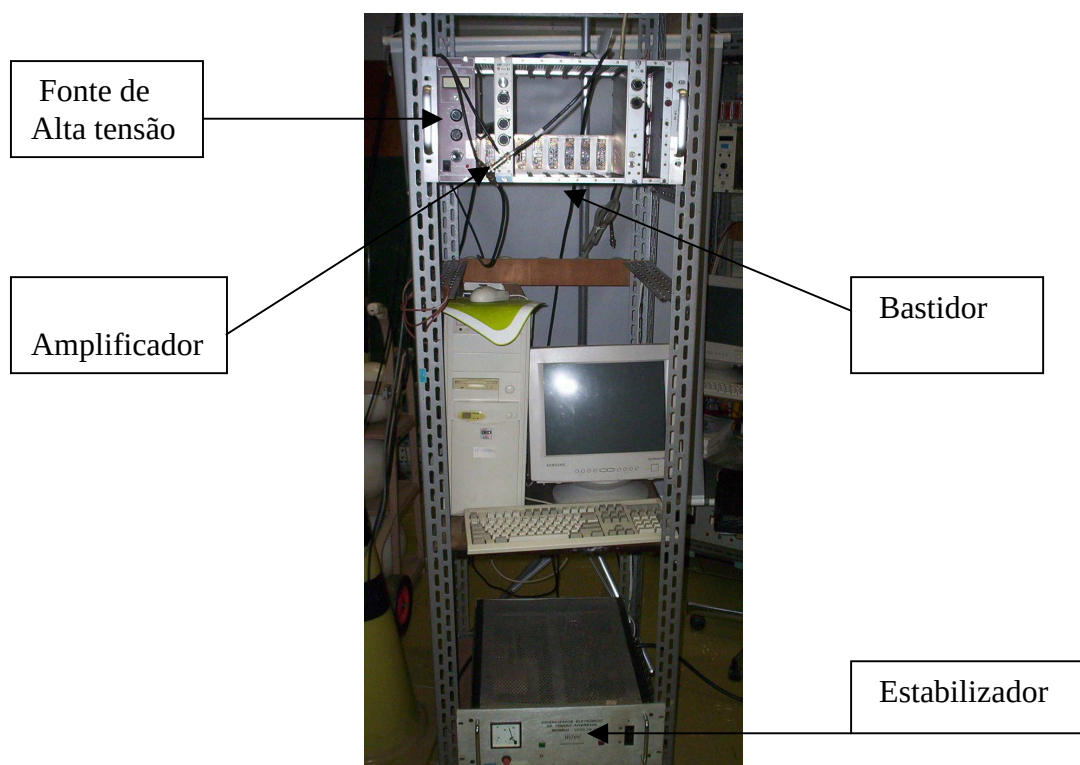


Figura IV.4 – Sistema eletrônico de contagem do BSM do LN/LNMRI/IRD

No próprio BSM, são controlados a altura ou nível da solução, a concentração de MnSO_4 e de H_2O , e ainda a densidade e a razão $N_{\text{Mn}}/N_{\text{H}}$ da solução. O nível da solução é acompanhado utilizando-se um suporte que se encaixa na abertura do BSM e um paquímetro da Mitutoyo. O valor médio do nível da solução é de $(97,4 \pm 0,3)$ cm. O

acompanhamento da densidade, das concentrações de MnSO_4 e H_2O , e da razão $N_{\text{Mn}}/N_{\text{H}}$ é realizado através do método gravimétrico (CASTRO *et al*, 2007). O valor médio destes parâmetros, obtido ao longo do ano de 2008, é apresentados na Tabela IV.1. Estes valores são utilizados na modelagem computacional do BSM, feita para o cálculo da correção K, e para determinar a razão $N_{\text{Mn}}/N_{\text{H}}$, utilizada para obter a correção F (Ver seção III.3.2 para maiores detalhes).

Tabela IV.1 – Valor da razão $N_{\text{Mn}}/N_{\text{H}}$, Conc. H_2O , Conc. MnSO_4 e densidade da solução de MnSO_4 .

	$N_{\text{Mn}}/N_{\text{H}}$	Conc H_2O (g/cm ³)	Conc MnSO_4 (g/cm ³)	Densidade (g/cm ³) a 20°C
	35,26	0,9445	0,4494	1,394
Incerteza (%)	0,08	0,07	0,09	0,07

IV.3 – As Fontes de Nêutrons do LN/LNMRI/IRD

O laboratório de nêutrons possui fontes radioisotópicas de nêutrons dos seguintes espectros: $^{241}\text{AmBe}(\alpha, n)$, $^{241}\text{AmB}(\alpha, n)$, $^{241}\text{AmLi}(\alpha, n)$, $^{238}\text{PuBe}(\alpha, n)$ e $^{252}\text{Cf}(f, n)$. Nos estudos realizados com o mcnp foram utilizadas as fontes de $^{238}\text{PuBe}(\alpha, n)$ e $^{252}\text{Cf}(f, n)$ (Figuras IV.5 e IV.6). Estas fontes foram escolhidas por serem as mais intensas do LN/LNMRI/IRD. Os espectros das fontes $^{238}\text{PuBe}(\alpha, n)$ e $^{252}\text{Cf}(f, n)$ são apresentados nas Figuras IV.7 e IV.8. Já no estudo experimental, além dessas duas fontes, foi utilizada uma fonte de $^{241}\text{AmBe}(\alpha, n)$.



Figura IV.5 – Fonte de nêutrons $^{238}\text{PuBe}(\alpha, n)$ de 1850 GBq



Figura IV.6 – Fonte de nêutrons de $^{252}\text{Cf}(f,n)$

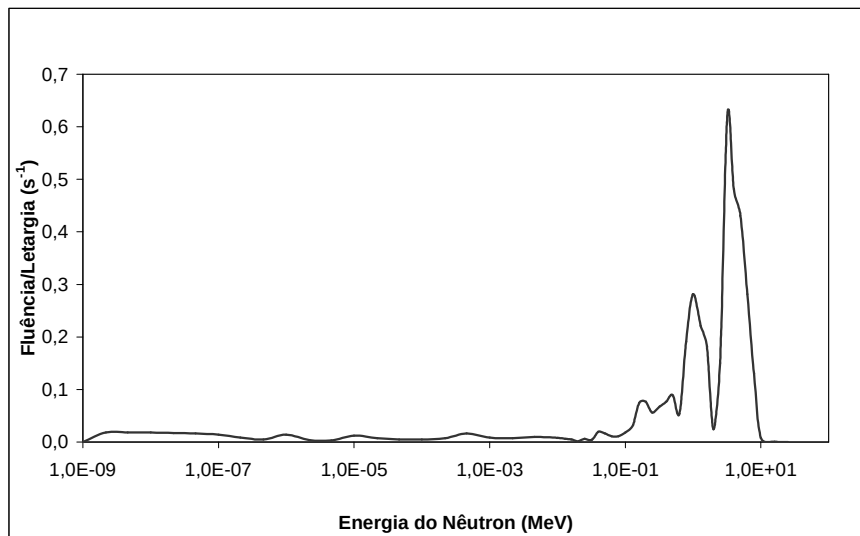


Figura IV.7 – Espectro da fonte $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$

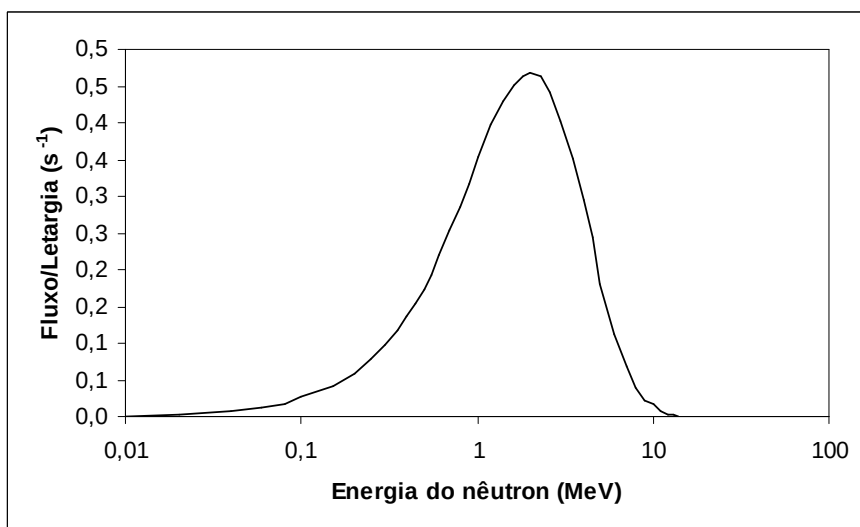


Figura IV.8 – Espectro da fonte $^{252}\text{Cf}(f,n)$

IV.4 – Procedimento de Medição de uma Fonte de Nêutrons no BSM do LN/LNMRI/IRD

O primeiro procedimento a ser realizado para medir a taxa de emissão de uma fonte de nêutrons no BSM do LN/LNMRI/IRD é colocá-la em seu sistema de imersão, que é constituído de um disco de alumínio, um fio de aço e um recipiente de acrílico. Este sistema de imersão tem dupla função: evitar o contato da fonte com a solução e posicioná-la até o centro do BSM. Cada modelo de fonte tem o seu próprio recipiente de acrílico. Então, se um novo modelo de fonte for padronizado, será necessário confeccionar um novo recipiente. Na Figura IV.9 é apresentada a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha, n)$ de 1850GBq inserida em seu recipiente de acrílico e suspensa pelo fio de aço.



Figura IV.9 – Fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha, n)$ de 1850GBq no sistema de imersão

Após colocar a fonte em seu sistema de imersão, esta é inserida no BSM e permanece mergulhada no Banho por um período entre 20 e 25 horas. Este longo período de irradiação é necessário para que atividade da solução se aproxime da saturação, isto é, quando a razão entre o número de átomos de ^{56}Mn que estão sendo produzidos e o número daqueles que estão decaindo é próxima da unidade. Ao fim do período de irradiação, a fonte é retirada do BSM e levada para casa de fontes. Então, a solução ativada é homogeneizada fisicamente por um misturador (Figura IV.3) durante um período de 6 minutos. Logo em seguida, o detector de NaI(Tl) é retirado do tanque de estabilização (TE) e inserido no BSM para que a contagem do decaimento do ^{56}Mn

seja medida. O tanque de estabilização é um recipiente com aproximadamente 50 litros de água destilada, sendo utilizado para proporcionar equilíbrio térmico entre o detector e a solução do BSM. Geralmente, as contagens de decaimento na solução são realizadas através de trinta medições, cada uma com período de contagem de 500 s e intervalo entre contagens de 1s. Depois de registradas, as contagens são convertidas para o nível de saturação utilizando a equação III.2. A taxa de emissão da fonte de nêutrons é enfim determinada aplicando-se o valor médio da contagem ao nível de saturação na equação III.7, juntamente com os respectivos valores das correções F (equação III.3) e K (equação III.4), e da eficiência do sistema de detecção (ϵ) (equação III.5).

IV.5 – A Eficiência do Sistema BSM do LN/LNMRI/IRD

O LN/LNMRI/IRD tem medido a eficiência do sistema BSM seguindo o procedimento descrito por SCHUCH (1978). Nele, a solução de MnSO_4 a ser padronizada é irradiada no reator Argonauta do IEN, distante 20 km do LN/LNMRI/IRD, onde alcança um valor de concentração de atividade de aproximadamente 700 Bq/mg e é utilizado o método de coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$ para padronizar a atividade da solução. O valor da eficiência do sistema BSM do LN/LNMRI/IRD é $5,7359 \times 10^{-4} (\pm 0,1\%)$.

IV.5.1 – Proposta de um Novo Sistema de Irradiação da Solução de Sulfato Manganês para Determinação da Eficiência do Sistema BSM do LN/LNMRI/IRD

O sistema de irradiação proposto deverá estar apoiado na utilização das fontes radioisotópicas de nêutrons do próprio LN/LNMRI/IRD, pois esse sistema deve viabilizar a execução completa do procedimento de obtenção da eficiência no próprio LNMRI, sem a necessidade de nenhum recurso externo ao IRD.

Para que esse novo sistema de irradiação, baseado em fontes radioisotópicas de nêutrons, seja uma alternativa ao uso do reator é necessário que ele produza uma concentração de atividade que possa ser adequadamente medida por algum sistema de padronização de radionuclídeos. Obviamente, a intensidade da concentração de atividade da solução produzida neste novo sistema será menor do que aquela gerada numa irradiação em um reator nuclear.

Uma abordagem inicial seria utilizar a solução do BSM irradiada por uma fonte de nêutrons. Entretanto, nesse caso surgem dois problemas: o primeiro é relativo a determinação da massa total do BSM, pois a eficiência é determinada a partir da razão entre a contagem do decaimento da massa de solução e sua atividade padronizada; o segundo problema refere-se ao valor da concentração de atividade alcançado pela solução. Por exemplo, quando consideradas as duas fontes mais intensas do LN/LNMRI/IRD, que são as fontes de $^{238}\text{PuBe}(\alpha, n)$ de 1850GBq e a de $^{252}\text{Cf}(f, n)$, obtém-se, respectivamente, a concentração de atividade da solução de 0,02Bq/mg e 0,06Bq/mg. Estes valores são muito baixos para serem medidos, com incerteza requerida, nos equipamentos utilizados pelo Laboratório de Radionuclídeos do LNMRI/IRD na padronização da concentração de atividade da solução. Então, segundo o exposto acima, não seria viável, nas condições atuais, utilizar o próprio BSM como sistema de irradiação da solução utilizada no procedimento de obtenção da eficiência.

A baixa concentração de atividade alcançada pela solução do BSM está, principalmente, limitada devido ao grande volume de solução (~520 L). Considerando a representação gráfica da interação dos nêutrons no BSM do LN/LNMRI/IRD, observa-se que esta ocorre, preferencialmente, nas vizinhanças da fonte (Figura IV.10). Sendo assim, um caminho para aumentar a concentração de atividade da solução seria reduzir o volume de solução irradiado.

Portanto, supondo que a irradiação de um pequeno volume de solução, em condições geométricas especiais, aumentaria a sua concentração de atividade, foram realizados estudos teóricos para caracterizar um sistema de irradiação, sustentado no uso de fontes radioisotópicas de nêutrons, e pequenos volumes de solução de sulfato de manganês. Além disso, foram realizadas medições para verificar se o aumento na concentração de atividade da solução com a redução do volume irradiado é suficiente para o seu uso efetivo na determinação da eficiência (ϵ).

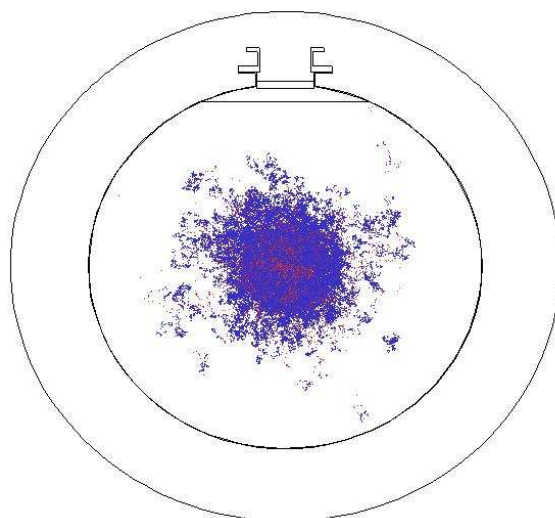


Figura IV.10 – Representação gráfica da região de interação do nêutron no sistema BSM do LN/LNMRI/IRD modelado no MCNP

IV.5.2 – Desenvolvimento do Sistema de Irradiação

As geometrias e características deste novo sistema de irradiação foram definidas a partir do cálculo, no código de transporte de radiação MCNP5, da captura específica de nêutrons pelo manganês (CENM) (átomos de $^{56}\text{Mn}/\text{cm}^3$), parâmetro que está relacionado com a concentração de atividade da solução de MnSO_4 . A geometria inicialmente considerada na simulação foi uma esfera de solução de MnSO_4 com uma fonte de nêutrons posicionada em seu centro geométrico (Figura IV.11). O meio externo à solução nesta primeira simulação foi o vácuo.

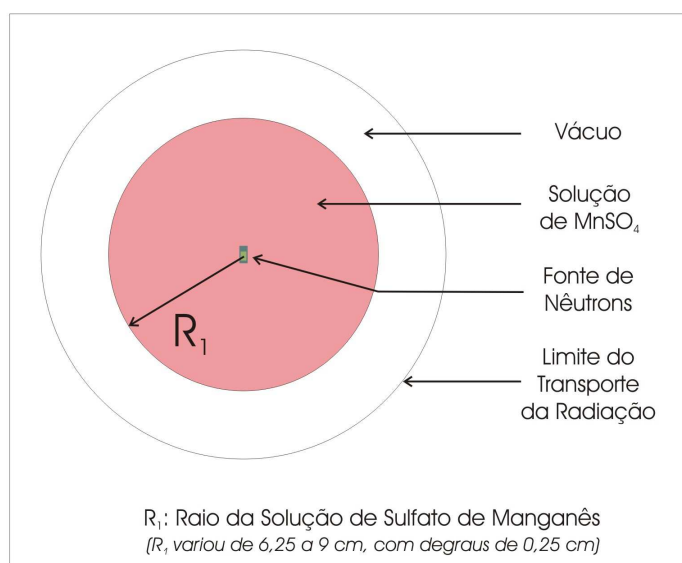


Figura IV.11 – Geometria utilizada para determinar o volume de solução para o máximo valor de CENM

Neste estudo inicial foram simulados diferentes volumes esféricos de solução de MnSO_4 , definidos por raios na faixa entre 6,25 e 9 cm, com degrau de 0,25cm entre eles. Este estudo foi realizado modelando-se fontes as de nêutrons de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ e $^{252}\text{Cf}(f,n)$.

A fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ simulada no mcnp foi do modelo 10S, fabricada pela *Frontier Technology Corporation*. Comparada com outras fontes radioisotópicas de nêutrons, fontes de califórnio utilizam pouquíssima quantidade de material radioativo, normalmente da ordem de dezenas a poucas centenas de microgramas. As dimensões da fonte de califórnio (FRONTIER, 2008) são apresentadas na Figura IV.12.

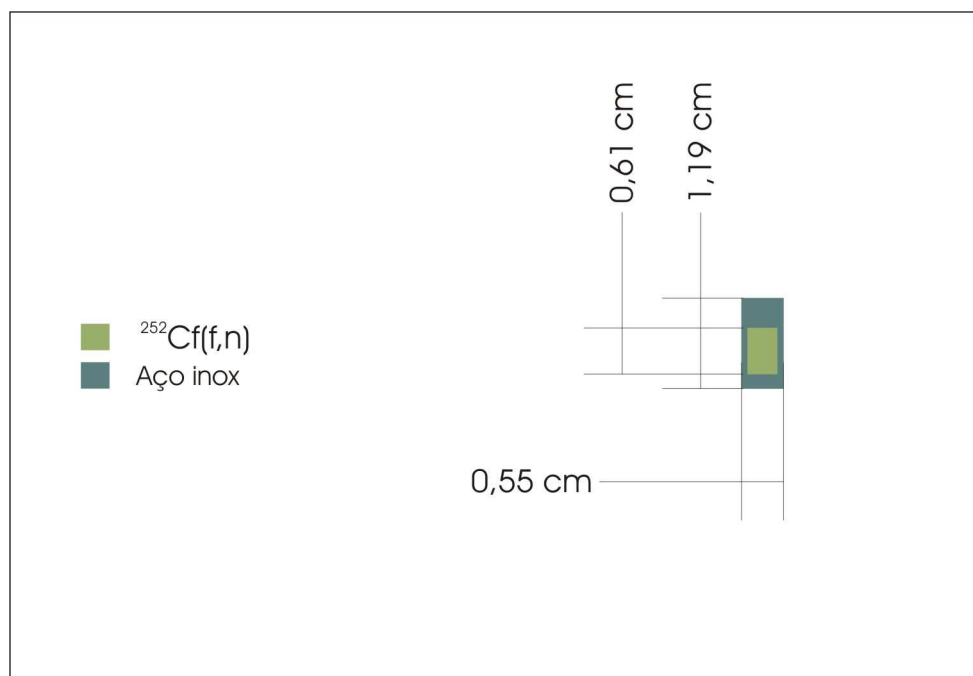


Figura IV.12 – Modelo da fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ simulada no MCNP

A fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ modelada foi a de 1850GBq, fabricada pela Monsanto. Na Figura IV.13 são apresentados as dimensões interna e externa da fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$. As dimensões internas desta fonte foram estimadas a partir de sua massa total, de seu tamanho externo, considerando a densidade do aço de $7,93\text{g/cm}^3$ e supondo que a densidade do material radioativo fosse semelhante a da fonte de $^{241}\text{AmBe}(\alpha,n)$. A composição química do material radioativo das fontes e do aço utilizado no encapsulamento são apresentadas, respectivamente, nas Tabelas IV.2 e IV.3.

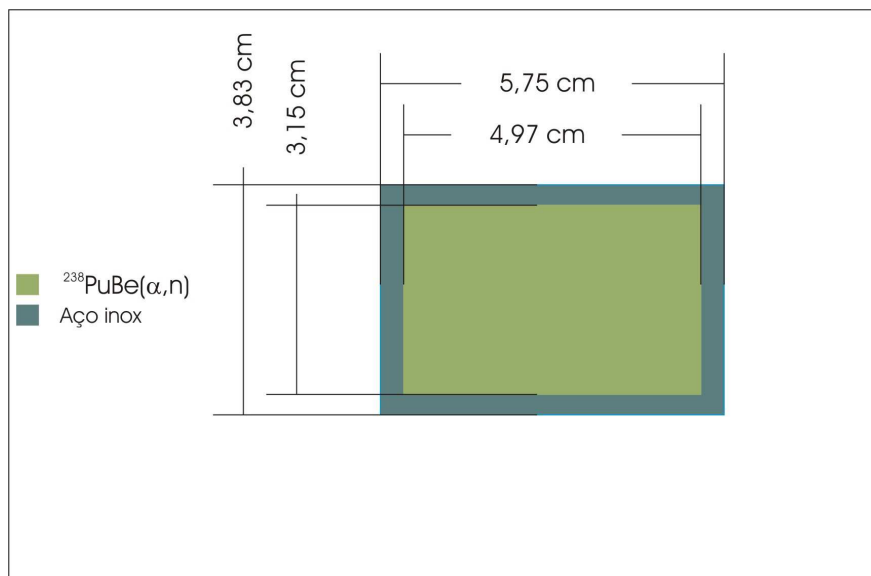


Figura IV.13 – Esquema da fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ simulada no MCNP

Tabela IV.2 – Composição química e densidade do material radioativo das fontes $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ e $^{252}\text{Cf}(f,n)$.

Fonte				d (g/cm ³) a
	Pu	Be	Cf	20°C
PuBe*	0,0387	0,961	-	1,249
Cf **	-	-	1	0,000134

* Em fração por peso; ** Em fração atômica

Tabela IV.3 – Composição química e densidade do aço inoxidável de grau 316L. (ROBERTS, 2001)

	<i>Si</i>	<i>P</i>	<i>S</i>	<i>C</i>	<i>Cr</i>	<i>Fe</i>	<i>Ni</i>	<i>Mn</i>	<i>Mo</i>
Fração por peso	0,01	0,00045	0,0003	0,0003	0,17	0,65395	0,12	0,02	0,025
d (g/cm ³) a 20°C	7,93								

Para determinar a CENM foi utilizado o registro tipo 4 (*Tally F4*) associado a um registro multiplicador (*Tally Multiplier Card*, FM) na simulação no MCNP. Isto se faz necessário porque o registro *F4* apenas determina a fluência média na célula estudada e não considera as reações de absorção do nêutron. Portanto, é necessário convertê-la para que se possa determinar a captura de nêutrons pelo manganês, realizada através reação de captura $^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$.

O registro *FM* faz a multiplicação entre uma constante (densidade atômica do material alvo da reação, em átomos/10⁻²⁴cm³), neste caso o manganês, a fluência determinada em *F4* (partículas/cm²) e a secção de choque microscópica da reação

selecionada (barn). O resultado final da combinação dos registros F4 e FM tem dimensão de nêutrons capturados pelo material ou reação por centímetro cúbico.

Após determinar o volume de solução no vácuo, que levou a máxima captura específica de nêutrons pelo manganês, foi iniciada uma série de simulações considerando este volume como ponto de partida para estudar o aumento desta captura quando a solução está imersa em um meio material. Para isso, foram utilizados como meio externo à solução o berílio, o grafite, a água, o acrílico, o cobre, a parafina, o polietileno, e o PVC. A densidade e a composição de cada um desses materiais é apresentada na Tabela IV.4. O objetivo é utilizar os nêutrons refletidos no meio externo à solução para aumentar a CENM. Já que a maioria dos nêutrons escapa da solução. As simulações considerando a solução imersa em um meio material, que foi denominado como meio refletor de nêutrons. Este estudo foi feito da seguinte forma: primeiramente, o conjunto fonte-solução foi simulado com meio externo de dimensão de 100 cm de raio e, em seguida, para os três materiais que levaram ao maior aumento da CENM, em relação à solução no vácuo, foram feitas simulações onde suas dimensões foram de 15, 20, 25, 30 e 35 cm de raio (Figura IV.14). Estas simulações variando a dimensão do refletor de nêutrons foram utilizadas para definir tanto o material refletor como sua dimensão, de modo a que ele produza a melhor resposta para a CENM utilizando menor volume de material.

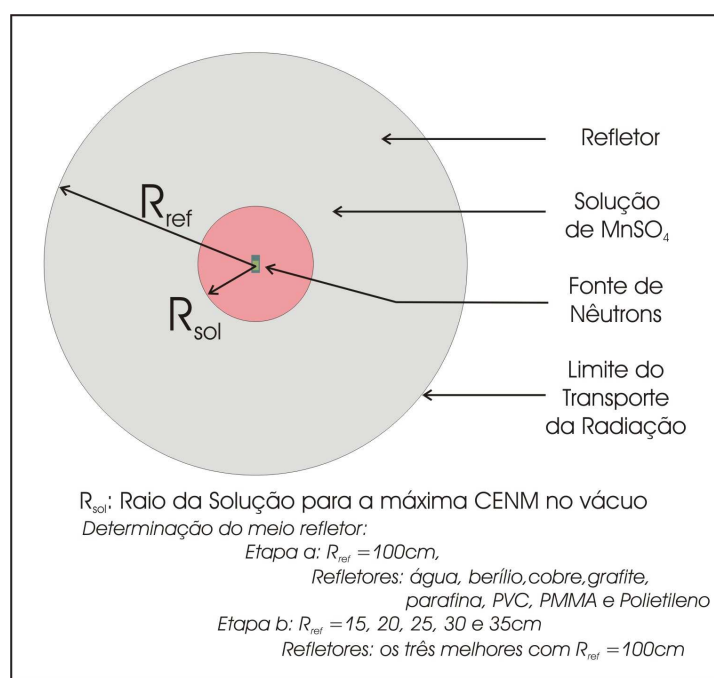


Figura IV.14 – Geometria utilizada para definir o meio refletor de nêutrons para a solução de MnSO_4

Definido o refletor de nêutrons e sua dimensão foram realizadas novas simulações considerando este refletor com diferentes volumes de solução. Este estudo foi realizado com o propósito de determinar o comportamento da CENM em função do volume de solução quando ela está em um meio refletor de nêutrons. Nestas simulações, além da geometria esférica, a solução e meio refletor foram modelados com geometria cúbica e cilíndrica.

Tabela IV.4 – Composição química dos materiais utilizados como refletores de nêutrons.

Material*	Be	C	Cl	Cu	O	H	d (g/cm ³) a 20°C
Água**	-	-	-	-	1	2	1
Berílio**	1	-	-	-	-	-	1,85
Cobre**	-	-	-	1	-	-	8,96
Grafite**	-	1	-	-	-	-	1,7
Parafina***	-	0,8514	-	-	-	0,1486	0,93
PVC***	-	0,3844	0,5673	-	-	0,0484	1,3
PMMA***	-	0,6	-	-	0,32	0,08	1,19
Polietileno***	-	0,856	-	-	-	0,144	0,94

*(TABLE OF NUCLIDES, 2008); ** Em fração atômica; *** Em Fração por peso

IV.5.2.1 – O Projeto do Sistema de Irradiação

Os resultados das simulações anteriores foram utilizados para propor o sistema de irradiação para a solução de MnSO_4 a ser utilizado em um procedimento de obtenção da eficiência do sistema BSM do LN/LNMRI/IRD. O sistema de irradiação que deve ser proposto deve ser caracterizado pela facilidade de operação e também pela segurança e rapidez na manipulação da fonte de nêutrons nele utilizada. É importante salientar que a solução de MnSO_4 nesse sistema deve ser protegida contra contaminações, pois caso isso ocorra, a solução irradiada poderá contaminar a solução do BSM. Deve-se também prevenir que a solução ativada extravase e contamine o ambiente de irradiação. Sendo assim, o recipiente que conterá a solução deverá estar hermeticamente fechado para evitar a contaminação tanto da solução como do ambiente de irradiação.

IV.5.3 – Determinação da Eficiência do Sistema BSM Utilizando o Arranjo de Irradiação de Teste (AIT)

Antes da construção do sistema proposto através das simulações realizadas no mcnp, a eficiência do sistema BSM do LN/LNMR/IRD foi determinada utilizando-se um sistema protótipo denominado de Arranjo de Irradiação de Teste (AIT). Esse protótipo foi utilizado para verificar experimentalmente o aumento da concentração de atividade da solução com a redução do seu volume irradiado e também para conhecer a dinâmica da obtenção da eficiência do BSM para o nível de atividade alcançado neste protótipo. Deste modo, a obtenção da eficiência com esse arranjo valida indiretamente o sistema de irradiação que será proposto. Foram realizadas quatro irradiações da solução de MnSO_4 com esse AIT, as quais foram nomeadas pelas letras (A), (B), (C) e (D). As irradiações (A) e (B) da solução foram realizadas utilizando-se o AIT de cavidade esférica de vidro com 9,75 cm de raio e 1 mm de espessura. Esta cavidade tem ainda uma abertura de 10 cm, por onde a fonte é inserida (Figura IV.15), sendo abastecida com aproximadamente 4L de solução. Nas ultimas irradiações, (C) e (D), aquele recipiente foi trocado por outra cavidade esférica de vidro com 7,5 cm de raio interno.



Figura IV.15 – O Arranjo de Irradiação de Teste (AIT) sem meio refletor

IV.5.3.1 – A Utilização do AIT

A primeira (A) foi realizada com três fontes de nêutrons e com a solução no recipiente de vidro sem o meio refletor. Já a segunda (B), terceira (C) e a quarta (D)

irradiações foram realizadas apenas com uma fonte nêutrons e utilizando um meio refletor.

As Irradiações foram dispostas da seguinte maneira:

A irradiação (A) foi realizada com uma fonte de $^{252}\text{Cf}(\text{f},\text{n})$ (com massa de 108,97 μg de ^{252}Cf), uma fonte de $^{241}\text{AmBe}(\alpha,\text{n})$ de 592 GBq e uma fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,\text{n})$ de 1850GBq. As taxas de emissão dessas fontes para a zero hora do dia 01/04/2009 são apresentadas na Tabela IV.5. A irradiação ocorreu em uma sala externa ao prédio do sistema BSM do LN/LNMRI/IRD. Isto foi necessário para minimizar a ativação do BSM pelos nêutrons que escapam do AIT durante o seu período de irradiação. No dia anterior à realização da padronização da atividade da solução, as fontes de $^{252}\text{Cf}(\text{f},\text{n})$ e de $^{241}\text{AmBe}(\alpha,\text{n})$ foram inseridas no AIT e sob ele foi colocada a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,\text{n})$. Após um período de aproximadamente de 20h as fontes foram retiradas e a solução do AIT homogeneizada por um misturador durante 3 minutos. Então, uma alíquota da solução do AIT foi retirada para ser padronizada no Laboratório de Radionuclídeos do LNMRI/IRD, e outro volume de solução foi retirado para ser vertido e contado no sistema BSM do LN/LNMRI/IRD. A razão entre a taxa de contagem da amostra inserida no BSM e o valor da atividade desta amostra, determinada a partir da concentração de atividade da solução padronizada no Laboratório de Radionuclídeos e, considerando a mesma hora de referência, permite determinar a eficiência do sistema BSM.

Tabela IV.5 - Valores da taxa de emissão das fontes de nêutrons utilizadas na irradiação do AIT

Fonte de Nêutrons	^{252}Cf (108,97 μg)	$^{241}\text{AmBe}$ (592 GBq)	$^{238}\text{PuBe}$ (1850 GBq)
Q(n/s) em 01/04/2009 à 0h	9,428x10 ⁶ ($\pm 2\%$)	3,978x10 ⁷ ($\pm 1,15\%$)	8,689x10 ⁷ ($\pm 1,14\%$)

Na irradiação (B) apenas foi utilizado a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,\text{n})$, agora imersa na solução, e o AIT no meio refletor. Este meio refletor foi uma adaptação da blindagem utilizada no LN/LNMRI/IRD para preparar para as medições as fontes de nêutrons que são padronizadas no sistema BSM do LN/LNMRI/IRD. Esta blindagem é tonel de aço com uma cavidade cilíndrica de PVC em seu interior, sendo o espaço entre a esta

cavidade e as paredes de aço do tonel preenchidas com parafina. Para funcionar como um refletor, aquela blindagem foi abastecida com água até a altura da abertura do recipiente de vidro que contém a solução (Figura IV.16). Depois de inserir a fonte nessa blindagem foi colocado em sua abertura um recipiente de acrílico (30cmx30cmx15cm) cheio de água. Após o período de irradiação foram seguidos os mesmos procedimentos realizados na irradiação (A)

A irradiação (C) seguiu o mesmo procedimento da irradiação (B), somente a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ foi substituída pela nova fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ (com massa de 120,7 μg de ^{252}Cf), adquirida no início de 2009 pelo LN/LNMRI/IRD. Essa fonte possuía taxa de emissão de $2,688 \times 10^8$ n/s ($\pm 2\%$) à zero hora do dia 01/04/2009.

A irradiação (D) também utilizou a nova fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$, no entanto o meio refletor foi trocado por um recipiente cúbico, com aresta interna de 28 cm, cheio de água até o topo do recipiente da solução. Após o período de irradiação foram seguidos os mesmos procedimentos realizados na irradiação (A).

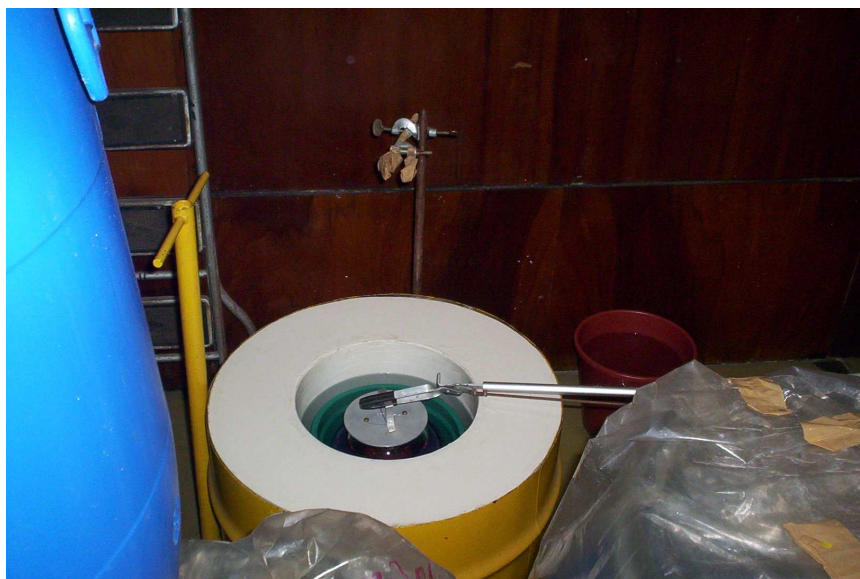


Figura IV.16 – AIT com meio refletor cilíndrico sem o recipiente de acrílico que fica posicionado na parte superior do sistema

IV.5.3.2 – Padronização da Concentração de Atividade da Solução de Sulfato de Manganês Irradiada no AIT

A padronização da concentração de atividade da solução de MnSO_4 foi realizada no Laboratório de Radionuclídeos do LNMRI/IRD, utilizando os métodos de cintilação líquida CIEMAT/NIST (irradiações A e B) e de anti-coincidência (irradiações C e D). O volume de solução utilizado nas padronizações foi retirado do AIT com o auxílio de um picnômetro e levado para o Laboratório de Radionuclídeos do LNMRI/IRD, aonde foram preparadas as amostras. Para ambos os métodos de cintilação foram preparadas amostras de 14 mL do cintilador líquido HiSafe III com aproximadamente 1 g de solução de MnSO_4 . Dos cintiladores líquidos disponíveis no Laboratório de radionuclídeos o HiSafe III é o que apresenta melhor estabilidade e tolerância à diluição aquosa (MEDEIROS *et al*, 2003).

IV.5.3.3 – Determinação da Taxa de Contagem Específica da Solução do AIT inserida no BSM

O procedimento adotado para a medição da taxa de contagem da solução proveniente do AIT foi semelhante ao realizado para medir a taxa de contagem da solução ativada pela fonte de nêutrons durante seu processo padronização. Assim, o procedimento iniciou-se com a estabilização do sistema eletrônico de contagem, acionando-o duas horas antes do início das contagens. Em seguida, a massa de solução a ser inserida no BSM foi medida utilizando-se a balança Metler, modelo H15, que tem resolução de 10^{-4} g. Depois de vertida a solução no Banho o misturador foi colocado sistema BSM, ficando ligado por um período de 6 min. Então, o misturador foi retirado e em seu lugar colocado o detector de NaI(Tl). O decaimento do manganês foi acompanhado a partir da janela definida para o gama de 846 keV do ^{56}Mn .

IV.5.3.4 – Simulação do Arranjo de Irradiação de Teste (SAIT)

Para possibilitar a validação indireta dos sistemas de irradiação propostos a configuração dos AIT utilizada nas irradiações (B) (fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$) e (C) (fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$) foram simuladas no mcnp (Figuras V.17 e V.18). O propósito dessa simulação é fazer a comparação do SAIT com o seu correspondente sistema de irradiação proposto.

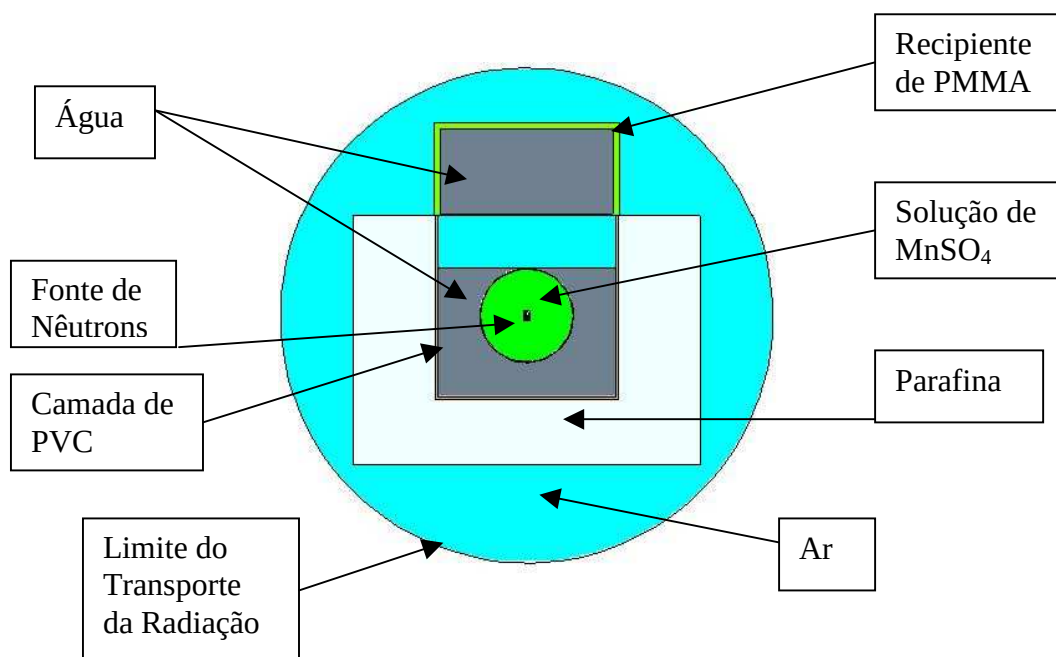


Figura IV.17 – Sait com meio refletor cilíndrico

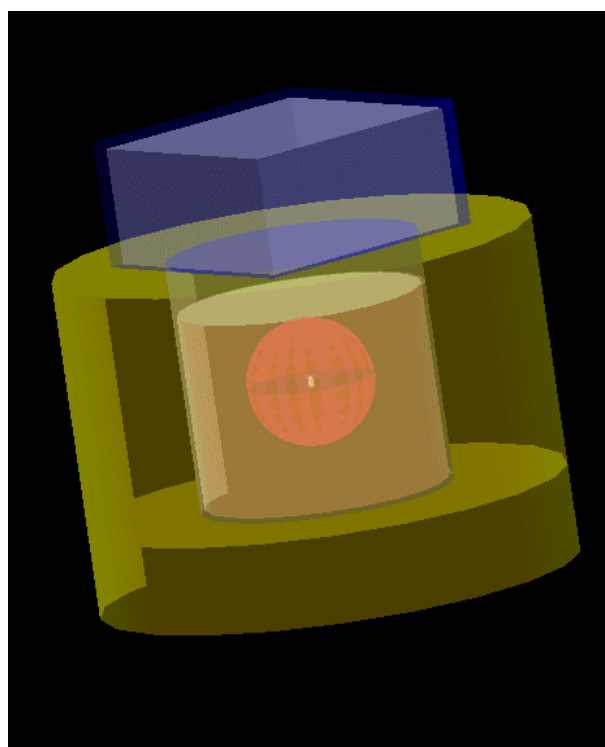


Figura V.18 - Visualização tridimensional do Sait com meio refletor irradiado pela fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ (Moritz®)

CAPÍTULO V

Resultados

V.1 – Estudo da Captura Específica de Nêutrons pelo Manganês (CENM) para a Solução de MnSO_4 Imersa no Vácuo

A Figura V.1 mostra a variação da captura específica de nêutrons pelo manganês (CENM) em função do raio da esfera de solução de MnSO_4 . Observou-se que o valor máximo para essa captura ocorreu para os raios de 7,25 e 7,5 cm, respectivamente, para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$. Comparando esses valores máximos com os seus respectivos valores adjacentes observou-se uma variação de até 0,19% para caso da fonte $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e de até 0,32% para a fonte $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$. Essas variações indicam que, para a solução no vácuo, os valores de máxima captura específica de ambas as fontes ocorrem numa mesma região de volume de solução de MnSO_4 . Deste modo, as simulações seguintes foram realizadas considerando apenas o raio de solução com 7,25 cm.

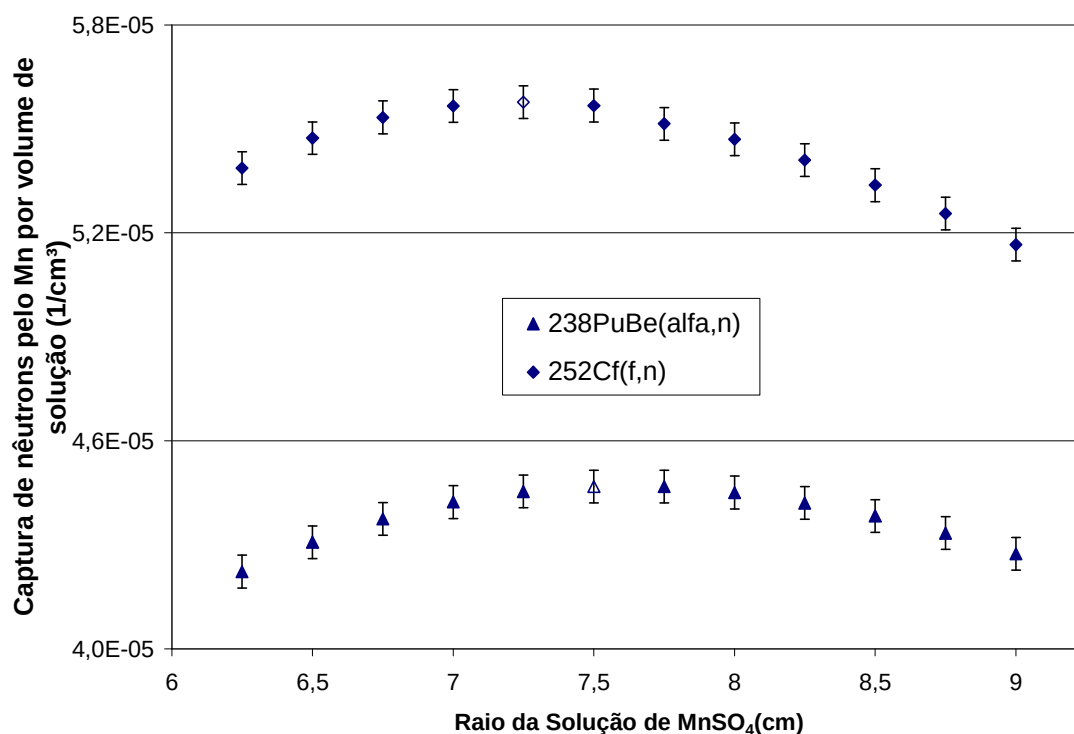


Figura V.1 – CENM em função do raio da esfera de solução de MnSO_4

Comparando-se as respostas de captura específica de nêutrons pelo manganês observou-se que a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ produziu 25% mais captura que a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$. Este comportamento deve estar relacionado com a energia média dos nêutrons emitidos pela fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$, menor que do $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$.

V.2 – Estudo da CENM para a Solução Imersa em Diferentes Meios Refletores de Nêutrons. Definição do Tipo e da Dimensão do Material Refletor de Nêutrons para a Solução

Prosseguindo no estudo para propor o sistema de irradiação e tendo definido o raio da solução na seção anterior este foi utilizado para modelar o volume da solução imerso em um meio material refletor de nêutrons. O propósito foi estudar o aumento da CENM devido ao espalhamento de nêutrons do meio externo para a solução. Esse estudo foi realizado modelando-se primeiramente o ambiente externo como uma esfera de 100 cm de raio, concêntrica à solução, que foi denominada, para efeitos práticos, como meio refletor infinito, utilizando cada um dos seguintes materiais: água, berílio, grafite, cobre, parafina, polietileno, PMMA e PVC. Os resultados deste estudo são apresentados, respectivamente, para as fontes $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ nas Figuras V.2 e V.3. Independentemente da fonte simulada, observou-se que os três materiais que levaram ao maior aumento da CENM em relação a solução no vácuo foram, em ordem crescente, a água, o grafite e o berílio. O aumento médio observado para a CENM, considerando em conjunto os resultados das duas fontes, foi em torno de duas vezes e meia para o berílio, aproximadamente duas vezes para o grafite e cerca de 1,9 vezes para a água.

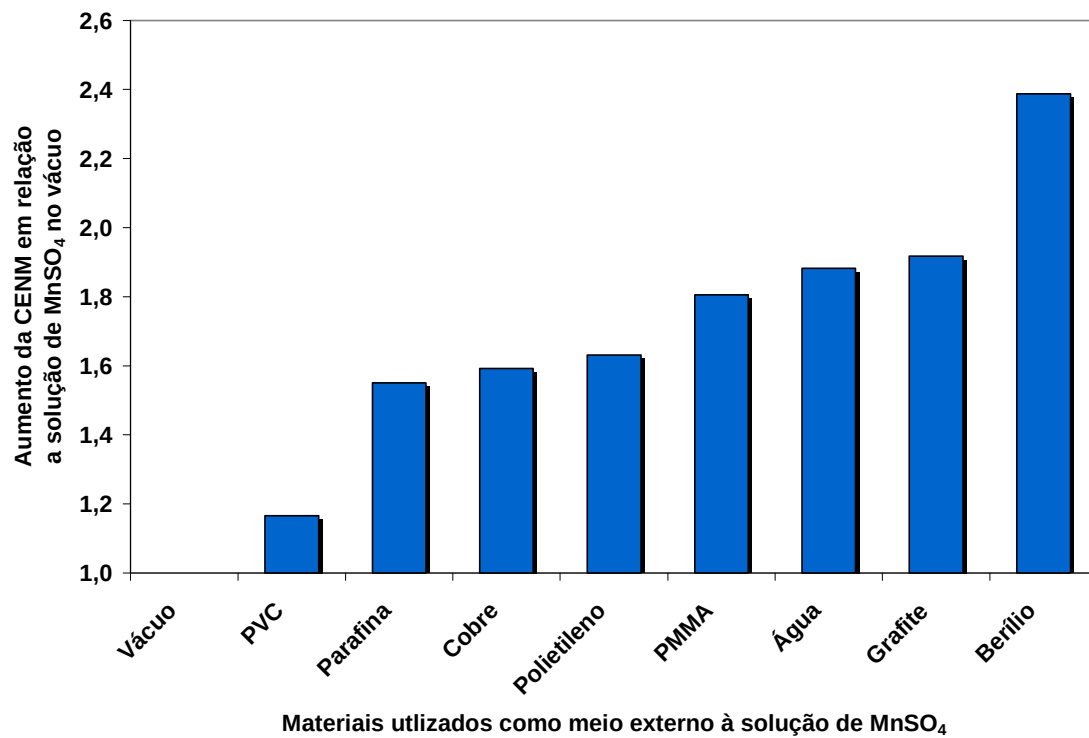


Figura V.2 – Aumento da CENM para a solução imersa em diferentes meios refletorres infinitos, fonte $^{252}\text{Cf}(\text{f},\text{n})$

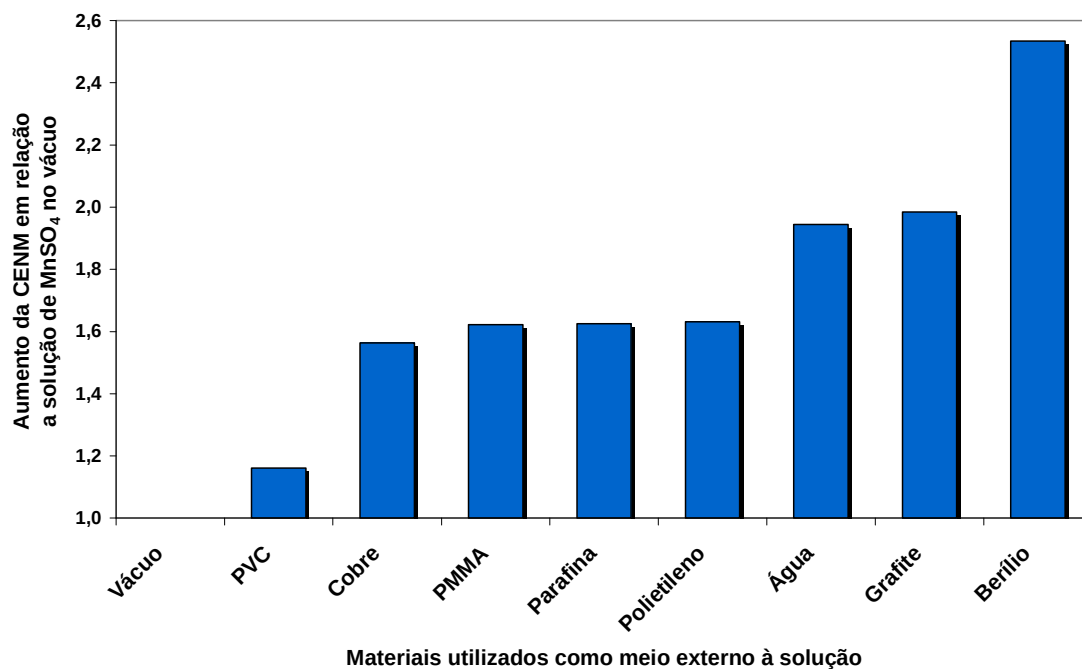


Figura V.3 – Aumento da CENM para a solução imersa em diferentes meios refletorres infinitos, fonte $^{238}\text{PuBe}(\alpha,\text{n})$

Após determinar os três materiais que levaram as melhores respostas para a CENM, foram realizadas novas simulações para determinar qual deles produz resposta para a CENM semelhante àquela alcançada com o meio refletor infinito, utilizando menor dimensão de material refletor. Assim, a CENM foi estudada considerando os seguintes raios de esfera para o meio externo à solução: 10, 15, 20, 25 e 30 cm. Os resultados desse estudo são apresentados nas Tabelas V.1 e V.2.

Tabela V.1 – Razão entre a CENM obtida para os raios de 10, 15, 20, 25 e 30 cm do meio refletor e o raio do meio refletor infinito($CENM_{\text{refletor}}/CENM_{\text{refletor infinito}}$) – Fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$.

Raio do Refletor (cm)	$CENM_{\text{refletor}}/CENM_{\text{refletor infinito}}$		
	Água	Grafite	Berílio
10	$8,59 \times 10^{-1}$	$6,54 \times 10^{-1}$	$6,23 \times 10^{-1}$
15	$9,89 \times 10^{-1}$	$7,74 \times 10^{-1}$	$8,00 \times 10^{-1}$
20	$9,99 \times 10^{-1}$	$8,40 \times 10^{-1}$	$8,86 \times 10^{-1}$
25	1,00	$8,83 \times 10^{-1}$	$9,32 \times 10^{-1}$
30	1,00	$9,12 \times 10^{-1}$	$9,59 \times 10^{-1}$

Tabela V.2 – Razão entre a CENM obtida para os raios de 10, 15, 20, 25 e 30 cm do meio refletor e o raio do meio refletor infinito($CENM_{\text{refletor}}/CENM_{\text{refletor infinito}}$) – Fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$.

Raio do Refletor (cm)	$CENM_{\text{refletor}}/CENM_{\text{refletor infinito}}$		
	Água	Grafite	Berílio
10	$8,32 \times 10^{-1}$	$6,27 \times 10^{-1}$	$5,81 \times 10^{-1}$
15	$9,85 \times 10^{-1}$	$7,52 \times 10^{-1}$	$7,71 \times 10^{-1}$
20	$9,99 \times 10^{-1}$	$8,21 \times 10^{-1}$	$8,68 \times 10^{-1}$
25	1,00	$8,67 \times 10^{-1}$	$9,21 \times 10^{-1}$
30	1,00	$8,99 \times 10^{-1}$	$9,51 \times 10^{-1}$

Observou-se que a resposta da captura obtida com o meio refletor infinito é alcançada com menor dimensão de material quando a água é utilizada. Com um raio de 20 cm de água é alcançado, para ambas as fontes modeladas, 99,9% da resposta obtida com o meio refletor infinito.

As Tabelas V.3 e V.4 apresentam, respectivamente, para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ o aumento da CENM, com relação a solução no vácuo, quando utilizados a água, o grafite e o berílio com raios de 10, 15, 20, 25, 30 e 100 cm . A escolha de um meio refletor para a solução não pode estar baseada apenas no material que produzirá

maior aumento na CENM. Esse meio deve ter boa reflexão de nêutrons utilizando pequeno volume de material, ser de fácil obtenção e operação. Quando a esfera de água é considerada com o raio de 15 cm obtém-se, para a fonte $^{252}\text{Cf}(f,n)$, 98,9% da resposta de captura do meio refletor infinito. Isto representa um aumento de 86% para a CENM com relação a solução no vácuo. Esse aumento é 25% maior do que aquele obtido com o grafite e apenas 2,7% menor que aquele alcançado usando o berílio, considerando ambos os refletores com 15 cm de raio. Como a água produziu resposta semelhante para a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ e por ser de fácil acesso, isto são indicações que a água com raio de 15 cm é o meio refletor mais adequado para a solução sulfato de manganês e conseqüentemente para o sistema de irradiação que será proposto.

Tabela V.3 – Aumento da CENM com relação a solução no vácuo para diferentes raios (10, 15, 20, 25, 30 e 100cm[Meio refletor infinito]) de água, grafite e berílio – Fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$.

Raio (cm)	Aumento da CENM com relação a solução no vácuo		
	Água	Grafite	Berílio
10	1,62	1,25	1,49
15	1,86	1,48	1,91
20	1,88	1,61	2,12
25	1,88	1,69	2,23
30	1,88	1,75	2,29
100	1,88	1,92	2,39

Tabela V.4 – Aumento da CENM com relação a solução no vácuo para diferentes raios (10, 15, 20, 25, 30 e 100cm[Meio refletor infinito]) de água, grafite e berílio – Fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$.

Raio (cm)	Aumento da CENM com relação a solução no vácuo		
	Água	Grafite	Berílio
10	1,62	1,24	1,47
15	1,92	1,49	1,95
20	1,94	1,63	2,20
25	1,94	1,72	2,33
30	1,94	1,78	2,41
100	1,94	1,98	2,53

V.3 – Estudo da CENM em Função do Volume de Solução Imerso em um Meio Refletor de Nêutrons

Neste último estudo, o refletor de nêutrons, definido na seção V.2, foi utilizado para determinar o comportamento da CENM com a redução do volume de solução irradiado. Sendo assim, caminhando na direção de um sistema de irradiação, somente a água foi modelada como meio externo a solução. Nessa simulação, para determinar a influência nos resultados devido ao formato tanto da solução como do meio refletor eles foram modelados com geometria esférica, cilíndrica e cúbica. A dimensão do refletor foi fixada em 15 cm de raio, altura e diâmetro de 30 cm e aresta de 30 cm, para a geometria esférica, cilíndrica e cúbica, respectivamente. A variação do volume da solução foi feita a partir do volume da esfera com raio de 7,25 cm (definido na seção V.1) até o menor volume que pudesse inscrever a fonte utilizando uma geometria esférica, cilíndrica, com diâmetro igual altura, e cúbica de mesmo volume. Como a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ tem pequena dimensão, a variação do volume de solução, foi maior que no caso da fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$. Assim sendo, enquanto o menor volume de solução modelado para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ foi de apenas 4 mL, no caso da fonte $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ este volume foi de 170 mL.

Para ambas as fontes foi observado que a CENM aumenta com a redução do volume da solução e que o tipo da geometria modelada tem pouca influência nos resultados, como pode ser notado nas Figuras V.4 e V.5. Com a redução de aproximadamente 1,5 L de solução (a partir do volume de solução definido pela esfera de 7,25 cm de raio), o aumento observado para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ foi de 79%, enquanto que para a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ esse aumento foi de 73%. Mesmo quando utilizado uma geometria cilíndrica com diâmetro diferente da altura, o que possibilitou reduzir o volume de solução para 16 mL, o aumento máximo observado para a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ foi de 93%. Para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ o aumento máximo observado foi de 170% em relação ao volume inicial de solução modelado no refletor.

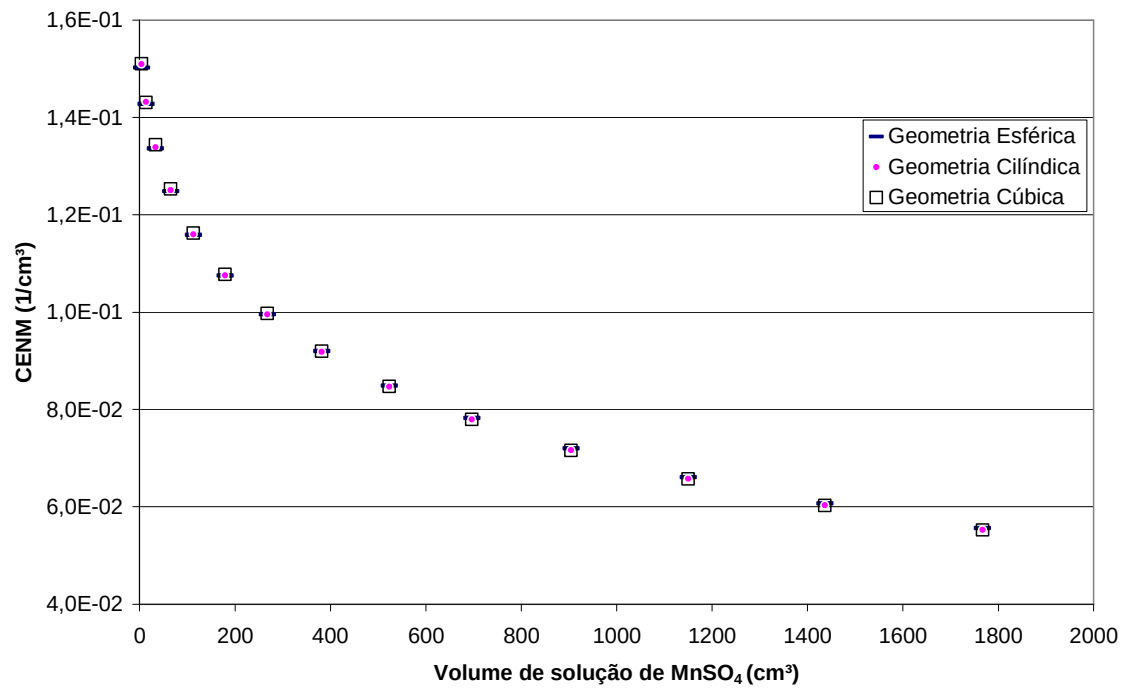


Figura V.4 – Variação da CENM em função do volume de solução imerso no meio refletor, $^{252}\text{Cf}(f,n)$

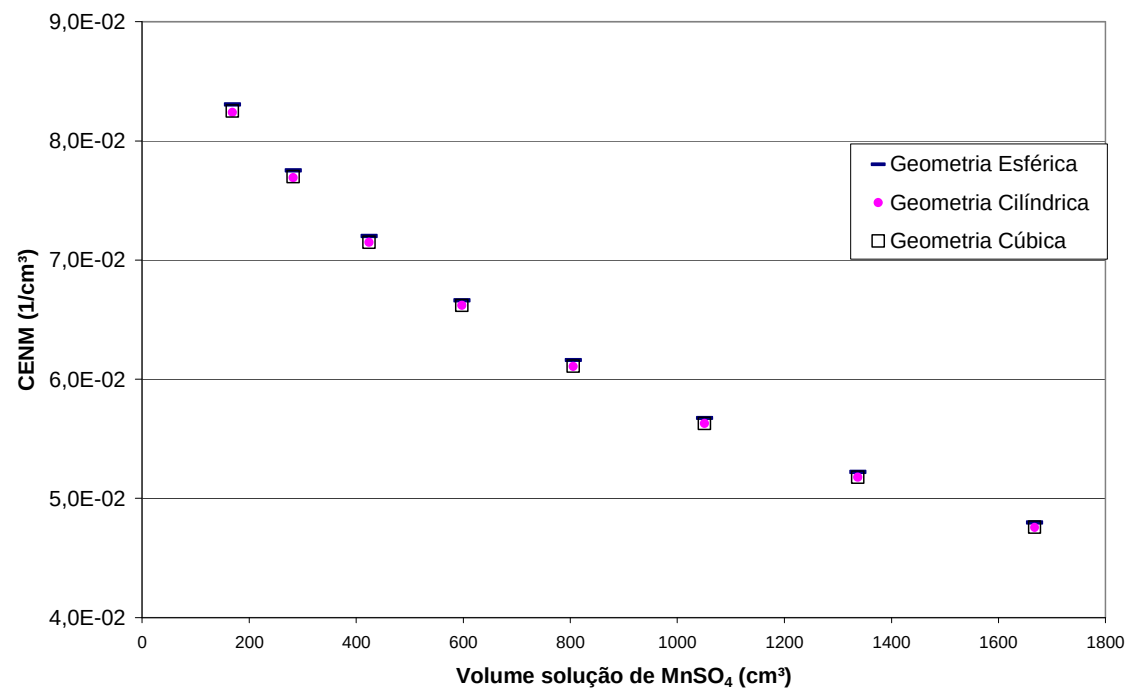


Figura V.5 – Variação da CENM em função do volume de solução imerso no meio refletor, $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$

V.4 – Projeto do Sistema de Irradiação Proposto (SIP)

A partir da modelagem no MCNP adotada para a solução e seu meio refletor tem-se que o sistema de irradiação será constituído por um recipiente com solução de MnSO_4 centrado em outro recipiente cheio de água. Para a fonte utilizada acessar o centro daquele recipiente, obedecendo aos requisitos anteriores, foi elaborado um canal de irradiação, para cada fonte estudada. Essas fontes entram em seu respectivo canal de irradiação dentro de seu próprio tubo de inserção. O material projetado para esses tubos foi o aço e o seu formato, para cada fonte estudada, é apresentado na Figura V.6.

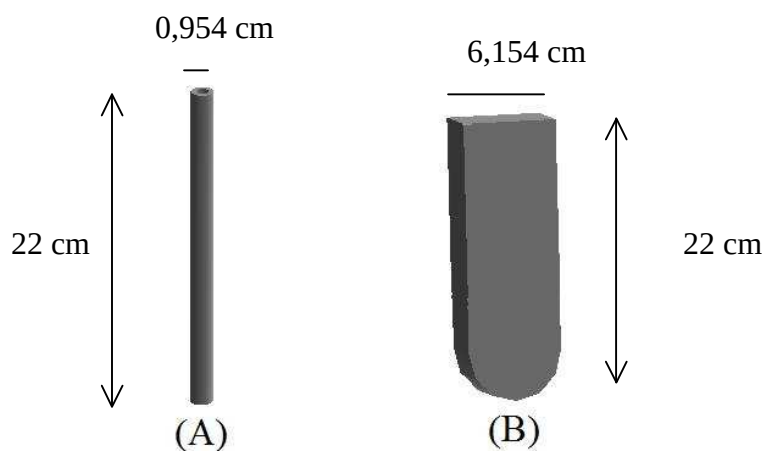


Figura V.6 – Representação gráfica dos tubos de inserção das fontes de $^{252}\text{Cf}(\text{f},\text{n})$, (A), e $^{238}\text{PuBe}(\alpha,\text{n})$, (B)

V.4.1 – Sistema de Irradiação Proposto para a Fonte de $^{252}\text{Cf}(\text{f},\text{n})$

O sistema de irradiação proposto para a fonte de $^{252}\text{Cf}(\text{f},\text{n})$ é apresentado na Figura V.7 e na Figura V.8 sua visualização tridimensional. O acrílico (PMMA) foi o material escolhido para construir os recipientes que contém a solução e a água (meio refletor de nêutrons), que tiveram, respectivamente, o formato cilíndrico e cúbico. Esse material também foi utilizado na construção do canal de irradiação. Para posicionar o recipiente da solução no centro do cubo de água, este recipiente foi acoplado ao canal de irradiação. E para facilitar o transporte e a retirada da solução irradiada o conjunto canal de irradiação e recipiente da solução foi projetado como uma peça livre, que se apóia no topo do cubo de água.

Como visto na seção V.3, quanto menor o volume de solução, quando imerso no meio refletor, maior será a CENM. Deste modo, para maximizar essa captura e evitar sobra da solução ativada no sistema de irradiação, o volume do recipiente da solução foi definido de forma que seu conteúdo fosse completamente utilizado no procedimento de eficiência do sistema BSM. Sendo assim, o cilindro do recipiente da solução foi projetado com diâmetro interno de 3,5 cm, o que equivale ao volume aproximado de 30 mL. As outras partes do sistema de irradiação foram projetadas com as seguintes dimensões: o recipiente de água, seguindo o que foi proposto pela simulação (seção V.2), foi projetado com aresta interna de 30 cm e 4 mm de espessura de parede de acrílico; o canal de irradiação também foi projetado com espessura de 4 mm, exceto sua espessura dentro do recipiente da solução que foi de 2 mm, e com altura e diâmetro internos de 18 cm e 9,6 mm, respectivamente; e o tubo de aço projetado com espessura de 2 mm e diâmetro interno de 5,54 mm. As espessuras do acrílico, especialmente, do conjunto canal de irradiação e recipiente de solução foram definidas para dar rigidez e resistência ao sistema de irradiação.

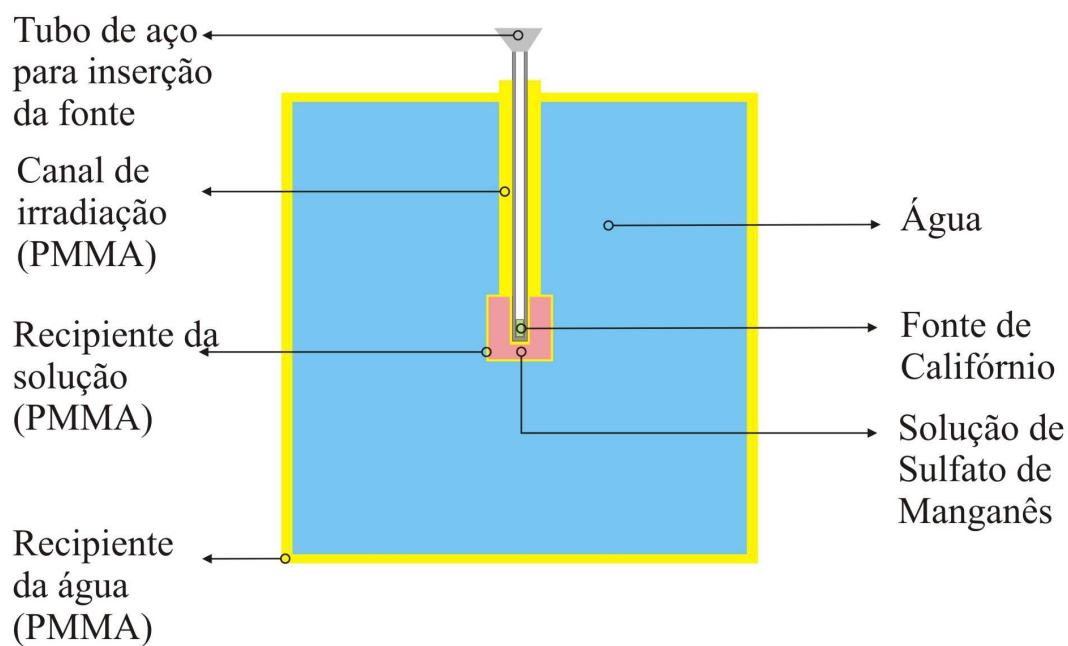


Figura V.7 – Sistema de irradiação proposto para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$

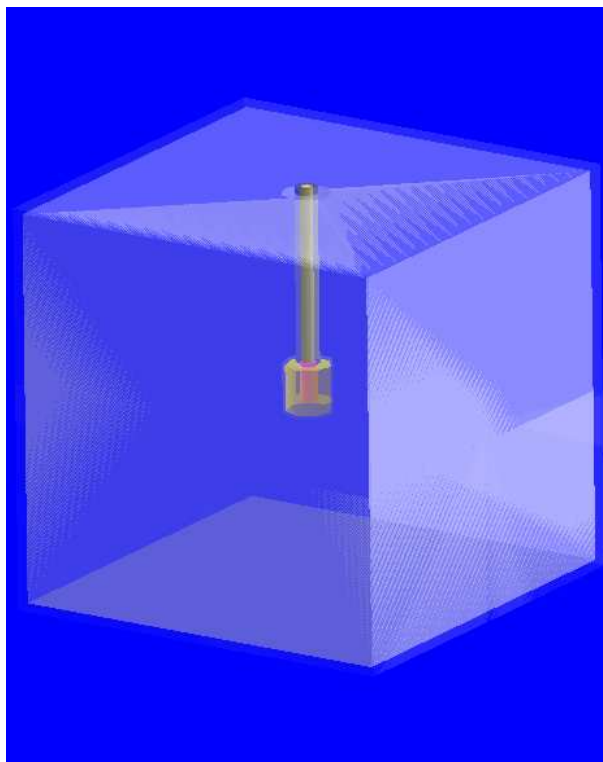


Figura V.8 - Visualização tridimensional do sistema de irradiação proposto para a fonte de $^{252}\text{Cf}(\text{f},\text{n})$ (Moritz®)²

V.4.2 – Sistema de Irradiação Proposto para a Fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,\text{n})$

O sistema de irradiação proposto para a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,\text{n})$ é apresentado na Figura V.9 e na Figura V.10 sua visualização tridimensional. Como para o caso da fonte de $^{252}\text{Cf}(\text{f},\text{n})$, o acrílico foi o material proposto para construir o recipiente da solução e do meio refletor de nêutrons. O canal de irradiação também foi acoplado ao recipiente da solução, formando uma peça livre que se apóia no topo do mesmo recipiente cúbico utilizado no projeto do sistema de irradiação da fonte anterior. Devido ao formato da fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,\text{n})$ não foi possível utilizar, em seu sistema de irradiação, um volume de solução tão pequeno como o utilizado no sistema de irradiação proposto para a fonte de $^{252}\text{Cf}(\text{f},\text{n})$. O volume de solução utilizado no sistema proposto para a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,\text{n})$ foi de aproximadamente 180 mL, utilizando um recipiente cilíndrico com diâmetro e altura externos de, respectivamente, 8 e 6,6 cm, com espessura de 2 mm. Como no caso da fonte de $^{252}\text{Cf}(\text{f},\text{n})$, o canal de irradiação foi projetado com espessura de 2 mm dentro do recipiente de solução e de 4 mm fora dele. Devido a largura do tubo

² <http://whiterockscience.com>

de inserção da fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ foi projetado para preenchê-lo uma peça de acrílico para realizar a reflexão dos nêutrons emitidos na direção deste tubo.

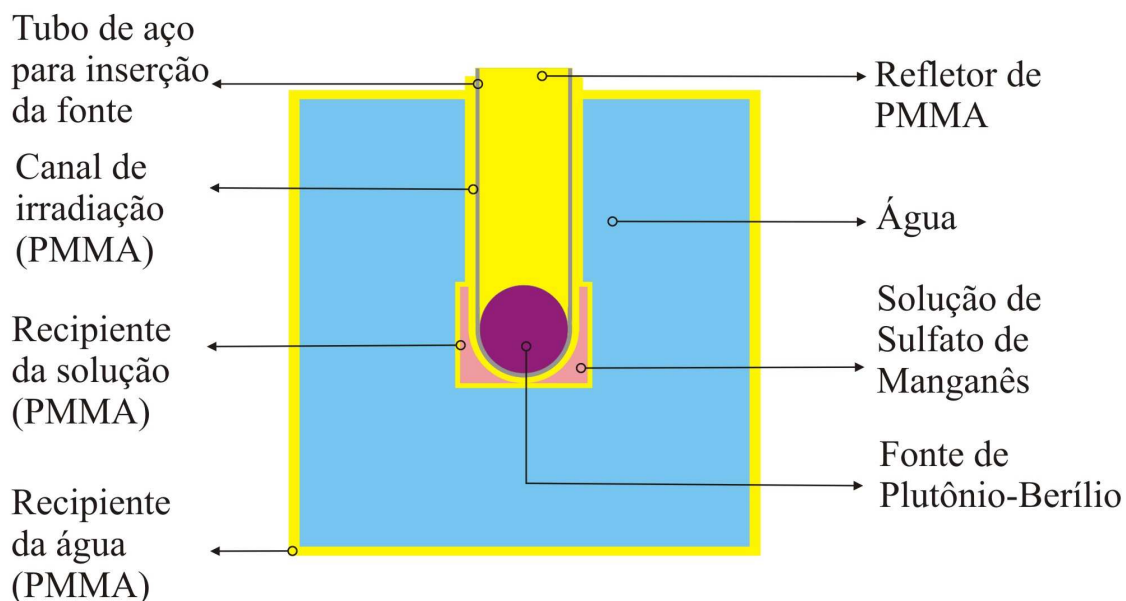


Figura V.9 – Sistema de irradiação proposto para a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$

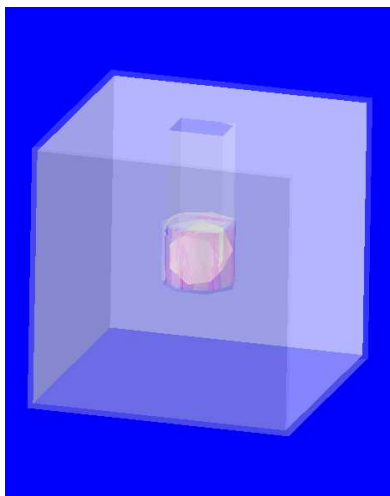


Figura V.10 - Visualização tridimensional do sistema de irradiação proposto para a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ (Moritz®)

Na figura V.11 é apresentado a estimativa da concentração de atividade da solução nas etapas dos estudos realizados no mcnp. Nessa figura, observa-se que a concentração de atividade parte de 10Bq e 2,8 Bq, para a solução no vácuo, e aumenta para 40Bq e 8,4Bq, nos sistemas de irradiação propostos, respectivamente, para as fontes de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$.

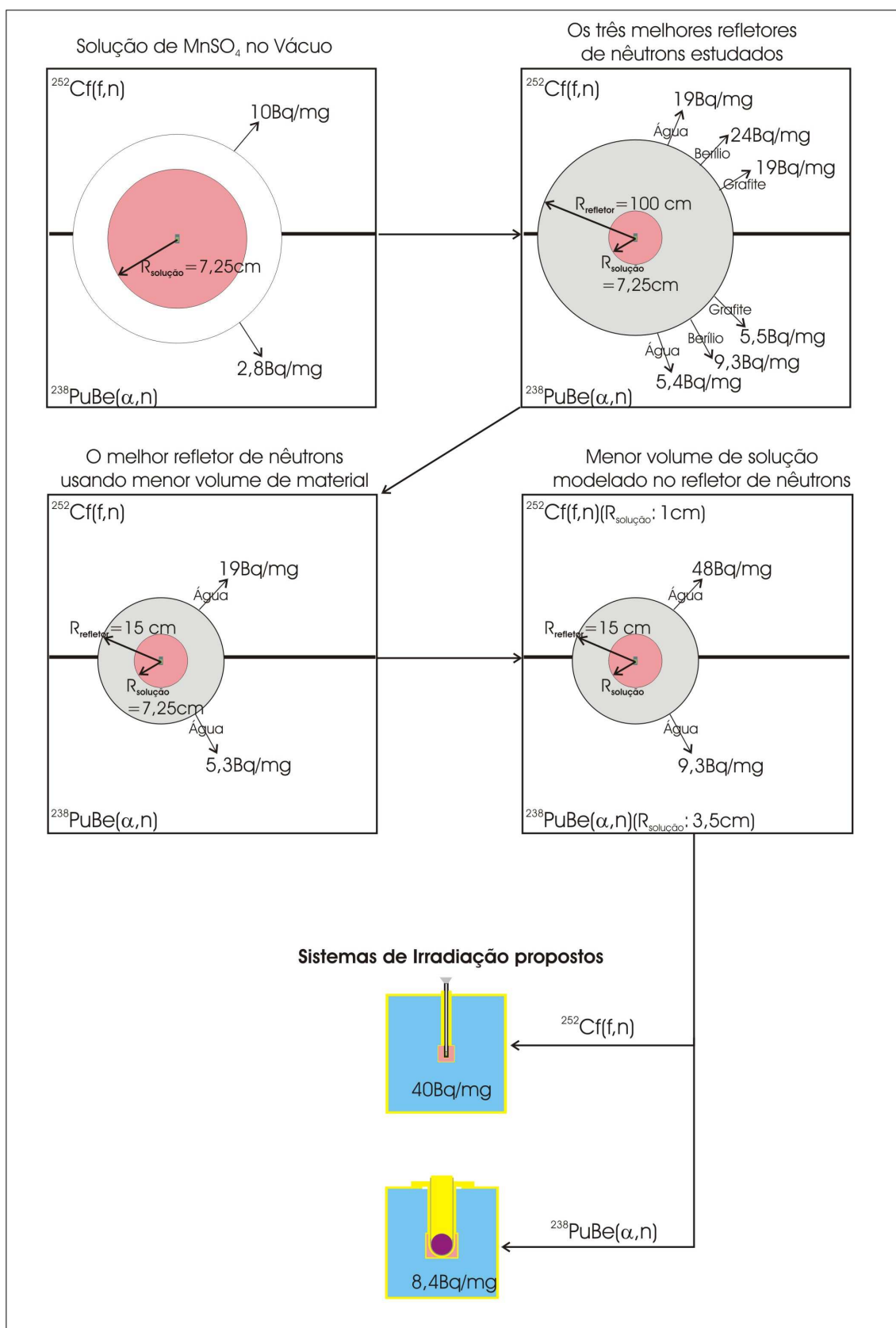


Figura V.11 – Esquema das concentrações de atividade obtidas em cada etapa estudada para propor os sistemas de irradiação para as fontes de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$

V.4.3 – Comparação entre os Sistemas de Irradiação Propostos

Na Tabela V.5, são apresentados os valores para a captura específica de nêutrons pelo manganês (CENM) alcançados nos sistemas de irradiação propostos para as fontes de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$. Nessa Tabela, observa-se que a CENM do sistema de irradiação da fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ é 1,63 vezes maior que do sistema proposto para fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$. A principal vantagem da fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ em relação a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ é a sua alta taxa de emissão. Por exemplo, a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ na data de 01/04/2009 tinha cerca 3 vezes a taxa de emissão da fonte $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$. Sendo assim, o sistema de irradiação proposto para a fonte de califórnio (considerando sua taxa de emissão em 01/04/2009) produzirá cerca de 4,7 vezes mais concentração de atividade que o sistema que usa a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$. Entretanto, a meia-vida da fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ é curta se comparada com a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$. Enquanto a meia-vida da primeira é de $2,645 \pm 0,003$ anos a última possui meia-vida de $87,74 \pm 0,03$ anos (LNHB, 2008). Considerando o valor de meia-vida da fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$, a razão entre as taxas de emissão das fontes e a razão $\text{SIP}_{^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)} / \text{SIP}_{^{252}\text{Cf}(f,n)}$ foi calculado o tempo no qual o uso do sistema usando a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$, considerando sua taxa de emissão em 01/04/2009, deixaria de ser vantajoso em relação ao sistema de irradiação que usa a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$. Esse período seria de aproximadamente de seis anos. Entretanto, se for estabelecido um valor mínimo inicial para a contagem específica da solução do Banho como sendo a metade da contagem específica produzida no BSM pelo padrão brasileiro de fluência de nêutrons, o período de utilização do SIP da fonte $^{252}\text{Cf}(f,n)$ cairia para aproximadamente três anos, considerando que 26 mL de solução são inseridos no BSM, pois 4 mL são utilizados na padronização da atividade. Naquele nível de inicial de contagem é possível realizar um conjunto de 30 contagens, com duração de 500 s cada, com incerteza estatística típica da rotina de padronização de uma fonte de nêutrons no BSM do LN/LNMRI/IRD. Apesar de não produzir concentração de atividade no nível do SIP da fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ o sistema de irradiação que utiliza a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ torna-se vantajoso por causa da longa meia-vida desta fonte. Assim os dois sistemas devem ser construídos sendo o SIP para a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ complementar ao SIP para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$. Na Tabela V.6 são apresentados os valores da concentração de atividade alcançados nos SIP para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e

$^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ considerando suas respectivas taxas de emissão às zero hora do dia 01/04/2009.

Tabela V.5 – Comparação entre a captura específica de nêutrons pelo manganês (CENM) obtida no sistema de irradiação proposto (SIP) para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e no sistema proposto para a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$.

	SIP $_{^{252}\text{Cf}(f,n)}$	SIP $_{^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)}$	SIP $_{^{252}\text{Cf}(f,n)}/\text{SIP}_{^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)}$
CENM (1/cm ³)	0,123851	0,075848	1,63

Tabela V.6 – Valores para a concentração de atividade da solução produzidas nos SIP para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ considerando suas respectivas taxas de emissão às zero hora do dia 01/04/2009.

	SIP $_{^{252}\text{Cf}(f,n)}$	SIP $_{^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)}$	SIP $_{^{252}\text{Cf}(f,n)}/\text{SIP}_{^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)}$
Bq/mg	40,0	8,4	4,7

V.5 – Determinação da Eficiência do Sistema BSM do LN/LNMRI/IRD Utilizando o Arranjo de Irradiação de Teste

Como descrito na seção IV.5.3 o arranjo de irradiação de teste (AIT) foi utilizado para verificar experimentalmente o aumento da concentração de atividade da solução com a redução do seu volume irradiado e sua aplicabilidade no procedimento de obtenção da eficiência do sistema BSM do LNMRI/IRD. As primeiras irradiações, (A) e (B), da solução foram realizadas utilizando um recipiente de vidro esférico com 9,75 cm de raio e 1 mm de espessura. Esta cavidade tem ainda uma abertura de 10 cm, por onde a fonte é inserida (Figura IV.15), sendo abastecida com aproximadamente 4 L de solução. Nas ultimas irradiações, (C) e (D), aquele recipiente foi trocado por uma esfera de vidro com 7,5 cm de raio, abastecido com aproximadamente 1,7 L de solução.

V.5.1 – Resultados da Irradiação (A)

A irradiação (A) foi realizada com uma fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$, uma fonte de $^{241}\text{AmBe}(\alpha,n)$ de 592 GBq e uma fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ de 1850GBq (Ver seção IV.5.3.1). Após o período de irradiação e misturar a solução do AIT, cerca de 4mL de solução foi retirado dele para que fosse preparada as amostras de cintilação líquida para a padronização da concentração de atividade da solução. O método utilizado nesta padronização foi o CIEMAT/NIST. Ao todo foram preparados três frascos de cintilação,

com aproximadamente 1 g de solução em cada um, utilizando 14 mL de solução cintiladora Hisafe III. O aspecto da mistura solução-cintilador foi de aparência turva (Figura V.12). Esta não é uma condição ideal de medição, pois é desejável que a mistura seja transparente. A aparência turva mostra que a solução não se diluiu completamente na solução cintiladora, podendo ocorrer decantação, o que mudaria a geometria de medição durante a realização das contagens.



Figura V.12 – Aparência do cintilador líquido Hisafe III com 1 g de solução de MnSO_4

Completando o procedimento de determinação da eficiência do sistema BSM do LN/LNMRI/IRD na irradiação (A), foi retirado ainda do AIT um volume de solução para ser medido no sistema BSM. A massa desse volume vertido no BSM foi de $180,3419 \pm 0,00032$ g. Esse volume de solução foi vertido no BSM, sendo disperso homogeneamente por meio de um misturador acionado durante seis minutos. Logo em seguida, foi retirado o misturador e inserido o detector de NaI(Tl) no Banho. O procedimento de contagem do decaimento da solução inserida no BSM foi o mesmo de uma padronização de fonte de nêutrons. Este procedimento foi realizado ao mesmo tempo em que a concentração de atividade da solução era padronizada pelo laboratório de radionuclídeos. Na Tabela V.6, são apresentados o valor da concentração de atividade da solução de MnSO_4 padronizada pelo método CIEMAT/NIST; a contagem específica do decaimento da solução inserida no BSM, (ambas considerando a mesma data de referência, definida pelo Laboratório de Radionuclídeos do LNMRI/IRD); e a eficiência do sistema BSM do LN/LNMRI/IRD, que foi calculada através da razão entre a contagem específica da solução inserida no BSM e a concentração de atividade padronizada pelo método CIEMAT/NIST.

Tabela V.6 – Resultados da irradiação (A).

Atividade média da solução de MnSO ₄ medida pelo método CIEMAT/NIST (Bq)	Contagem média da solução de MnSO ₄ inserida no sistema BSM (cps)	Eficiência do Sistema BSM do LN/LNMRI/IRD
1,36x10 ⁵ (±1,7%)	7,8066x10 ¹ (±0,14%)	5,74x10 ⁻⁴ (±1,7%)

V.5.2 – Resultados da Irradiação (B)

Na irradiação B, foi utilizada apenas a fonte de ²³⁸PuBe(α,n) e com o AIT dentro de um recipiente cilíndrico, com paredes de parafina revestidas com PVC. Esse recipiente foi cheio de água e funcionou como meio refletor para o AIT. A concentração de atividade da solução do AIT foi também padronizada pelo método CIEMAT/NIST seguindo o mesmo procedimento da irradiação (A). A massa de solução retirada do AIT para ser contada no BSM foi de 276,7964±0,00043 g. Os resultados para a concentração de atividade, contagem específica e eficiência, determinados na irradiação (B), são apresentados na Tabela V.7. Nessa Tabela, observa-se a que incerteza ficou aproximadamente três vezes maior que na irradiação anterior. Isso pode indicar que a solução de MnSO₄ não foi diluída homogeneamente em algum dos três frascos de cintilação, configurando geometrias diferentes de medição. Com relação a concentração de atividade da solução, na irradiação (B) este valor foi quase o dobro que a obtida na irradiação (A).

Tabela V.7 – Resultados da irradiação (B).

Atividade média da solução de MnSO ₄ medida pelo método CIEMAT/NIST (Bq)	Contagem média da solução de MnSO ₄ inserida no sistema BSM (cps)	Eficiência do Sistema BSM do LN/LNMRI/IRD
4,15x10 ⁵ (±4,7%)	2,3644x10 ² (±0,11%)	5,69 x10 ⁻⁴ (±4,7%)

V.5.3 – Resultados da Irradiação (C)

A irradiação C foi realizada utilizando apenas a fonte de ²⁵²Cf(f,n). Essa não foi a fonte utilizada nas irradiações (A), mas a que foi adquirida no início de 2009, que possuía em 01/04/2009 taxa de emissão de 2,688x10⁸ n/s (±2%). Como na irradiação (B), o AIT foi colocado dentro da blindagem utilizada para inserir as fontes no sistema

de imersão do BSM. A padronização da concentração de atividade da solução do AIT foi realizada pelo sistema de anti-coincidência. Este método também está baseado em cintilação líquida, mas diferentemente do CIEMAT/NIST não necessita de um padrão e do cálculo da eficiência teórica, além de ser um método primário. Este método foi estabelecido recentemente no Laboratório de Radionuclídeos (DA SILVA, 2008). Como nas irradiações anteriores, as medições foram realizadas utilizando três frascos com 14 mL de cintilador Hisafe III com um grama de solução de MnSO_4 em cada. A massa de solução do AIT inserida no BSM foi de $103,7742 \pm 0,00016$ g e sua contagem no BSM foi realizada conforme o procedimento realizado nas irradiações anteriores. Observa-se na Tabela V.8 que, em relação às irradiações anteriores, houve um aumento significativo na concentração de atividade da solução de MnSO_4 , claramente produzido por ser a taxa de emissão da fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ maior que da fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ e redução no valor da incerteza avaliada para a concentração de atividade da solução, o que conseqüentemente reduziu a incerteza no valor da eficiência.

Tabela V.8 – Resultados da irradiação (C)

Atividade média da solução de MnSO_4 medida pelo sistema de anti-coincidência (Bq)	Contagem média da solução de MnSO_4 inserida no sistema BSM (cps)	Eficiência do Sistema BSM do LN/LNMRI/IRD
$7,713 \times 10^5 (\pm 0,36\%)$	$4,4632 \times 10^2 (\pm 0,20\%)$	$5,787 \times 10^{-4} (\pm 0,40\%)$

V.5.4 – Resultados da Irradiação (D)

Na irradiação (D), como na irradiação anterior, utilizou somente a nova fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$. Entretanto, a blindagem utilizada nas irradiações anteriores como meio refletor foi substituída por um cubo de acrílico com aresta interna de 28 cm. A massa de solução do AIT inserida no BSM na irradiação (D) foi de $111,6967 \pm 0,00016$ g. Como na irradiação (C), as incertezas avaliadas para a concentração de atividade nas irradiações (D) abaixo de 0,5% (Tabela V.9). Observa-se que a concentração de atividade na irradiação (D) foi menor que na irradiação (C), isto está relacionado com o aumento do tempo entre a retirada da fonte do AIT e o início da padronização da atividade e também com a dificuldade de posicionamento da fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ no centro da solução do AIT.

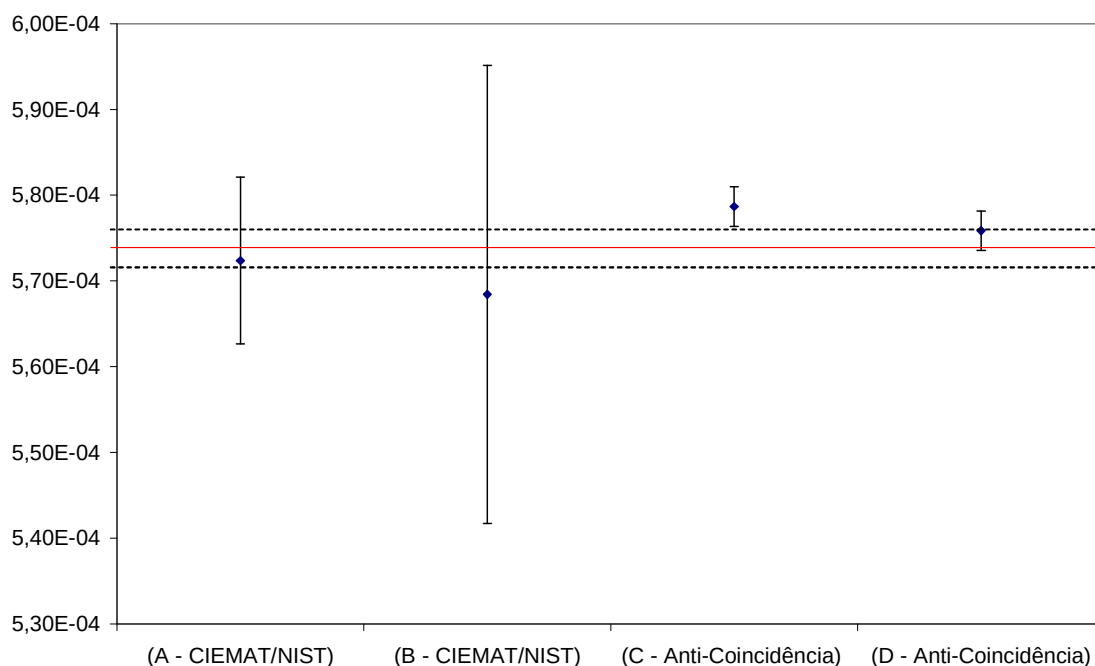
Tabela V.9 – Resultados da irradiação (D).

Atividade média da solução de MnSO_4 medida pelo sistema de anti-coincidência (Bq)	Contagem média da solução de MnSO_4 inserida no sistema BSM (cps)	Eficiência do Sistema BSM do LN/LNMRI/IRD
$4,566 \times 10^5 (\pm 0,36\%)$	$2,6296 \times 10^2 (\pm 0,16\%)$	$5,759 \times 10^{-4} (\pm 0,40\%)$

Na Tabela V.10 são apresentados o valor médio e o desvio padrão da média para os valores de eficiência do BSM determinados nas irradiações (A), (B), (C) e (D). Esses valores são apresentados graficamente na Figura V.13, onde se observa claramente a diferença entre os valores das incertezas dos métodos CIEMAT/NIST e anti-coincidência. A pequena incerteza avaliada para a concentração de atividade nas irradiações (C) e (D) pode estar relacionada com o aumento na concentração de atividade da solução.

Tabela V.10 – Eficiência do BSM do LN/LNMRI/IRD considerando as todas as irradiações.

Eficiência média do Sistema BSM do LN/LNMRI/IRD	Desvio padrão da média (%)
$5,738 \times 10^{-4}$	0,40

**Figura V.13** – Eficiências do sistema BSM do LN/LNMRI/IRD obtidas nas irradiações (A) e (B), realizadas com o método CIEMAT/NIST, e nas irradiações (C) e (D), realizadas com o método de anti-coincidência

V.6 – Comparação entre os Sistemas de Irradiação Propostos e a Simulação do AIT

As respostas para a CENM obtidas nas simulações dos arranjos de irradiação utilizados foram comparadas com as respostas obtidas com os correspondentes sistemas de irradiação propostos para a fonte de plutônio-berílio, Tabela V.12, e califórnio, Tabela V.13.

Tabela V.12 – Comparação entre a captura específica de nêutrons pelo manganês (CENM) obtida no sistema de irradiação proposto (SIP) para a fonte de $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ e na simulação do arranjo de irradiação de teste (SAIT) utilizado na irradiação (B).

	$\text{SIP}_{^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)}$	$\text{SAIT}_{\text{irradiação (B)}}$	$\text{SIP}_{^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)} / \text{SAIT}_{\text{irradiação (B)}}$
CENM ($1/\text{cm}^3$)	0,0758	0,0305	2,48

Tabela V.13 – Comparação entre a captura específica de nêutrons pelo manganês (CENM) obtida no sistema de irradiação proposto (SIP) para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e na simulação do arranjo de irradiação de teste (AIT) utilizado na irradiação (C).

	$\text{SIP}_{^{252}\text{Cf}(f,n)}$	$\text{SAIT}_{\text{irradiação (C)}}$	$\text{SIP}_{^{252}\text{Cf}(f,n)} / \text{SAIT}_{\text{irradiação (C)}}$
CENM ($1/\text{cm}^3$)	0,1238	0,05168	2,39

Observa-se que o sistema proposto para a fonte de plutônio-berílio produz resposta para a captura específica de nêutrons pelo manganês 2,48 vezes maior que aquela produzida pelo sistema utilizado na irradiação (B). Na Tabela, V.13 observa-se um comportamento semelhante na comparação entre $\text{SIP}_{^{252}\text{Cf}(f,n)}$ e simulação do $\text{AIT}_{\text{irradiação (C)}}$. Considerando que os AIT possibilitaram a realização do procedimento de eficiência, e que as respostas dos SIP foram melhores do que as obtidas nas simulações dos AIT, sendo assim, isto sugere que os SIP também poderão ser empregados no procedimento de obtenção da eficiência do sistema BSM do LN/LNMRI/IRD.

CAPÍTULO VI

Conclusões

VI.1 – Aspectos Gerais do Trabalho

Os recursos utilizados para a realização deste trabalho foram disponibilizados pelo Laboratório de Nêutrons (LN) e pelo Laboratório Radionuclídeos (LR), ambos pertencentes ao Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI/IRD), e também pelo Laboratório de Neutronografia em Tempo Real (LNRTR) da COPPE/UFRJ e pelo setor de engenharia mecânica do IRD. Para realizar o estudo de caracterização dos sistemas de irradiação propostos, o LN disponibilizou um sistema de computação de alto desempenho composto de 25 máquinas operando em processamento paralelo. Para a realização do procedimento de obtenção da eficiência o LR disponibilizou o seu serviço de preparação e padronização de fontes radioativas e o LN forneceu a solução de MnSO_4 utilizada nas irradiações e disponibilizou o seu sistema BSM.

Este trabalho utilizou a evidência, encontrada na modelagem do sistema BSM do LN/LNMRI/IRD no MCNP, na qual a captura de nêutrons pelo manganês na solução do BSM ocorre próximo da fonte de nêutrons, e isto serviu de base a conjectura de que a irradiação de um pequeno volume de solução, por uma fonte de nêutrons em seu interior, produzirá um valor de concentração de atividade suficiente para ser utilizado na obtenção da eficiência do sistema de detecção do BSM. Portanto, a partir dessa conjectura duas abordagens (teórica e experimental) foram utilizadas com um objetivo duplo: Prova e proposta de um sistema alternativo de irradiação voltado para a determinação da eficiência do BSM. A evidência e os primeiros estudos simulados levaram construção preliminar do arranjo experimental de teste (AIT) cujos resultados fortaleceram a hipótese assumida e demonstraram a operacionalidade da determinação da eficiência utilizando os métodos CIEMAT/NIST ou anti-coincidência. Entretanto, estudos mais profundos devem ser implementados para melhores conclusões quanto a incerteza obtida com o método CIEMAT/NIST que foi cerca de treze vezes maior que a obtida com o método de anti-coincidência. Pode-se sugerir que o alto valor da incerteza obtida no método CIEMAT/NIST está fortemente relacionado com a homogeneidade da

mistura solução-cintilador, já que esta mistura se mostrou turva durante as medições. Isso pode ser explicado pelo fato do sistema de detecção desse método utilizar apenas a cintilação líquida, enquanto o sistema de detecção do método de anti-coincidência utiliza, além da cintilação líquida, um detector de NaI(Tl) para medir a radiação gama.

Enquanto os testes eram feitos com o AIT, novos estudos simulados indicaram um caminho para a redução ainda maior do volume de solução irradiado, porém mantendo-se as características do material refletor. Assim surgiu um modelo otimizado e mais operacional que o AIT, O sistema de irradiação proposto (SIP) que aumentou a atividade específica em cerca de duas vezes e meia e reduziu, drasticamente, o volume de solução manuseado de 1,77 L para 26 mL, no caso de uso da fonte de ^{252}Cf , e de 1,65 L para 180 mL, no caso de uso da fonte de $^{238}\text{PuBe}$. A conjectura se mostrou verdadeira e, portanto, o SIP torna-se indicado para a determinação da eficiência no BSM. Esse sistema tem o potencial operacional de aplicação em qualquer sistema BSM ao redor do mundo, desde que este possua fontes de nêutrons tais quais as descritas neste trabalho e possa utilizar o método de anti-coincidência ou qualquer outro método que permita a padronização adequada da atividade da solução produzida no SIP.

VI.2 – Estudo de Caracterização dos Sistemas de Irradiação

VI.2.1 - Estudo da captura específica de nêutrons pelo manganês (CENM) para a solução de MnSO_4 imersa no vácuo.

O valor máximo da CENM ocorre para um raio médio de 7,4 cm para as fontes de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$, quando considerado o volume esférico de solução no vácuo. Este resultado foi útil na escolha do raio para o recipiente do AIT (7,5 cm).

VI.2.2 - Estudo da captura específica de nêutrons pelo manganês para a solução imersa em diferentes meios. Definição do tipo e da dimensão do material refletor de nêutrons para a solução.

A água, o berílio e o grafite foram os três materiais que produziram os maiores aumentos na CENM com relação ao volume de solução na ausência de um meio refletor. O acréscimo na resposta da CENM foi em média 1,9 vezes para a água, duas vezes para o grafite e de duas vezes e meia para o berílio. Entretanto a água é o meio

refletor que alcança CENM semelhante à obtida com o meio refletor infinito utilizando menor volume de material. Com a esfera de água com 15 cm de raio alcança-se, respectivamente, para as fontes de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$, 98,9 % e 98,5% da CENM obtida com o meio refletor infinito. Com essa dimensão, a água produz CENM 25% maior que a obtida com o grafite e apenas 2,7% menor que a obtida com o berílio, considerando estes refletores com raio de 15 cm. Como a água é um material de fácil acesso e manipulação, este material foi escolhido como meio refletor para o AIT e para o SIP.

VI.2.3 - Estudo da captura específica de nêutrons pelo manganês (CENM) em função do volume de solução imerso em um meio refletor de nêutrons

Um dos fatos mais interessantes neste trabalho foi poder reduzir ainda mais o volume de solução na presença de um meio refletor e ainda assim aumentar a concentração de atividade da amostra. Este fato permite conjecturar que em um meio refletor de nêutrons, a CENM cresce com a redução do volume de solução a partir do ponto de máximo volume no vácuo. Isto viabilizou o projeto do sistema de irradiação com volume de solução que pode ser completamente utilizado em um procedimento de obtenção de eficiência.

VI.3 – Proposta dos Sistemas de Irradiação para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$

Os sistemas propostos para a fonte de $^{252}\text{Cf}(f,n)$ e $^{238}\text{PuBe}(\alpha,n)$ produzem concentração de atividade 219 e 146 vezes maior que a alcançada no sistema BSM do LNMRI/IRD, que correspondem a 40 Bq/mg e 8,4 Bq/mg (01/04/2009), respectivamente. Além disso, a obtenção da eficiência com os arranjos de irradiação de teste (AIT) demonstra a validade dos sistemas de irradiação propostos. A determinação da eficiência é grandemente simplificada com estes sistemas. Algumas dificuldades para irradiar as amostras, utilizadas no procedimento de obtenção da eficiência, são vencidas quando o uso do reator nuclear Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear é evitado, pois não é necessário agendar irradiações neste reator e nem realizar o trajeto IRD-IEN-IRD. Esta condição facilita a construção de um procedimento mais amplo e de um programa de medições da eficiência.

VI.4 – Realização do Procedimento de Obtenção da Eficiência do Sistema BSM do LN/LNMRI/IRD utilizando o Arranjo de Irradiação de Teste (AIT)

A utilização do arranjo de irradiação de teste mostrou que um sistema de irradiação, baseado em fontes radioisotópicas de nêutrons e usando um pequeno volume de solução de sulfato de manganês, pode ser utilizado para a obtenção da eficiência. O valor médio obtido para a eficiência do sistema BSM do LN/LNMRI/IRD para as quatro irradiações realizadas com os AIT foi de $5,738 \times 10^{-4} \pm 0,40\%$. Com esse arranjo também foi possível conhecer a dinâmica do procedimento da eficiência, que envolveu a padronização da concentração de atividade da solução por métodos de cintilação líquida (CIEMAT/NIST e anti-coincidência) e a contagem desta no sistema BSM, antevendo os possíveis problemas operacionais. Um problema observado foi com relação à mistura da solução de MnSO_4 no cintilador líquido Hisafe III, que se apresentou turva. Apesar de não ser uma condição impeditiva para a medição, a turbidez da amostra deve ser estudada com relação a sua influência nos resultados e sobre quais procedimentos devem ser realizados para eliminá-la. Essa turbidez indica que há suspensão de partículas sólidas no cintilador. Deste modo a geometria de medição pode ser alterada durante as medições devido à decantação. Alguns testes foram feitos reduzindo-se a concentração da solução de MnSO_4 inserida no cintilador HiSafe III e, quando a concentração da solução foi reduzida em 10 vezes (0,28 molar), a mistura solução-cintilador não apresentou turbidez.

VI.5 – Trabalhos futuros

Recomenda-se que depois de construído o sistema de irradiação para as fontes de $^{252}\text{Cf}(\text{f},\text{n})$ e $^{238}\text{PuBe}(\alpha,\text{n})$ deverá ser realizado um programa de medições da eficiência de forma a estabelecer um procedimento que faça uso adequado dos SIP no sistema de garantia da qualidade do LNMRI/IRD. Neste programa de medições a turbidez da amostra seria estudada para verificar seu grau de influência no resultado da eficiência do sistema BSM do LN/LNMRI/IRD e também quanto a redução ou eliminação da turbidez das amostras através da redução da concentração da solução irradiada.

Sugere-se um estudo para a extensão do uso desses sistemas de irradiação para irradiar outros tipos de amostras (sangue, por exemplo). Nesse caso deverá ser determinada a dose alcançada dentro do recipiente da solução.

Um estudo mais extenso poderia ser realizado a respeito da utilização desses sistemas na padronização de fontes de nêutrons. Nesse caso, deverão ser calculados as capturas de nêutrons tanto na solução de MnSO_4 quanto também no meio refletor, além das capturas pelo material de seus respectivos recipientes. Também deverão ser consideradas as capturas no canal de irradiação, no tubo de inserção e pela própria fonte e ainda a fuga de nêutrons do sistema de irradiação. Nesse sistema, a taxa de emissão será determinada a partir da massa total de solução irradiada e do valor da concentração de atividade corrigida de todas as capturas e fuga de nêutrons.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- AXTON, E. J., CROSS, P., ROBERTSON, J. C., 1965, "Calibration of the NPL Standard Ra-Be Photoneutron Sources by Improved Manganese Sulphate Bath Technique", *Journal of nuclear energy parts A/B*, v. 19, pp. 409-422.
- BAERG, A. P., MUNZENMAYER, K., BOWES, G.C., 1976, "Live-timed Anti-Coincidence Counting with Extending Dead-Time Circuitry", *Metrologia*, 12, pp 77-80.
- BIRKS, J. B., 1964, *The Theory and Practice of Scintillation Counting* (Oxford: Pergamon).
- BRIESMEISTER, J. F., 2001, "**MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code**", Los Alamos National Laboratory, Version 4C2, USA.
- BRODA, R., CASSETE, P., KOSSERT, K., 2007, "Radionuclide metrology using liquid scintillation counting", *Metrologia*, V. 44, pp. S36-S52.
- BRODA, R., MAŁETKA, K., TERLIKOWSKA, T., CASSETTE, P., 2002, "Study of the influence of the LS-cocktail composition for the standardization of radionuclides using the TDCR model", *Appl. Radiat. Isot.*, V. 56, pp. 285–289.
- BRODA, R., POCHWALSKI, K., RADOSZEWSKI, T., 1988, "Calculation of liquid scintillation detector efficiency", *Appl. Radiat. Isot.*, V. 39, pp. 159–164.
- BRYANT, J., 1962, "Anticoincidence Counting Method for Standardizing Radioactive Materials", *Appl. Radiat. Isot.* 13, pp. 273-276.
- BRYANT, J., 1967, " Advantage of Antcoincidence Counting for Standardization of Radionuclides Emitting Delayed Gamma", *IEEEA Symp. Standardization of Radionuclides*, SM-79/21.
- CASTRO, L.C., PEREIRA, W.W., FONSECA, E.S., LEITE, P.L., 2007, "Study and Determination of the Ratio Atoms Between Hydrogen and Manganese in the Manganese Sulphate Bath, Procedure and Calculation", *In: Inac - International Nuclear Atlantic Conference (INAC)*, Santos-SP.
- CHUNG, K. C., 2001, *Introdução à Física Nuclear*, 3^a ed., Rio de Janeiro, EdUERJ.
- DA SILVA, C.J., 2008, *Implementação de um sistema de anti-coincidência 4pCL-Na(Tl) com cronometragem em tempo vivo e tempo morto extensível*, Tese de D.Sc., COPPE/UFRJ, Rio de Janeiro, Brasil.

- DE JUREN, J. A., CHIN, J., 1955a, "Absolute Calibration of the National Bureau of Standards Photoneutron Standard: II Absorption in Manganese Sulfate", *Journal Research NBS*, v.55, n. 6, pp. 311-316.
- DE JUREN, J. A., CHIN, J., 1955b, "Manganese Thermal Neutron Activation Cross Section", *Physical Review*, v. 99, n.1, pp.191.
- DE VOLPI, A., PORGES, K. G., 1969, "Absolute Calibration of Neutron Sources Having a Wide Range of Emission Spectra", *Metrologia*, v. 5, n. 4, pp.128-141.
- FIRESTONE, R. B., 1998, "Table of Isotopes", 8^a ed., Califórnia, John Wiley & Sons
- FRONTIER, 2008, disponível em <<http://www.frontiertechcorp-cf252.com/sers10.htm>> Acesso em: fev. 2008.
- GANDY, A., 1961, "Mesures Absolutes de l'Activité des Radionuclides par la Méthode des Coïncidences Beta-Gamma à l'aide des Détecteurs de Grande Efficacité. Etude des Coincidence Instrumentales", *Int. J. Appl. Isot.*, 11, pp. 75-91.
- GEIGER, K. W., 1967, "Recent Improvements in the Absolute Calibration of Neutron Sources", *Metrologia*, v. 4, n. 1, pp. 8-13.
- GEIGER, K. W., WHITE, G. N., 1959, "Absolute Standardization of Radioactive Neutron Sources: I – Activation of Manganese Bath" *Canadian Journal Physics*, v. 37, pp. 256-262.
- GIBSON, J. A. B., GALE, H. J., 1968, "Absolute standardization with liquid scintillation counters", *J. Phys. E: Sci. Instrum.*, V. 1, pp. 99–106
- GRAU, M. A., 1999, *Free parameter models in liquid scintillation counting*, Coleccion Documento CIEMAT, ISBN 84-7834-350-4, Madri.
- GRAU, C.P, GRAU M. A., 2001, "Free parameter, figure of merit and ionization quench in liquid scintillation", *Appl. Radiat. Isot.*, V. 54, pp. 447.
- GUNTHER, E., 2002, "What can we expect from the CIEMAT/NIST method?" *Appl. Radiat. Isot.*, V. 56, pp. 357-360.
- GURFINKEL, Y., AMIEL, S., 1965, "Absolute Calibration of Neutron Sources", *Nucleonics*, v. 23, n. 3, pp. 76-80.
- HANSTEIN, H. B., ANDERSON, H. L., FERMI, E., 1939, " Production of Neutron in Uranium Bombarded by Neutron", *Physical Review*, v.55, pp. 797-798.
- ISO, 2001, "Characteristics and Methods of Production", International Organization for Standardization, ISO-8529-1. Neutron Reference Radiation - Part 1, Switzerland.
- L'ANNUNZIATA, M. F., 2003, *Handbook of Radioactivity Analysis* (Amsterdam: Academic), p 445.

- LEITE, S.P., 2005, “*Simulação Matemática do Banho de Sulfato de Manganês Estático para Cálculo do Parâmetro de Correção K para Fontes Isotópicas de Nêutrons*”, Dissertação de Mestrado, IRD, Rio de Janeiro, Brasil.
- LOUREIRO, J.S., 1999, “*Calibração de raionuclídeos que decaem por emissão beta ou captura eletrônica, pela técnica de cintilação líquida*”, Dissertação de mestrado, IME, Rio de Janeiro, Brasil.
- LOUWRIER, P.W.F., 1966, “*Calibration of a Radium (α , n) Beryllium Neutron Source*”, Institute for Nuclear Physics Research, Amsterdam.
- LNHB, 2008, disponível em: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Periodes_2006.pdf> Acesso em: fev. 2008.
- MEDEIROS, R.B., GODINHO, R.O. MATTOS, M.F.S.S., 2003, “Comparison of the efficacy of biodegradable and non-biodegradable scintillation liquids on the counting of tritium- and [14C]-labeled compounds”, ***Brazilian Journal of Medical and Biological Research***, V. 36, pp. 1733-1739.
- NCRP, 1960, ***Measurement of Neutron Flux and Spectra for Physical and Biological Applications***, NCRP publication 23, p. 91.
- O’NEAL, R. D., SHARFF-GOLDHABER, G., 1946, “Determination of Absolute Neutron Intensities” ***Physical Review***, v. 69, pp. 368.
- PARK, H., CHOI, K.O., LEE, J.M., LEE, K. B., HAHN, M. S., 2005, “Absolute Measurement of the Neutron Emission Rate with a Manganese Sulphate Bath System”, ***Journal of the Korean Physical Society***, V.47, n.4, pp. 603-609.
- ROBERTS, N. J., 2001, “*MCNP calculations of corrections factors for radionuclide neutron source emission rate measurements using the manganese bath*”, CIRM 45, Teddington, UK
- ROBERTS, N. J., JONES, L.N., 2008, “*Commissioning of the new Manganese Bath Suite at the National Physical Laboratory*”, NPL Report IR 11, Teddington, UK
- RONDONTI, E., 1974, “Calibration of an Am-Be Neutron Source By Manganese Sulphate Bath Method”, ***Energia nucleare***, v. 21, n. 1, pp. 50-52.
- SCHUCH, A. L., 1978, “*Calibração de Monitores de Nêutrons com Moderadores e Aplicação na Determinação de Fatores de Correção de Dosímetros de Albedo*”, Tese de M. Sc., IME, Rio de Janeiro, Brasil.
- SCHUHMACHER, H., 2004, “Neutron Calibration Facilities”, ***Radiation Protection Dosimetry***, v. 110, pp. 33-42.

- SZILARD, L., ANDERSON, H. L, FERMI, E., 1939, “Neutron Production and Absorption in Uranium”, *Physical Review*, v. 56, pp. 284-286.
- SZILARD, L., ZINN, W.H., 1939, “Instantaneous Emission of fast Neutrons in the Interaction of Slow Neutrons with Uranium”, *Physical. Review*, V.55,
- TABLE OF NUCLIDES, 2008, disponível em: <<http://atom.kaeri.re.kr/>> Acesso em: fev: 2008.
- YARISTSINA, I. A., 1964, “Absolute Determination of the Number of Neutrons Emitted by Source” , In: *Acta IMEKO*, pp. 493-508.

ANEXO I

PARÂMETROS RELACIONADOS À MEDIÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS POR CINTILAÇÃO LÍQUIDA

AI.1 – A composição de uma solução cintiladora

Soluções cintiladoras são compostas, basicamente, de um solvente orgânico aromático e de uma substância com propriedades fluorescentes (cintilador). Para melhorar a eficiência de detecção ou quando se deseja condições particulares de medição pode ser adicionado ainda à solução cintiladora as seguintes substâncias: um solvente secundário, um cintilador secundário, um surfactante (detergente), um extractante e/ou um agente extintor de luz (quenching).

O solvente é a substância mais abundante em uma solução cintiladora. Sua função é absorver a energia proveniente do processo de decaimento do radionuclídeo e propagá-la até as moléculas do cintilador. São características importantes de um solvente utilizado em uma solução cintiladora a transparência à luz, conter pouquíssimas impurezas, ser quimicamente inerte, pouco volátil, pouco ou não tóxico, ser barato e ter alto ponto de fulgor. Os primeiros solventes utilizados foram o benzeno e o tolueno seguido pelos solventes xileno e pseudocumol. Eles são conhecidos como solventes tradicionais e apesar de ainda serem muito utilizados, o seu uso têm decrescido por causa da toxicidade, por serem inflamáveis, apresentarem forte odor, serem voláteis e por permearem materiais plásticos (frasco de cintilação). Após o ano de 1980, uma nova geração de solventes aromáticos tem sido desenvolvida. Denominados de “seguros” estes solventes apresentam alto ponto de fulgor, baixa volatilização, pouco odor, baixa toxicidade e não permeiam materiais plásticos. Estes solventes são o DIN (diisopropilnafitaleno), o PXE (fenilxiletano) e o LAB (dodecilbenzeno). Os solventes DIN e PXE apresentam a vantagem de serem mais eficientes que os solventes tradicionais. Uma comparação entre a eficiência de contagem dos solventes é apresentada na Figura A1.1. Um resumo sobre algumas características importantes dos solventes orgânicos aromáticos utilizados em soluções cintiladoras é apresentado na Tabela A1.1.

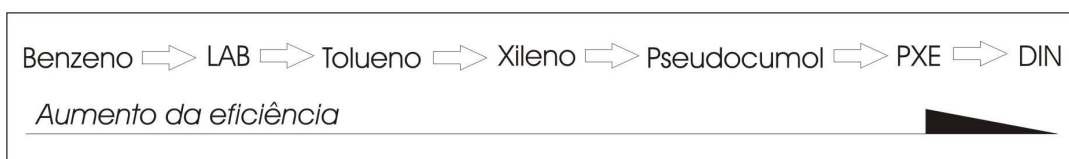


Figura AI.1 – Diagrama de comparação da eficiência de contagem dos solventes utilizados em soluções cintiladoras

Tabela AI.1 – Características de segurança dos solventes utilizados em soluções cintiladoras

Solvente	Ponto de Ebulição [°C]	Ponto de Fulgor [°C]	Pressão do Vapor [mmHg] a 25°C	Classificação (internacional)	Riscos
Tolueno	110	4	28	Inflamável	Inalação; Absorção pela pele; Irrita pele/olhos
Xileno	138	25	8	Inflamável	Inalação; Absorção pela pele; Irrita pele/olhos
Pseudocumol	168	50	2	Inflamável	Inalação; Irrita pele/olhos
LAB	300	149	<1	Inofensivo	Nenhum (como classificado)
PXE	305	149	<1	Inofensivo	Nenhum (como classificado)
DIN	300	140	<1	Inofensivo	Nenhum (como classificado)

O cintilador é a substância responsável pela conversão da energia de excitação das moléculas do solvente em luz. Frequentemente numa solução cintiladora estão presentes duas substâncias cintiladoras: o cintilador primário e o cintilador secundário. O cintilador primário está presente em concentrações de 5g a 10g por litro de solvente. O aumento da concentração do cintilador não é garantia de maior rendimento luminoso. Há uma concentração ótima, que se vencida, irá produzir uma redução na emissão de

luz. Um cintilador primário deve possuir as seguintes propriedades: elevado rendimento de desexcitação, emissão de luz compatível com os fotodetectores, espectro de absorção óptica bem separado do espectro de emissão, tempo de desexcitação curto e um excelente acoplamento energético com o solvente. Os principais produtos utilizados como cintiladores primários são o PPO, o TP, o PBD e Butil-PBD. Por causa de sua pureza, baixo custo, disponibilidade em larga escala e bom desempenho o PPO é o mais utilizado. Para que a luz emitida pela solução cintiladora seja compatível à máxima sensibilidade do fotocatodo, pode ser utilizado também um cintilador secundário. Os principais cintiladores secundários são o POPOP, o DMPOPOP, o bis MSB e o PBBO. O mais utilizado é o bis-MSB e esta preferência são pelos mesmos motivos do PPO. A concentração do cintilador secundário é aproximadamente de 0,5g por litro de solvente.

A maioria das amostras de radionuclídeos medidas por cintilação líquida está em meio aquoso. Como soluções cintiladoras usam solventes orgânicos aromáticos é necessário utilizar surfactantes (detergentes) para misturar a fase orgânica com a fase aquosa. O uso de surfactantes permite a dispersão de gotículas de água no óleo, formando uma micro emulsão. O tamanho típico destas gotículas é da ordem de 10nm de raio. Em uma solução cintiladora, quanto menor for o tamanho destas gotículas melhor será a transferência de energia do decaimento do radionuclídeo, em meio aquoso, para o solvente. Surfactantes estão presentes em quantidade de até 30% da massa da solução cintiladora e os não iônicos, por exemplo, o Triton-X-100, são preferidos por apresentar boa propagação de energia.

Um extractante é usado quando se deseja extrair o radionuclídeo da fase aquosa para uma fase orgânica compatível com a solução cintiladora. Este método é pouco utilizado, pois nem sempre é conveniente a presença do composto extractante na solução cintiladora. Extractantes geralmente utilizados são os orgânicos HDEHP e TOPO. Estes são escolhidos por serem estáveis na solução cintiladora e em alguns casos aumentar a eficiência de detecção. Podem ser encontrados em concentração molar de aproximadamente 10^{-2} mol por litro de solução cintiladora.

Quando se deseja reduzir propositadamente a eficiência de contagem de uma solução cintiladora são adicionados a ela diferentes volumes de um agente de extinção de luz, também conhecido como “quench”. Os principais agentes de extinção de luz são

o tetracloreto de carbono (CCl_4), a acetona ($\text{CH}_3\text{CH}_3\text{CO}$), o clorofórmio (CHCl_3) e o nitrometano (CH_3NO_2).

AI.2 – Composição química dos cintiladores comerciais.

A composição química de alguns cintiladores comerciais é apresentada da Tabela AI.2.

Tabela AI.2 – Composição química de alguns cintiladores líquidos utilizados na rotina de calibração

	C	H	N	O	P	S	Na	Density at 20 °C (g/cm ³)
<i>Ultima Gold</i>	16,81	24,54	0,040	1,52	0,11	0,02	0,02	0,98
<i>Insta-Gel Plus</i>	18,53	30,93	0,006	3,90	-	-	-	0,95
<i>Hioni-Fluor</i>	10,83	18,77	0,060	1,97	0,18	0,04	0,04	0,95
<i>Hisafe III</i>	19,17	28,12	0,0185	2,88	0,64	0,001	0,001	0,99

AI.3 – O processo de transferência de energia da radiação para o cintilador

Devido à composição da solução cintiladora, a maior parte da interação da radiação emitida pelo radionuclídeo ocorre com o solvente. A probabilidade de interação direta entre a radiação incidente e as moléculas fluorescentes é muito baixa. Portanto, para que uma solução cintiladora apresente bom desempenho, é necessário que o solvente transfira sua energia de excitação para as moléculas do cintilador.

Os elétrons incidentes ou àqueles gerados secundariamente pela interação da radiação com a solução cintiladora produzem excitação ou ionização das moléculas do solvente, dissipando a energia incidente principalmente na forma de calor. Apenas de 5 a 10% da energia liberada pela radiação é transferida para as moléculas fluorescentes.

A radiação emitida pelo radionuclídeo atravessa a solução cintiladora interagindo principalmente com as moléculas do solvente. Diferentes processos podem ocorrer devido a interação radiação-solvente: ionização, liberação de radicais, indução de reações, alteração do estado vibracional, rotacional e cinético das moléculas do solvente e excitação dos elétrons orbitais. Entretanto, apenas este último pode levar a emissão de luz. Os demais processos podem eventualmente levar à excitação das moléculas do

solvente, por exemplo, as moléculas ionizadas podem se recombinarem com elétrons lentos e formarem moléculas excitadas. A excitação das moléculas do solvente ocorre quando os elétrons “ π ” saltam do estado fundamental S_0 para o estado excitado singlete ou para o estado excitado tripleto (Figura AI.2)

Cerca de 10% da energia da radiação liberada no cintilador líquido é transferida para os estados excitados singlete e tripleto. A transferência direta da energia de excitação do solvente para as moléculas do cintilador é pouco provável devido a baixa concentração deste soluto cintilante, cerca de 10^{-2} Molar . Então, esta energia de excitação deve migrar pelas moléculas do solvente até ser capturada por alguma molécula do cintilador (Figura AI.3)

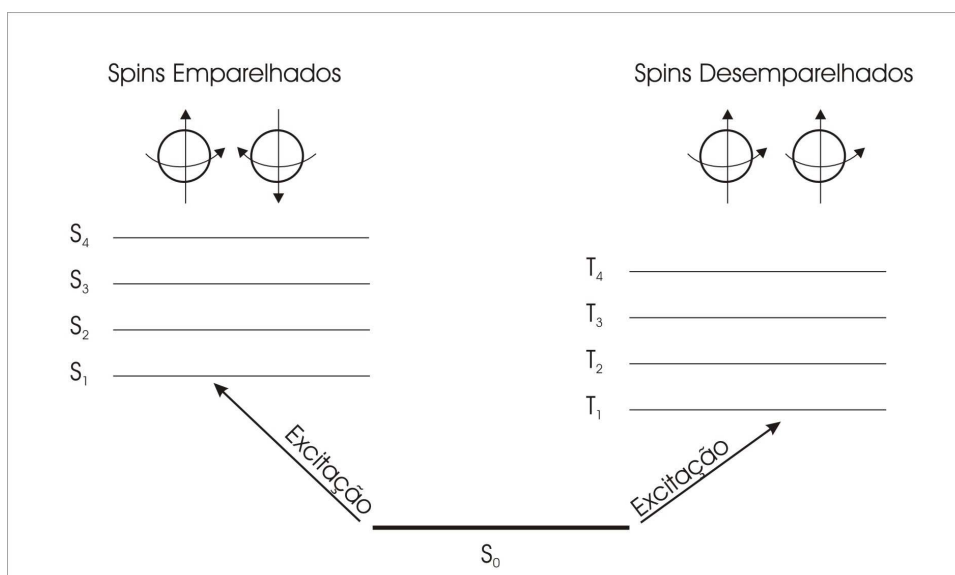


Figura AI.2 – Diagrama do processo de excitação para os níveis singletos ou tripletos

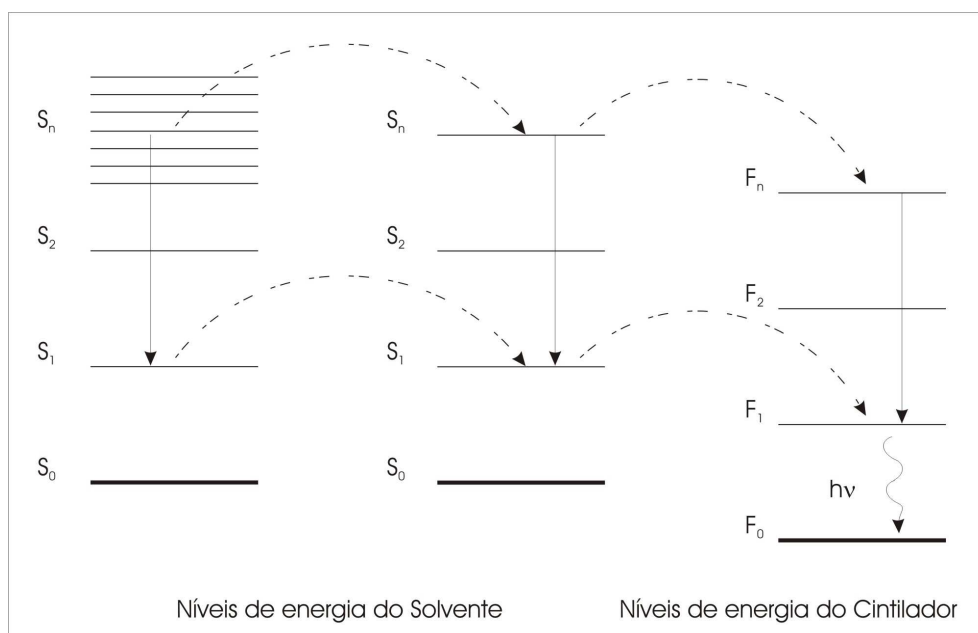


Figura AI.3 – Diagrama de transferência da energia de excitação

A transferência de energia solvente-cintilador é do tipo não-radioativa e ocorre principalmente pelo processo de interação dipolo-dipolo entre as moléculas. A fluorescência ocorre quando há desexcitação radiativa dos estados singletos do cintilador. Este processo ocorre num período de tempo da ordem de 10^{-9} s. Embora menos provável, pode ocorrer também a fosforescência, que é devido à desexcitação dos estados tripletos das moléculas do soluto. Este período de desexcitação é da ordem de 10^{-5} s. A luz emitida pela solução cintiladora tem comprimento de onda compreendido na faixa de 375 a 430nm. O comprimento de onda emitido depende do cintilador dissolvido na solução cintiladora. A intensidade da luz emitida está relacionada com a energia e o tipo de radiação emitida na solução cintiladora e o número de pulsos luminosos por unidade de tempo é proporcional a radioatividade da amostra.

AI.4 – Detectores de cintilação

A intensidade luminosa emitida pela solução cintiladora é muito baixa, de modo que é necessário coletar a luz com máxima eficiência usando fotodetectores muito sensíveis. Estes fotodetectores são geralmente um tubo fotomultiplicador. Este detector é constituído de um fotocatodo, que através do efeito fotoelétrico converte o sinal luminoso em elétrons,. O rendimento quântico do fotocatodo é da ordem de 20 a 25% para tubos de 5cm de diâmetro, geralmente utilizados nos contadores de cintilação

líquida. Os fotoelétrons emitidos no fotocatodo são acelerados por um campo elétrico através de uma sucessão de eletrodos, os dinodos, onde são multiplicados.

O esquema de uma fotomultiplicadora utilizada nos contadores de cintilação líquida é apresentado na Figura A1.4. O coeficiente de multiplicação do primeiro dinodo pode chegar a 50 para os melhores tubos e os coeficientes dos outros dinodos estão por volta de 5. Dependendo do número de dinodos, o ganho de um tubo pode chegar de 10^7 a 10^8 .

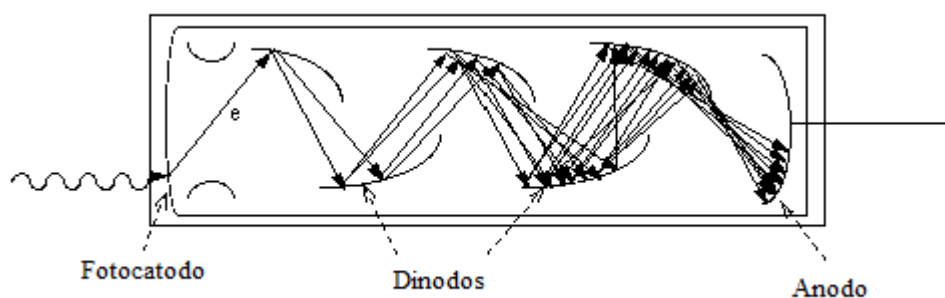


Figura A1.4 – Esquema de uma fotomultiplicadora

AI.5 – Tipos de extinção luminosa (quenching)

Todo fenômeno físico-químico que leva a diminuição da emissão de luz no cintilador líquido é denominado de “extinção luminosa”. Os principais processos de extinção luminosa são a extinção por ação química, a extinção por coloração e a extinção por ionização. A extinção química ocorre quando estão presentes espécies químicas (radicais livres, por exemplo) que competem com as moléculas do solvente na absorção da energia liberada pelo radionuclídeo. Isto leva a diminuição da transferência de energia solvente-soluto e conseqüentemente redução na emissão luminosa. Na mistura da amostra radioativa com a solução cintiladora sempre haverá algum nível de quenching químico, isto o torna o mais comum processo de extinção luminosa. A ação deste tipo de extinção depende do estado de excitado das moléculas do solvente e das moléculas do soluto, da estrutura química e da concentração do agente de extinção químico.

Enquanto na extinção química ocorre principalmente a absorção da energia proveniente do decaimento do radionuclídeo, na extinção por coloração ocorre a absorção de fótons de luz. A ocorrência deste tipo de extinção é importante quando substâncias coloridas estão presentes na solução radioativa ou são formados devido a degradação da solução cintiladora. A coloração atenua a luz emitida pelo cintilador, podendo levar a anisotropia, o que pode causar problemas na contagem de pulsos coincidentes.

A extinção por ionização é definido como a redução na intensidade luminosa causada pela ionização produzida pela passagem da radiação na solução cintiladora. BIRKS (1964) descreveu o número de fótons produzido ao longo da trajetória da partícula carregada, $dL(E)/dx$, através da expressão semi-empírica AI.1

$$\frac{dL(E)}{dx} = \frac{\eta_0 dE/dx}{1 + kB(dE/dx)} \quad \text{AI.1}$$

$$L(E) = \eta_0 \int_0^E \frac{dE}{1 + kB(dE/dx)} \quad \text{AI.2}$$

Onde η_0 é o número de fótons emitidos por unidade de energia absorvida, dE/dx é o *stopping power* da radiação em unidade de MeVcm^{-1} ou $\text{MeV cm}^2\text{g}^{-1}$ e kB é um parâmetro de extinção por ionização, uma constante com unidade de cmMeV^{-1} ou $\text{gMeV}^{-1}\text{cm}^{-2}$.

Se não houvesse extinção por ionização a equação AI.1 se reduziria a

$$\frac{dL(E)}{dx} = \eta_0 \frac{dE}{dx} \quad \text{AI.3}$$

Então na equação AI.1 a expressão $1 + kB(dE/dx)$ representa a redução na fluorescência devido à extinção por ionização. A partir da equação AI.1 podemos definir a seguinte expressão para a extinção por ionização (equação AI.4):

$$Q(E) = \frac{1}{E} \int_0^E \frac{dE}{1 + kB(dE/dx)} \quad \text{AI.4}$$

ANEXO II

O MODELO DO PARÂMETRO LIVRE

AII.1 – O parâmetro livre

O modelo do parâmetro livre pode ser realizado de duas maneiras: obtendo o parâmetro livre por meio de medições de um traçador (o Método CIEMAT/NIST) ou calculando-se este parâmetro a partir de uma razão entre coincidências triplas e duplas (o método RCTD). Esses dois métodos têm sido nos últimos 20 anos responsáveis pelo crescente interesse, no campo da metrologia de radionuclídeos, da utilização de técnicas baseadas na cintilação líquida. Isso é motivado, principalmente, tanto pelo embasamento teórico como pela qualidade metrológica desses métodos. Neles é possível padronizar beta emissores com incerteza de 0,1%.

O conceito do parâmetro livre está fundamentado na descrição estatística dos fenômenos físicos que ocorrem num contador de cintilação líquida durante a detecção da luz proveniente da solução cintiladora. Esse parâmetro pode ser definido como sendo a energia média necessária para produzir a emissão de um fotoelétron no fotocatodo, supondo que a resposta luminosa da solução cintiladora segue uma distribuição de Poisson. É um tratamento estatístico para a detecção do sinal luminoso pela fotomultiplicadora, de modo a obter a eficiência de contagem.

BRODA et al (2007) descrevem o modelo estatístico do parâmetro livre fazendo as seguintes considerações:

Se E é a energia liberada pela radiação na solução cintiladora, o número de fótons de luz emitido pode ser definido segundo a equação AII.1

$$N = \frac{LQ(E)E}{h\nu} \quad \text{AII.1}$$

Onde L é um fator de correção para energia e $h\nu$ é a energia média dos fótons emitidos. Se for assumido que os fótons emitidos seguem uma distribuição de Poisson com valor médio N , o número de fótons que alcançam o fotocatodo de todas as fotomultiplicadoras, n , também pode ser admitido que seja governado pela distribuição de Poisson (equação AII.2).

$$p(n, \bar{n}) = \frac{\bar{n}^n}{n!} e^{-\bar{n}} \quad \text{AII.2}$$

$$\bar{n} = N\xi \quad \text{AII.3}$$

Onde $\bar{n}$ é o número médio de fótons e ξ é a eficiência de detecção da fotomultiplicadora. Na média, n fótons produzem a emissão de m fotoelétrons no fotocatodo, onde m é obtido por meio de equação AII.4:

$$m = n\varepsilon_q\mu \quad \text{AII.4}$$

Onde ε_q é a eficiência quântica do fotocatodo e μ é o parâmetro que faz a relação entre o espectro de fluorescência e o espectro de resposta do fotocatodo. O produto entre n , ε_q e μ define uma eficiência óptica do contador de cintilação, ε . O efeito fotoelétrico que ocorre no fotocatodo pode ser descrito por uma distribuição binomial (equação AII.5):

$$b(m; n, \varepsilon_q\mu) = \frac{n!}{m!(n-m)!} (\varepsilon_q\mu)^m (1 - \varepsilon_q\mu)^{n-m} \quad \text{AII.5}$$

Utilizando a equação AII.5, quando $m=0$, podemos determinar a probabilidade de emissão de pelo menos um fotoelétron a partir da equação AII.6:

$$p_e(n) = 1 - b(0; n, \varepsilon_q\mu) = 1 - (1 - \varepsilon_q\mu)^n \quad \text{AII.6}$$

O número médio de fotoelétrons criados pode ser determinado por meio da combinação das equações (AII.4), (AII.3) e (AII.1) (equação AII.7):

$$\bar{m} = N\varepsilon = \frac{L\xi\varepsilon_q\mu}{h\nu}Q(E)E \quad \text{AII.7}$$

Considerando um contador com F fotomultiplicadoras, o número de fótons que alcançam os diferentes fotocátodos forma um conjunto que atende a condição $n=n_1+n_2+\dots+n_F$. A probabilidade de ocorrência de um conjunto particular (n_i) pode ser obtida utilizando uma distribuição multinomial (equação AII.8):

$$d = \frac{1}{F^n} \frac{n!}{n_1!n_2!\dots n_F!} \quad \text{AII.8}$$

As probabilidades de ocorrência de diferentes tipos de pulsos, P_x , pode ser calculado utilizando-se $p_e(n_i)$, em cada fotomultiplicadora. Então, usando P_x , a probabilidade de contagem, P , pode ser obtida a partir de (AII.7) e (III.10), após a soma de todos os possíveis conjuntos de valores, (n_i) (BRODA et al,1988). No caso mais simples de apenas uma fotomultiplicadora, onde $P_x=p_e(n)$ e $d=1$, pode-se obter P através da equação AII.9:

$$P = \sum_{n=0}^{\infty} p(n, \bar{n}) p_e(n) \quad \text{AII.9}$$

Substituindo AII.3 e AII.6 na equação AII.9, temos:

$$\begin{aligned} P &= \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\bar{n}^n}{n!} e^{-\bar{n}} \left\{ 1 - (1 - \varepsilon_q \mu)^n \right\} \\ &= 1 - \left\{ \sum_{n=0}^{\infty} \frac{[\bar{n}(1 - \varepsilon_q \mu)]^n}{n!} e^{-\bar{n}(1 - \varepsilon_q \mu)} \right\} \frac{e^{-\bar{n}}}{e^{-\bar{n}(1 - \varepsilon_q \mu)}} \\ &= 1 - e^{-\bar{n}} e^{\bar{n}(1 - \varepsilon_q \mu)} = 1 - e^{-\bar{n}\varepsilon_q \mu} = 1 - e^{-\bar{m}} \end{aligned} \quad \text{AII.10}$$

Uma cascata de três processos aleatórios: Poisson (AII.2), Binomial (AII.5) e multinomial (AII.8) podem ser reduzidos a apenas uma distribuição de Poisson, $p(m, \bar{m})$ no qual descreve a estatística dos fotoelétrons.

A qualidade do contador de cintilação líquida pode ser quantificada através de uma relação entre a energia, E , liberada pela partícula carregada no cintilador líquido, e o número médio de fótons, $\bar{n}$, ou de fotoelétrons, $\bar{m}$, criados no contador. Este Parâmetro de qualidade é definido por GRAU (1999) como parâmetro livre, λ , e pode ser entendido como a energia necessária para criar um fotoelétron no fotocatodo da fotomultiplicadora:

$$\lambda = \frac{EQ(E)}{\bar{m}} \quad \text{AII.11}$$

Usando a equação AII.7, o parâmetro livre é uma quantidade independente da energia da partículas e uma propriedade intrínseca de uma determinada amostra radioativa diluída num cintilador líquido e de um determinado contador (GRAU e GRAU, 2001):

$$\lambda = \frac{h\nu}{L\xi\epsilon_q\mu} \quad \text{AII.12}$$

Se pudermos assumir que a probabilidade de detecção de um fotoelétron não é nula, a probabilidade de não-deteção, p_0 , de acordo com lei de Poisson, é $e^{-\bar{m}}$ e a probabilidade de contagem, P , de uma fotomultiplicadora é dada por (AII.10) (GIBSON e GALE, 1968). Em um contador LS com R fotomultiplicadoras idênticas, a probabilidade de contagem torna-se

$$P = 1 - e^{-\frac{\bar{m}}{R}} \quad \text{AII.13}$$

Tabela AII.1 – Probabilidade de contagem de vários tipos de pulsos produzidos por partículas mono-energéticas na solução cintiladora e com R fotomultiplicadoras com respostas idênticas ou diferentes. A probabilidade de não detecção é dada por $p_0 = \exp(-m/R) = \exp(-EQ(E)/R\lambda)$. Tipos de sinais: N é não coincidente, S, S_2 , S_3 são a soma lógica dos sinais não coincidentes, D é a dupla coincidência, D_2 , D_3 são a soma lógica das coincidências duplas e T é a coincidência tripla.

R	Modo de operação	sinal	Probabilidade de contagem $P(E, \lambda)$
Fotomultiplicadoras com respostas idênticas, $p_A = p_B = p_C = p_0$			
1	A	N	$1 - p_0$
2	A ou B	N	$1 - p_0$
	A+B	S	$(1 - p_0)(1 + p_0)$
	AB	D	$(1 - p_0)^2$
3	A ou B ou C	N	$1 - p_0$
	A+B ou B+C ou A+C	S_2	$(1 - p_0)(1 + p_0)$
	A+B+C	S_3	$3(1 - p_0) - 3(1 - p_0)^2 + (1 - p_0)^3$
	AB ou BC ou AC	D	$(1 - p_0)^2$
	AB+BC ou AB+AC ou BC+AC	D_2	$2(1 - p_0)^2 - (1 - p_0)^3$
	AB+BC+AC	D_3	$3(1 - p_0)^2 - 2(1 - p_0)^3$
	ABC	T	$(1 - p_0)^3$
Fotomultiplicadoras com respostas diferentes, $p_A \neq p_B \neq p_C$			
1	A	N	$(1 - p_A)$
2	A;B	N	$(1 - p_A); (1 - p_B)$
	A+B	S	$1 - p_A p_B$
	AB	D	$(1 - p_A)(1 - p_B)$
3	A;B;C	N	$(1 - p_A); (1 - p_B); (1 - p_C)$
	A+B; B+C; A+C	S_2	$1 - p_A p_B; 1 - p_B p_C; 1 - p_A p_C$
	A+B+C	S_3	$1 - p_A p_B p_C$
	AB; BC; AC	D	$(1 - p_A)(1 - p_B); (1 - p_B)(1 - p_C); (1 - p_A)(1 - p_C)$
	AB+BC	D_2	$(1 - p_A)(1 - p_B) + (1 - p_B)(1 - p_C) - (1 - p_A)(1 - p_B)(1 - p_C)$
	AB+AC		$(1 - p_A)(1 - p_B) + (1 - p_A)(1 - p_C) - (1 - p_A)(1 - p_B)(1 - p_C)$
	BC+AC		$(1 - p_B)(1 - p_C) + (1 - p_A)(1 - p_C) - (1 - p_A)(1 - p_B)(1 - p_C)$
	AB+BC+AC	D_3	$(1 - p_A)(1 - p_B) + (1 - p_B)(1 - p_C) + (1 - p_A)(1 - p_C) - 2(1 - p_A)(1 - p_B)(1 - p_C)$
	ABC	T	$(1 - p_A)(1 - p_B)(1 - p_C)$

Onde o número médio de fotoelétrons criados no contador, através de (AII.7), é

$$\overline{m} = \frac{EQ(E)}{\lambda} \quad \text{AII.14}$$

A probabilidade de contagem, P, é uma função da energia E e de um parâmetro livre λ . São apresentados na Tabela AII.1 (BRODA et al, 2007) as probabilidades de contagem (P) expressas em termos da probabilidade de Não-detecção (p_0), para vários tipos de pulsos e em vários contadores. Na prática, e especialmente quando as condições de trabalho das fotomultiplicadoras são alteradas, não se pode ser assumir que as fotomultiplicadoras sejam idênticas. Deste modo, diferentes parâmetros livres e diferentes probabilidades de não-detecção para as fotomultiplicadoras devem ser consideradas no cálculo da probabilidade P (ver Tabela AII.1). Esta abordagem foi bem sucedida no caso da padronização do trício com um triplo contador que apresentava significativa anisotropia entre as fotomultiplicadoras (BRODA et al, 2002).

AII.1.1 – A eficiência de contagem

Na seção anterior foi discutido estatisticamente o processo de formação de fotoelétrons no fotocatodo e a probabilidade de contagem em função do parâmetro livre. Conseqüentemente, como numa fotomultiplicadora estes fotoelétrons são acelerados e multiplicados para formarem um pulso elétrico, a eficiência de contagem também pode ser determinada em função de parâmetro livre. Esta eficiência depende do tipo de decaimento realizado pelo radionuclídeo. Por exemplo, para um emissor beta-puro, ϕ , é o resultado do produto entre a probabilidade de contagem de um pulso de cintilação $P(E, \lambda)$ [ver Tabela AII.1] e o espectro de energia normalizado, $N(E)$, da radiação emitida na solução cintiladora. Assim, a eficiência de contagem pode ser obtida conforme a equação AII.15

$$\phi(\lambda) = \int_0^{E_{MAX}} N(E)P(E, \lambda)dE \quad \text{AII.15}$$

Para o caso de emissores β - γ , $\phi(\lambda)$ é calculado de maneira semelhante a equação

AII.15, sendo no entanto necessário considerar todas as radiações gamas associadas à radiação beta. Deste modo, p_0 , deve ser rescrito considerando o decaimento β - γ (equação AII.16).

$$p_0 = e^{\frac{-E_{\beta(\text{Max})}Q(\beta)}{R\lambda}} e^{\frac{-\sum_{i=1}^n E_{\gamma_i}Q(E_{\gamma_i})}{R\lambda}} \quad \text{AII.16}$$

E $\varphi(\lambda)$ passa a ser escrita como:

$$\varphi(\lambda) = \int_0^{E_{\beta(\text{Max})}} \int_0^{E_{\gamma_1}} \dots \int_0^{E_{\gamma_n}} N(E) S_1(E_1) \dots S_n(E_n) P(E_{\beta}, E_{\gamma_i}, \lambda) dE dE_1 \dots dE_n \quad \text{AII.17}$$

Onde $N(E)$ é o espectro beta e $S_i(E)$ é o espectro Compton de uma dada transição gama. $Q(E)$ é o fator de extinção por ionização, λ é o parâmetro livre e E_{β} , E_{γ_1} , ..., E_{γ_n} são as máximas energias das transições β e γ , respectivamente.

$N(E)$ é obtido através da teoria de Fermi para o decaimento β , levando em consideração os fatores de forma. O espectro Compton é obtido através da simulação da interação da radiação gama no cintilador por meio do método de Monte Carlo.

ANEXO III

CÁLCULO DA EFICIÊNCIA DO ^{56}Mn PARA O MÉTODO CIEMAT/NIST

O cálculo teórico da eficiência de contagem foi realizado utilizando o programa em Visual Basic CN2001 (GUNTHER, 2002) que é distribuído gratuitamente e pode ser baixado no site do ICRM ³. O procedimento do cálculo compreende primeiramente em dividir o esquema de decaimento do radionuclídeo em cada um de seus ramos. No caso do ^{56}Mn seu esquema de decaimento (Figura III.2) foi dividido em 10 partes (Tabela AIII.1). Então, determinou-se a probabilidade de cada caminho, juntamente com a característica de cada transição beta (energia, fator de forma) e das transições gama associadas (energia, coeficientes de conversão). Outro dado utilizado para calcular a eficiência de contagem refere-se a composição química e o volume do cintilador líquido utilizado. Neste trabalho, foram utilizados frascos de cintilação contendo 14mL do cintilador líquido Hisafe III. A composição química desse cintilador é apresentada na Tabela AI.2

Tabela AIII.1 – Esquema de decaimento do manganês segmentado

Ramo	probabilidade
$\beta_1\gamma_1\gamma_{10}$	0,0002
$\beta_2\gamma_3\gamma_{10}$	0,000123
$\beta_2\gamma_2$	2,05E-05
$\beta_3\gamma_4\gamma_9\gamma_{10}$	0,000400
$\beta_4\gamma_6\gamma_{10}$	0,144
$\beta_4\gamma_5$	0,00311
$\beta_5\gamma_8\gamma_{10}$	0,270
$\beta_5\gamma_7$	0,00646
$\beta_6\gamma_9\gamma_{10}$	0,000570
$\beta_7\gamma_{10}$	0,568

O resultado final do programa é dado na forma de um polinômio (equação AIII.1)

³ http://www.nucleide.org/ICRM_LSC_WG/CN2003_PTB.zip

$$\varepsilon_{\text{nuclídeo}} = \sum_{i=0}^n k_i \varepsilon_T^i \quad \text{AIII.1}$$

Esse polinômio foi obtido para o ^{56}Mn , equação A.1, a partir da interpolação da curva apresentada na Figura A.1, gerada pelo programa CN2001.

$$\varepsilon_{^{56}\text{Mn}} = 5,67 \times 10^{-6} (\varepsilon_{^3\text{H}})^3 - 8,65 \times 10^{-4} (\varepsilon_{^3\text{H}})^2 + 5,23 \times 10^{-2} (\varepsilon_{^3\text{H}}) + 9,85 \times 10^1 \quad \text{AIII.1}$$

A equação AIII.1 foi utilizada na determinação da concentração de atividade da solução nas irradiações (A) e (B).

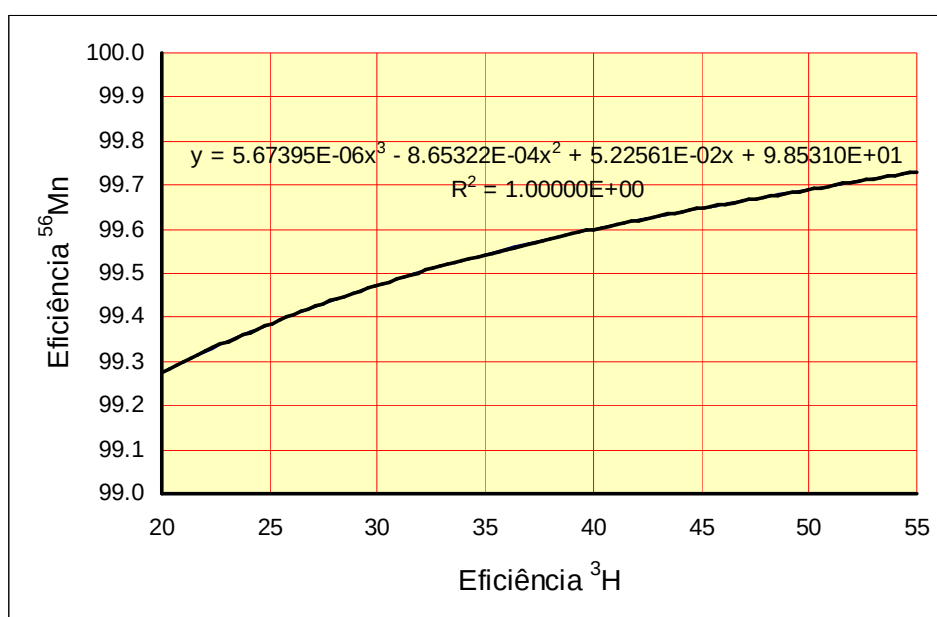


Figura AIII.1 – Eficiência do ^{56}Mn x Eficiência do ^3H