

Universidade de São Paulo  
Instituto de Física

**Medidas das seções de choque térmicas e integrais de  
ressonância das reações  $^{34}\text{S}(n,\gamma)^{35}\text{S}$  e  $^{42}\text{K}(n,\gamma)^{43}\text{K}$  -  
Aperfeiçoamento por simulação de Monte Carlo**

Felisberto Alves Ferreira Junior

Tese de doutorado apresentada ao Instituto de  
Física para a obtenção do título de Doutor em  
Ciências.

Orientadora: Prof<sup>a</sup>. Dr<sup>a</sup>. Nora Lía Maidana

Banca Examinadora:

Prof<sup>a</sup>. Dr<sup>a</sup>. Nora Lía Maidana (IFUSP)

Prof. Dr. Otaviano Augusto Marcondes Helene (IFUSP)

Prof. Dr. Nilberto Heder Medina (IFUSP)

Prof<sup>a</sup>. Dr<sup>a</sup>. Brigitte Roxana Soreanu Pecequilo (IPEN)

Prof. Dr. Frederico Antônio Genezini (IPEN)

São Paulo  
2012

**FICHA CATALOGRÁFICA**  
**Preparada pelo Serviço de Biblioteca e Informação**  
**do Instituto de Física da Universidade de São Paulo**

Ferreira Júnior, Felisberto Alves

Medidas das seções de choque térmicas e integrais de ressonância das reações  $^{34}\text{S}(n,\gamma)^{35}\text{S}$  e  $^{42}\text{K}(n,\gamma)^{43}\text{K}$  -  
Aperfeiçoamento por simulação de Monte Carlo. São Paulo, 2012.

Tese (Doutorado) – Universidade de São Paulo.  
Instituto de Física – Depto. de Física Experimental

Orientador: Profa. Dra. Nora Lía Maidana

Área de Concentração: Física experimental

Unitermos: 1.Física; 2. Física Experimental; 3.Física Nuclear; 4.Interações Nucleares; 5.Reações Nucleares

USP/IF/SBI-002/2013

# Resumo

Amostras de nitrato de potássio e enxofre natural foram irradiadas no núcleo do reator de pesquisas IEA-R1 do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN/CNEN-SP, operando entre 3,5 e 5 MW de potência, para determinar as seções de choque térmicas e integrais de ressonância das reações  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$  e  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ . O fluxo de nêutrons foi monitorado com ligas ouro-alumínio. As atividades induzidas nos alvos de ouro-alumínio e nitrato de potássio foram medidas com um detector semicondutor de germânio hiper puro; as atividades dos alvos de enxofre foram determinadas com um sistema de coincidências  $4\pi\beta-\gamma$ . Os efeitos de depressão de fluxo, autoblindagem e autoabsorção nos alvos foram corrigidos com base em simulações com o método de Monte Carlo por meio do programa MCNP. O programa PENELOPE, também baseado no método de Monte Carlo, foi modificado para simular o comportamento do sistema de coincidências  $4\pi\beta-\gamma$ . O formalismo de Westcott e o método da razão de cádmio foram usados para determinar os fluxos de nêutrons térmicos e epitérmicos, assim como as seções de choque térmicas e integrais de ressonância de ambos núclídeos. Foi efetuado um tratamento estatístico das incertezas envolvidas e determinadas as covariâncias entre os resultados, incluindo aquelas decorrentes das incertezas do padrão de referência (ouro). As reações  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$  e  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  apresentaram, respectivamente, seções de choque térmicas de 228(14) mb e 44,8(9) b, e integrais de ressonância de 144(6) mb e 1635(75) b. Estes resultados são incompatíveis com aqueles obtidos com cálculos teóricos. A seção de choque térmica da reação  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$  concorda com valores obtidos por outros autores, dentro das incertezas experimentais.



# Abstract

Samples of potassium nitrate and natural sulphur were irradiated in the IPEN/CNEN-SP IEA-R1 research reactor core, operating between 3.5 and 5 MW, to determine the thermal neutron cross sections and resonance integrals of  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  and  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$  reactions. The neutron flux was monitored with gold-aluminium alloy. The activities induced in targets of gold-aluminium and potassium nitrate were measured with a high purity germanium detector. Sulphur targets activities were determined with a  $4\pi\beta-\gamma$  coincidences system by the tracer method. Flux depression, self-shielding and self-absorption in the targets was evaluated by simulations using the MCNP software. The PENELOPE software, also based on Monte Carlo method, was modified to simulate the behavior of the  $4\pi\beta-\gamma$  coincidence system. The Westcott formalism and the cadmium ratio method were used to determine epithermal and thermal neutrons flux as well as the thermal cross sections and resonance integrals of both nuclides. A statistical analysis of the uncertainties was performed and the covariance between the results was determined, including those arising from the uncertainties of the gold reference standard. The results were compared with experimental values and theoretical predictions obtained by other authors. The  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$  and  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  reactions had, respectively, thermal cross sections of 228(14) mb and 44.8(9) b, and integral resonances of 144(6) mb and 1635(75) b. These results are incompatible with the obtained with theoretical calculations. The  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$  reaction thermal cross section agrees with values obtained by other authors, within the experimental uncertainties.



# Agradecimentos

A Nora Lía Maidana e Vito Roberto Vanin pelos ensinamentos e participação em muitas etapas da execução deste trabalho, atuando sempre com seriedade e otimismo.

A Marina Koskinas e Mauro Dias pelas sugestões para o bom andamento do trabalho e ajuda na preparação, irradiação e medida das amostras.

A Josep Sempau, José Fernández-Varea e Fransesc Salvat pela hospitalidade e ajuda nas simulações com o PENELOPE.

Aos funcionários do IFUSP: Alex Silva, Alexandre Malafrente, Alfredo Bonini, Bianca Soares, Carlos Quinarelli, Eduardo Monteiro, Eliana Theodoro, Juliana Peçanha, Luciano Portante, Marcelo Lucena, Rita dos Santos, Roberto Lima, Sérgio Korogui, Wanda Engel e Wilson de Lima pelo suporte técnico prestado e pelas sugestões dadas para superação de dificuldades e aperfeiçoamento de técnicas.

A Adolfo Marra, Ione Yamazaki, André Lapolli e todos os outros técnicos do CRPq que colaboraram na preparação e irradiação das amostras.

A Thereza Borello, José Roberto e Frederico Genezini pelos comentários e sugestões construtivas durante a avaliação de minha monografia de qualificação.

A Joel Mesa pela ajuda com os cálculos teóricos e Otaviano Helene pela ajuda com algumas análises estatísticas.

Aos membros de minha família: Felisberto Ferreira, Keyla de Oliveira, Isaurina Gomes, Marcos Ferreira, Edilaine Rúbia, Martileide Ferreira, José Geraldo Ferreira, Jayane Nunes, Edilene Nunes, José Alves, Jovercina Alves, José Maria, Vicentina de Oliveira, Vera de Oliveira, Sandra de Oliveira, Sueli de Oliveira e Helena de Oliveira por todo auxílio pessoal prestado ao longo desses anos.

A Érica Yamashita por corresponder meu amor e me apoiar em todas minhas atividades.

A Célia Nakano, Patrícia Yamashita, Rafael Nakano, Nobuko Nakano, Rogério Ramalho, José Nakano, Eunice Ceconi, Natsuko Nakano, Maria Yamashita, Tadao Yamashita, Marly Yamashita, Ricardo Hideguchi e Sônia Yamashita por me tratarem como um membro da família.

A Ivanildo dos Santos, Felipe Frigeri, Fernando Rodrigues, Renata da Costa, Eduardo Nascimento, Leandro Mariano, Nathaly Archilha, Tatiane Sudback, Tassiane Sudback, David Bote, Xavi Roca, Marta Bueno, Nicolás Bernal, Martí Duocastella, Arnau Riera, Javier Grande, Natica Roig, David Roma, Carol Martínez, Neivy Pino, Priscila Cheda, Viktor Jahnke, Cristiane Jahnke, Raphael Alves, Aline Costa, Thiago Fiorini, Diogo Tridapalli,

Priscila Santos, Jairo Cavalcante, Zwinglio Guimarães, Pedro Guimarães, Ícaro Salerno, Fernando Rocha, Caio Coelho, Natália Angeluzzi, Tomás Paim, Vitor dos Santos, Raphael Tanabe, Leandro Duarte, Renato Alessandro, Marcus Prates e Flávio Lidio pela amizade e coleguismo ao longo desses anos.

Às agencias de fomento CAPES, CNPq e FAPESP pelo suporte financeiro e pelo atendimento cordial sempre que entrei em contato.

A todos que colaboraram direta ou indiretamente para a execução deste trabalho e não foram supracitados por falta de ciência ou memória do autor.

*“Even today no one has ever seen an atom in a literal sense,  
but the evidence for atoms is more convincing than the  
evidence for some things that many persons have ‘seen’,  
such as miracles and flying saucers.”*

Emilio Gino Segrè,  
“From X-rays to Quarks: Modern Physicists and Their Discoveries”.



Dedicado  
à memória de  
Neuza Gomes,  
minha mãe.



# Sumário

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| <b>1</b> | <b>Introdução</b>   | <b>1</b>  |
| <b>2</b> | <b>Aspectos teóricos</b>  | <b>5</b>  |
| 2.1      | Espectros de nêutrons em um reator . . . . .  | 5         |
| 2.1.1    | Fluxo térmico . . . . .   | 7         |
| 2.1.2    | Fluxo epitérmico . . . . .  | 7         |
| 2.2      | Reações nucleares com nêutrons . . . . .  | 8         |
| 2.2.1    | Seção de choque . . . . .   | 10        |
| 2.3      | Formalismo de Westcott . . . . .  | 15        |
| 2.3.1    | Integral de ressonância . . . . .   | 17        |
| <b>3</b> | <b>Metodologia</b>  | <b>19</b> |
| 3.1      | Depressão de fluxo e auto-blindagem . . . . .   | 20        |
| 3.2      | Atividade residual de um alvo irradiado . . . . .   | 21        |
| 3.3      | Método da razão de cádmio . . . . .   | 22        |
| 3.4      | Núcleos-produto das reações de interesse . . . . .  | 24        |
| 3.5      | Determinação da atividade usando um sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$ . . . . . | 26        |
| 3.5.1    | Método da extrapolação da eficiência . . . . .  | 29        |
| 3.5.2    | Método do traçador . . . . .  | 30        |
| 3.6      | Determinação da atividade usando um detector de raios $\gamma$ . . . . .                  | 31        |
| 3.7      | Métodos estatísticos . . . . .  | 34        |
| <b>4</b> | <b>Procedimento Experimental</b>  | <b>37</b> |
| 4.1      | Preparação dos alvos . . . . .  | 37        |
| 4.1.1    | Alvos de enxofre . . . . .  | 39        |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 4.1.2    | Alvos contendo potássio . . . . .  | 40         |
| 4.2      | Irradiações realizadas . . . . .   | 42         |
| 4.2.1    | Irradiações do enxofre . . . . .   | 43         |
| 4.2.2    | Confecção das fontes de $^{35}\text{S}$ . . . . .                                | 44         |
| 4.2.3    | Irradiações do nitrato de potássio . . . . .                                     | 46         |
| 4.3      | Descrição dos sistemas de detecção . . . . .                                     | 48         |
| 4.3.1    | Sistema de detecção $4\pi\beta-\gamma$ . . . . .                                 | 48         |
| 4.3.2    | Detectores de germânio hiper puro . . . . .                                      | 53         |
| <b>5</b> | <b>Simulações</b>  | <b>63</b>  |
| 5.1      | Correção do fluxo . . . . .  | 64         |
| 5.2      | Extrapolação da eficiência no detector $4\pi\beta-\gamma$ . . . . .              | 68         |
| 5.3      | Correção da eficiência no detector HPGe . . . . .                                | 76         |
| <b>6</b> | <b>Resultados e Discussão</b>  | <b>81</b>  |
| 6.1      | Caracterização das fontes radioativas . . . . .                                  | 81         |
| 6.1.1    | Caracterização dos monitores de fluxo . . . . .                                  | 82         |
| 6.1.2    | Caracterização do enxofre . . . . .  | 83         |
| 6.1.3    | Caracterização do $\text{KNO}_3$ . . . . .                                       | 84         |
| 6.2      | Determinação das secções de choque térmicas e integrais de ressonância . . . . . | 86         |
| 6.2.1    | Reação $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$ . . . . .                         | 86         |
| 6.2.2    | Reação $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ . . . . .                         | 88         |
| 6.2.3    | Seções de choque em função da energia . . . . .                                  | 91         |
| <b>7</b> | <b>Conclusões</b>  | <b>99</b>  |
|          | <b>Lista de Figuras</b>  | <b>101</b> |
|          | <b>Lista de Tabelas</b>  | <b>105</b> |
|          | <b>Referências Bibliográficas</b>  | <b>107</b> |

# Capítulo 1

## Introdução

No ano de 1930, Walther Bothe e Richard Becker descobriram um tipo de irradiação nuclear que em 1932 James Chadwick identificou e nomeou como sendo o nêutron, uma partícula com massa semelhante à do próton, mas sem carga elétrica. Logo em seguida, no mesmo ano, Werner Karl Heisenberg concluiu que o núcleo atômico seria formado apenas por prótons e nêutrons [1]. Em 1935 Enrico Fermi e seus colaboradores [2, 3] descobriram que os nêutrons podiam ser desacelerados por sucessivas colisões com núcleos atômicos. Também mostraram que a seção de choque de captura para alguns elementos era inversamente proporcional à velocidade dos nêutrons. Entretanto, para alguns elementos havia faixas de energia onde a seção de choque era muito maior que a esperada e uma série de pesquisadores apresentaram dados que só seriam explicados e denominados como “ressonâncias” em 1936 por Gregory Breit e Eugen Wigner [4].

A partir dessas descobertas nasceu a física dos nêutrons, que tem sido estudada e aperfeiçoada exaustivamente devido a abrangência de fenômenos relacionados e a aplicabilidade em novas tecnologias, como por exemplo: decaimento  $\beta$  [5], captura eletrônica [6], espalhamento e captura pelo núcleo atômico [7], momento de dipolo elétrico do nêutron [8], estudo da interação nuclear com a observação de multi-nêutrons [9, 10], estrelas de nêutrons [11], análise por ativação de nêutrons [12, 13], tratamento de câncer usando a captura de nêutrons pelo boro [14], análise de materiais por espalhamento de nêutrons [15], lentes para nêutrons [16], determinação de água no solo [17] etc.

No âmbito experimental, o estudo de nêutrons se faz com reatores de fissão, aceleradores de partículas e fontes radioativas, como por exemplo, plutônio-berílio(PuBe), amerício-

berílio(AmBe) e amerício-lítio(AmLi). Os métodos utilizados para a observação dos nêutrons têm como base a intenção de forçá-los a interagir com o núcleo atômico, sendo espalhados ou capturados.

A captura de nêutrons pelo núcleo atômico é um mecanismo importante na produção de elementos radioativos em reatores nucleares [18], na obtenção de elementos utilizados em física médica [19] e nos processos de nucleossíntese de interesse astrofísico [20].

Nesse contexto se faz importante o conceito de seção de choque de nêutrons, uma grandeza com dimensão de área que representa a probabilidade de interação do nêutron com um núcleo. O valor da seção de choque de captura de nêutrons para um núcleo específico pode ser estimada teoricamente a partir de modelos nucleares. No entanto, devido às limitações dos modelos, as estimativas teóricas podem apresentar valores inconsistentes com os resultados experimentais [21, 22]. Como consequência dessas condições as curvas de seção de choque em função da energia de incidência dos nêutrons são obtidas a partir de resultados experimentais para alguns valores de energia associados a modelos de interação e estrutura nuclear.

O método para determinar experimentalmente o valor de uma seção de choque consiste em induzir a reação de interesse em um alvo com número conhecido de núcleos e observar a quantidade de reações ocorridas. A constatação e quantificação das reações ocorridas é feita por meio de detecção da radiação produzida durante a reação ou como consequência da reação.

Os processos de detecção de partículas costumam envolver interações eletromagnéticas, fazendo com que a quantificação do processo de detecção daquelas dotadas de carga elétrica seja mais eficiente que a de partículas neutras, já que para estas serem detectadas devem interagir com a matéria de forma que as partículas resultantes possam ser observadas por meio das interações com partículas carregadas. Os estudos e experimentos feitos neste trabalho envolvem a detecção de partículas neutras (nêutrons e fótons) e carregadas (partículas  $\beta$ ).

A interação do nêutron com a matéria é observada neste trabalho por meio do processo de captura de nêutrons por núcleos atômicos, cujos produtos costumam ser núcleos instáveis que decaem emitindo radiação beta e fótons gama.

Os objetivos deste trabalho são determinar a seção de choque térmica e integral de resso-

nância das reações  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$  e  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ . O primeiro deles já foi estudado experimentalmente, mas tais medidas foram realizadas há mais de uma década [23, 24, 25, 26, 27, 28] e os valores obtidos se mostram inconsistentes, como é exposto no capítulo 6.

Já para a reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ , não há registros da determinação experimental da seção de choque de absorção de nêutrons ou até mesmo de sua obtenção por captura sucessiva de nêutrons. O que existe a respeito são avaliações do comportamento da seção de choque com a energia dos nêutrons por meio de cálculos com modelos nucleares baseados nos comportamentos de núcleos com número de nucleóns similares ao  $^{42}\text{K}$  [29, 30].

A captura sucessiva de nêutrons por um núcleo é um fenômeno de difícil observação devido a atividade do produto final ser muito pequena comparada à atividade do nuclídeo produto da primeira captura. As medidas de seção de choque de captura de nêutrons pelo  $^{41}\text{K}$  obtidas no trabalho anterior [31, 32] serão usados por entendermos que são dados mais confiáveis para o cálculo da seção de choque de captura de nêutrons pelo  $^{42}\text{K}$ , cuja atividade deve ser bem determinada.

As principais contribuições deste trabalho são então:

- Obtenção da seção de choque térmica e integral de ressonância da reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ .
- Apresentação de um método para se obter a atividade  $\beta$  do  $^{35}\text{S}$  distinto dos já publicados em trabalhos anteriores e a determinação inédita da integral de ressonância da reação  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$ .
- Aprimoramento dos cálculos de fatores de correção para o fluxo de nêutrons e eficiência de detecção usando programas computacionais baseados no método de Monte Carlo.
- Avaliação do comportamento da curva de seção de choque de captura de nêutron em função da energia do nêutron incidente baseada nos valores obtidos para seção de choque térmica e integral de ressonância para as reações  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  e  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$ .

★ ★ ★

No capítulo 2 são explicados modelos teóricos considerados no presente trabalho, como o comportamento esperado dos nêutrons em um reator do tipo piscina e a física das reações nucleares. Os métodos para se obter valores de seção de choque de captura de nêutrons por meio de medidas de atividade são apresentados no capítulo 3. Os arranjos experimentais são detalhados no capítulo 4 juntamente com a explicação das metodologias de preparação, irradiação e determinação de atividade das amostras. As simulações realizadas para calcular fatores de correção necessários ao experimento são explicadas no capítulo 5. O capítulo 6 se dedica a apresentar a análise dos dados e a discussão dos resultados obtidos experimentalmente. Finalmente as conclusões obtidas neste trabalho, como o significado físico das grandezas obtidas, as vantagens e desvantagens dos métodos usados e recomendações para trabalhos futuros estão no capítulo 7.

## Capítulo 2

### Aspectos teóricos

Trataremos neste capítulo dos conceitos teóricos que permeiam o processo de ativação radioativa por nêutrons de uma amostra em um reator nuclear tipo piscina. São descritas as principais características do fluxo de nêutrons dentro do reator. A física das reações nucleares induzidas pela incidência de nêutrons em um núcleo atômico é apresentada brevemente, mostrando com alguma profundidade os modelos usados neste trabalho. Também será explicado o formalismo adotado para o cálculo de seção de choque de nêutrons das reações em questão.

#### 2.1 Espectros de nêutrons em um reator

Nêutrons livres têm meia vida de 885,7(8) segundos [33] e podem ser encontrados no fundo radioativo natural ou obtidos a partir de fontes radioativas, aceleradores de partículas e reatores nucleares.

O reator IEA-R1m (Instituto de Energia Atômica – Reator 1 modificado) do IPEN-CNEN/SP (Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares associado a Universidade de São Paulo e gerenciado pela Comissão Nacional de Energia Nuclear) é um reator de 5 MW de potência operando entre 3 e 5 MW [34] cujo moderador é água e o combustível urânio enriquecido, com 20% de  $^{235}\text{U}$ .

Em pesquisas envolvendo reatores é essencial o conhecimento da distribuição de energia dos nêutrons assim como sua fluência (mais precisamente a taxa de fluência, comumente denominada “fluxo”), para avaliar resultados experimentais. Entretanto, determinar esses valores com precisão, mesmo para apenas uma posição de interesse, não é tarefa trivial,

tornando-se então impossível para todos os pontos do reator devido a variações da potência ao longo do tempo (pois reatores são sistemas dinâmicos) e da influência dos materiais e equipamentos que envolvem o funcionamento do reator. Com tais perturbações, é forçosa a utilização de monitores de fluxo em todo experimento no qual sejam relevantes esses dados.

Esses aspectos fazem dos reatores nucleares instalações únicas, portanto é necessário, para se comparar resultados experimentais obtidos em diferentes reatores, seguir procedimentos e correções padronizadas.

Os nêutrons podem ser classificados arbitrariamente segundo sua energia de forma a explicitar algumas características de seu espectro ou se adequar a experimentos. Segue abaixo uma possível classificação [35]:

- nêutrons térmicos são os de energia até 0,5 eV; a maior parte deles é resultado do processo de moderação, que consiste em uma série de colisões com os núcleos atômicos do material moderador até que estes atinjam o equilíbrio térmico com o meio;
- nêutrons epitérmicos são os de energia entre 0,5 eV e 2 MeV; normalmente são os nêutrons que ainda estão em processo de moderação, cuja distribuição de energia é aproximadamente proporcional ao inverso do valor da energia;
- nêutrons rápidos são os de energia entre 500 keV e 20 MeV, normalmente provindos de reações nucleares dos elementos combustíveis;
- nêutrons ultrarrápidos apresentam energias maiores que 20 MeV e raramente são produzidos em um reator nuclear.

O espectro de um reator está composto por nêutrons da fissão, epitérmicos e térmicos. O primeiro deles depende do combustível usado<sup>1</sup> e a proporção dos outros dois depende, além do tipo de combustível, do moderador, da distância ao elemento combustível e outras características estruturais do reator.

A distribuição do fluxo de nêutrons da fissão por unidade de energia  $\phi(E)$ , que corresponde aos nêutrons produzidos no processo da fissão, é dado aproximadamente por [36]:

---

<sup>1</sup>Normalmente são usados como combustível núcleos pesados que fissionam ao interagir com nêutrons térmicos. A distribuição estatística da energia dos nêutrons emitidos é distinta para cada isótopo. Para o <sup>235</sup>U, por exemplo, o espectro apresenta um pico em  $\approx 1$  MeV com largura a meia altura de  $\approx 1$  MeV.

$$\phi(E) dE = 0,484e^{-\frac{E}{E_W}} \sinh\left(\sqrt{\frac{2E}{E_W}}\right) dE \quad (2.1)$$

onde  $E$  é a energia do nêutron em MeV e  $E_W$  é uma energia de referência, normalmente adotada como 1 MeV. Não obstante, assim que esses nêutrons abandonam o ponto onde foram emitidos o espectro começa a ser modificado pela interação deles com os elementos estruturais do reator e com o moderador. Os nêutrons perdem energia conforme colidem com os núcleos atômicos em seu entorno e a poucos centímetros de distância de um elemento combustível é possível observar um espectro composto por duas regiões de comportamento distinto: região térmica e epitérmica.

### 2.1.1 Fluxo térmico

Se considerarmos que os nêutrons se comportam como um gás ideal quando moderados, a densidade de nêutrons por unidade de energia é dada pela distribuição de Maxwell e conseqüentemente o fluxo de nêutrons por unidade de energia, ou simplesmente densidade de fluxo de nêutrons, pode ser bem descrita por [1]:

$$\phi(E) dE = \Phi_{th} e^{-\frac{E}{E_T}} \frac{E}{E_T} \frac{dE}{E_T} \quad (2.2)$$

onde  $\Phi_{th}$  é a integral da densidade do fluxo de nêutrons sobre todas as energias possíveis, chamado de fluxo térmico, e  $E_T$  é a energia cinética correspondente a velocidade mais provável dos nêutrons, dada por:

$$E_T = kT \quad (2.3)$$

onde  $k$  é a Constante de Boltzmann e  $T$  é a temperatura dos nêutrons no moderador, dada por  $T = T_m (1 + 0,02044kT_m)$ , e  $T_m$  é a temperatura do moderador [1].

### 2.1.2 Fluxo epitérmico

A distribuição da densidade de fluxo de nêutrons em processo de moderação, sem captura de nêutrons pelo material moderador, pode ser aproximada por [35]:

$$\phi(E) dE = \eta \frac{dE}{E} \quad (2.4)$$

onde  $\eta$  é uma constante. Assim, o fluxo epitérmico total,  $\Phi_{epi}$ , é dado por:

$$\Phi_{epi} = \int_{E_1}^{E_2} \eta \frac{dE}{E} = \eta \ln \left( \frac{E_2}{E_1} \right) \quad (2.5)$$

onde  $E_1$  e  $E_2$  são energias entre as quais se supõe prevalecer este comportamento, normalmente  $5 \times 10^{-7}$  e 2 MeV, respectivamente. Essa hipótese de que a distribuição da densidade de fluxo epitérmico depende do inverso da energia supõe válido que:

- o meio em que os nêutrons estão sendo moderados é homogêneo e infinito;
- as fontes de nêutrons rápidos estão homogeneamente distribuídas no espaço;
- o poder de moderação do meio não depende da energia;
- durante o processo de moderação não existe absorção e
- as partículas do moderador se comportam como partículas livres com a mesma massa que os nêutrons.

Na prática, essas afirmações não são obedecidas a risca, então a densidade do fluxo epitérmico numa determinada posição de irradiação não é descrita exatamente como o inverso da energia, mas pode ser melhor aproximada por:

$$\phi(E) dE = \eta \frac{dE}{E^{1+\alpha}} \quad (2.6)$$

onde  $\alpha$  é um parâmetro que depende da distância ao elemento combustível e das condições de contorno do meio moderador e outros materiais próximos à posição em análise. Tal parâmetro pode ser determinado experimentalmente para um ponto do reator <sup>2</sup> e se mantém constante se não há mudanças na distribuição de fontes e outros componentes estruturais do reator [35].

## 2.2 Reações nucleares com nêutrons

Apesar de seu nome sugerir o contrário, o nêutron é capaz de interagir com a matéria por meio das quatro forças fundamentais da natureza. O presente trabalho tem foco na interação

---

<sup>2</sup>Um método bem difundido de se obter o parâmetro  $\alpha$  é a irradiação simultânea de diferentes monitores de fluxo cobertos por cádmio [37].

do nêutron com o núcleo atômico, que é dominada pelas interações nucleares forte (no caso de reações) e fraca (no caso de decaimento de núcleos instáveis).

As reações nucleares são caracterizadas pelos estados inicial e final das partículas e núcleos envolvidos. Uma reação nuclear específica pode ser identificada por:



ou, em uma notação mais compacta,  $X(a, b)Y$ . Essa notação significa que a partícula incidente,  $a$ , interage com o núcleo alvo,  $X$ , resultando em um núcleo composto que decai para o núcleo produto,  $Y$ , com emissão de uma partícula ou até mesmo outro núcleo, representado por  $b$ . Também é possível a emissão de um conjunto de partículas ou núcleos e a notação se torna  $X(a, mb)Y$  para  $m$  partículas e  $X(a, bcd \dots ZWV \dots)Y$  para diferentes núcleos e partículas.

Cada conjunto de partícula incidente e núcleo alvo que interagem é chamado canal de entrada. Analogamente, cada conjunto de núcleos produto e partículas emitidas é chamado de canal de saída. Cada canal é definido pelo estado quântico de suas partículas e núcleos. Um canal de entrada pode dar origem a distintos canais de saída, assim como um canal de saída pode ser produto de distintos canais de entrada.

É possível encontrar em um reator nêutrons com energias menores que fração de eV até 20 MeV. Nessa faixa de energia os nêutrons interagem com os núcleos atômicos por meio das seguintes reações:

- $X(n, n)X$ : o nêutron transfere parte de sua energia cinética no núcleo atômico sem alterar a estrutura do núcleo. Essa reação é chamada de espalhamento elástico.
- $X(n, p)Y$ ,  $X(n, 2n)Y$ ,  $X(n, \alpha)Y$  etc: as reações em que o núcleo composto emite uma ou mais partículas pesadas são chamadas reações de limiar, pois necessitam que o nêutron incidente possua uma energia mínima, chamada de energia de limiar, para ativar tais canais de saída. Entre essas reações está o espalhamento inelástico  $X(n, n')X'$ , onde o nêutron interage com o núcleo formando um núcleo composto que ejeta um nêutron com direção e energia distintas da energia do nêutron incidente (nada impede que a direção seja a mesma, mas a probabilidade é pequena).

- ${}^A X(n, \gamma) {}^{A+1} X$ : o nêutron é incorporado ao núcleo e dá origem a um núcleo em estado excitado que decai emitindo fótons gama. Essa reação é chamada de captura radioativa e é a reação de interesse do presente trabalho.
- $X(n, f)Y$ : a interação do nêutron com um núcleo pesado pode fazer com que o mesmo se rompa em dois ou mais núcleos emitindo também um ou mais nêutrons, ou seja,  $f$  pode ser  $nZ$ ,  $2nZ$ ,  $nZW$  etc. Essa reação é chamada fissão e o conhecimento e controle sobre ela é essencial para o funcionamento de um reator.

Os estados excitados do núcleo composto apresentam vida média  $\tau$  e, por consequência do princípio de incerteza de Heisenberg, apresentam uma largura de nível  $\Gamma$  que se relacionam por [38]:

$$\Delta E \Delta t \geq \frac{\hbar}{2} \rightarrow \Gamma \tau = \hbar \quad (2.8)$$

Considerando que para o mesmo canal de entrada pode existir mais que um canal de saída, a largura de nível de um estado do núcleo composto é a soma de larguras parciais dos canais de saída. Para o caso das reações de captura radioativa de nêutrons com baixa energia, a largura de nível é dada por:

$$\Gamma = \Gamma_\gamma + \Gamma_n \quad (2.9)$$

onde  $\Gamma_\gamma$  é a largura parcial do nível excitado que decai emitindo radiação  $\gamma$  e  $\Gamma_n$  é a largura parcial do nível excitado que decai emitindo um nêutron.

### 2.2.1 Seção de choque

Um dos principais aspectos observados das reações nucleares são as probabilidades de se produzir um canal de saída específico dada uma situação propícia a um canal de entrada. Estas probabilidades são representadas pelo conceito de secção de choque, que é uma grandeza definida como a razão entre o número de eventos do canal de saída por unidade de tempo por núcleo e o número de partículas incidentes por unidade de área por unidade de tempo [39]. Tal razão resulta em uma grandeza com dimensão de área e que, para reações de captura radioativa de nêutrons, apresenta valores típicos da ordem de  $10^{-24} \text{ cm}^2 = 1 \text{ b}$

(barn).

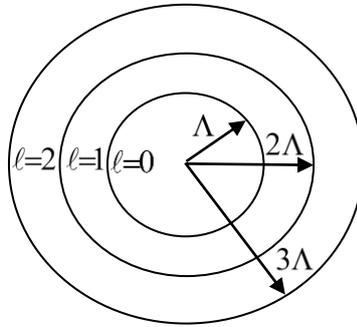
A secção de choque de captura de um nêutron por um núcleo atômico está diretamente relacionada às propriedades do núcleo alvo e à energia do nêutron incidente. A descontinuidade para os valores de seção de choque com o aumento do número de nêutrons no núcleo, apresentando valores mínimos em núcleos com 20, 50, 82 e 126 nêutrons, foi um dos indícios de que o núcleo atômico poderia ser representado por um modelo de camadas [40].

Reações nucleares ocorrem no âmbito da mecânica quântica, onde um feixe de nêutrons com mesmo momento  $p$  incidindo sobre um núcleo atômico pode ser aproximado por uma onda plana com comprimento de onda de De Broglie  $\lambda$  dado por:

$$\lambda = \frac{h}{p} \quad (2.10)$$

onde  $h$  é a constante de Planck.

Em analogia à teoria clássica de colisões, o parâmetro de impacto dos nêutrons em relação ao núcleo será  $\ell\Lambda$ , onde  $\ell$  é o número quântico do momento angular e  $\Lambda = \lambda/2\pi$ . O feixe de nêutrons que incide no núcleo pode ser dividido em cilindros, como mostrado na figura 2.1.



**Figura 2.1:** Feixe de nêutrons incidindo sobre um núcleo atômico, dividido em cilindros de raio  $\ell\Lambda = \Lambda, 2\Lambda$  e  $3\Lambda$  [41].

O grupo de nêutrons com número quântico de momento angular  $\ell$  em relação ao núcleo alvo está na região entre o círculo de raio  $\ell\Lambda$  e o círculo de raio  $(\ell + 1)\Lambda$ . Baseando-se nisto é possível definir um limite superior para a secção de choque de absorção de nêutrons,  $\sigma$ , com momento angular  $\ell$  como [41]:

$$\sigma \leq \pi (\ell + 1)^2 \Lambda^2 - \pi \ell^2 \Lambda^2 = (2\ell + 1) \pi \Lambda^2 \quad (2.11)$$

O valor máximo para a seção de choque de captura ocorre quando a energia de incidência do nêutron,  $E$ , é igual a energia de ressonância,  $E_r$ , de uma reação que resulta em um nível excitado do núcleo composto. Para energias próximas à energia de ressonância a seção de choque de captura de nêutron é dada pela fórmula de Breit-Wigner [4, 40]

$$\sigma = (2\ell + 1) \pi \Lambda^2 z(I, J) \frac{\Gamma_n \Gamma_\gamma}{(E - E_r)^2 + (\frac{1}{2}\Gamma)^2} \quad (2.12)$$

onde  $z(I, J)$  é a probabilidade dos momentos angulares do núcleo alvo e do spin do nêutron,  $I$  e  $S$ , se acoplarem aleatoriamente resultando no momento angular do núcleo composto,  $J$ , dada por:

$$z(I, J) = \frac{2J + 1}{(2S + 1)(2I + 1)} \quad (2.13)$$

Para energias acima da energia de ressonância, a reação de captura de um nêutron por um núcleo pode ser descrita, em termos da mecânica ondulatória, como a incidência de uma onda plana (representando o nêutron) sobre um potencial (representando o núcleo) e é parcialmente absorvida. Um modelo bem sucedido nesse tipo de descrição é o modelo ótico<sup>3</sup>, onde o efeito do núcleo na partícula incidente é descrito por um potencial  $-U$  e a possibilidade de formação de um núcleo composto é descrita por um potencial imaginário  $-iW$ . A equação de Schrödinger para o espalhamento por esse potencial complexo é [42, 40]:

$$\nabla^2 \psi + \frac{2m}{\hbar^2} (E + U + iW) \psi = 0 \quad (2.14)$$

onde  $m$  é a massa do nêutron e  $\psi$  é dado por:

$$\psi = -\frac{1}{2ikr} \sum_{\ell} (2\ell + 1) P_{\ell}(\cos \theta) (S_{\ell} e^{ikr} - e^{-ikr}) \quad (2.15)$$

onde  $k$  é o número de onda do nêutron,  $r$  é o raio em relação a origem,  $\theta$  é o ângulo de espalhamento e  $S_{\ell}$  são as amplitudes das ondas espalhadas. A partir de  $S_{\ell}$  é possível definir coeficientes de transmissão  $T_{\ell}$ :

---

<sup>3</sup>Chamado assim por analogia do núcleo atômico com uma esfera translúcida.

$$T_\ell = 1 - |S_\ell|^2 \quad (2.16)$$

Para energias abaixo de 1 MeV, as contribuições de ondas com  $\ell > 0$  podem ser ignoradas sem perda significativa de precisão. Apesar do modelo ótico não conseguir reproduzir o comportamento ressonante para a seção de choque, é possível definir que o coeficiente de transmissão para baixas energias é dado por  $T_0 = 1 - |S_0|^2$  e conseqüentemente [40]:

$$\Gamma_n = \frac{\langle D \rangle}{2\pi} T_0 \Rightarrow \Gamma_n \approx \Gamma_{n0} \sqrt{E} \quad (2.17)$$

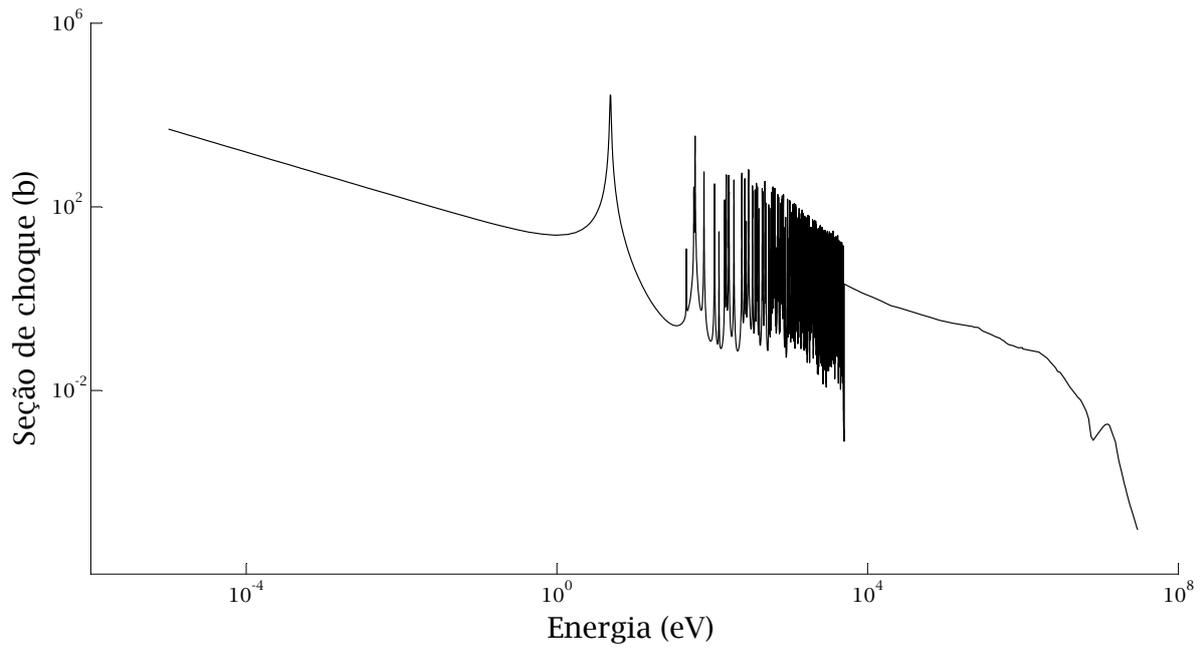
onde  $\langle D \rangle$  é o espaçamento médio de níveis para a energia de ligação do nêutron [43] e  $\Gamma_{n0}$  é um valor médio para a largura de ressonância com a variação de energia. Quando  $E \ll E_r$  a seção de choque pode ser aproximada para:

$$\begin{aligned} \sigma &\cong (2\ell + 1) \pi \Lambda^2 \frac{2J + 1}{(2S + 1)(2I + 1)} \frac{\Gamma_n \Gamma_\gamma}{E_r^2} = \\ &= (2\ell + 1) \pi \left( \frac{\hbar}{\sqrt{2m}} \right)^2 \frac{2J + 1}{(2S + 1)(2I + 1)} \frac{\Gamma_{n0} \Gamma_\gamma}{E_r^2} \frac{1}{\sqrt{E}} \Rightarrow \sigma \propto \frac{1}{\sqrt{E}} \propto \frac{1}{v} \end{aligned} \quad (2.18)$$

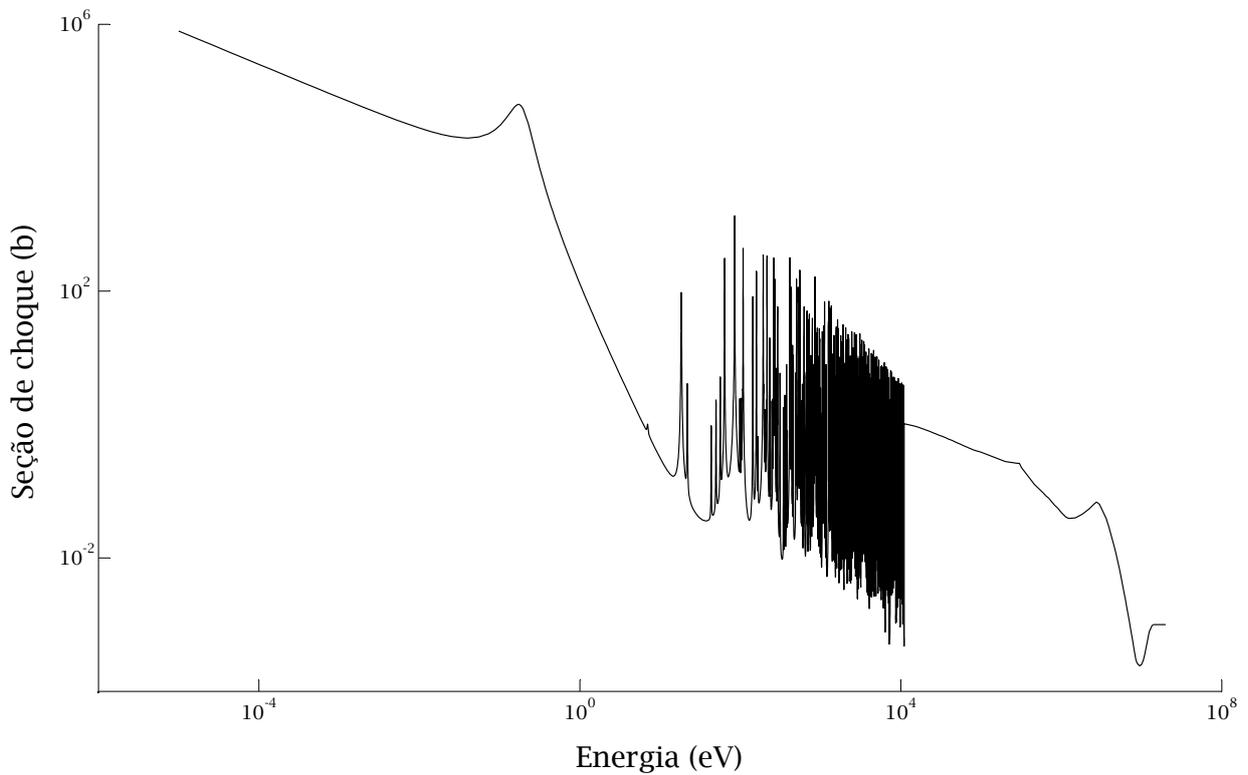
Este comportamento da seção de choque longe da ressonância, que ocorre na região térmica para a maioria dos núcleos com  $A < 50$ , é chamado lei  $1/v$ . Devido a isso é possível, a partir de um valor de seção de choque para uma certa velocidade de nêutrons na região térmica, deduzir o valor da seção de choque para toda uma região distante da ressonância.

Quando o espaçamento médio entre níveis é da mesma ordem de grandeza que o valor médio da largura de ressonância o modelo de ressonância única não é suficiente. Nestes casos é usada a fórmula de Breit-Wigner para múltiplas ressonâncias, que é similar à equação 6.15. Exemplos de seções de choque descritas por múltiplas ressonâncias são apresentados nas figuras 2.2 e 2.3, que também são bons exemplos de como as seções de choque em função da energia podem apresentar diferentes comportamentos para diferentes núcleos.

A fim de permitir a troca de informações no meio científico e comparações entre diferentes medições, convencionou-se apresentar a seção de choque para nêutrons com  $v = 2200$  m/s, correspondente a uma temperatura de moderador  $T_0 = 20,44^\circ C$  e conseqüentemente a uma energia cinética de nêutrons de 0,0253 eV. A seção de choque para essa velocidade é chamada



**Figura 2.2:** Seção de choque de captura de nêutrons em função da energia incidente do nêutron para a reação  $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$  [44, 45].



**Figura 2.3:** Seção de choque de captura de nêutrons em função da energia incidente do nêutron para a reação  $^{113}\text{Cd}(n, \gamma)^{114}\text{Cd}$  [44, 45].

de secção de choque térmica, que simbolizaremos como  $\sigma_0$  ao longo deste trabalho.

Após a reação de captura, a energia de ligação do nêutron dá ao núcleo composto uma energia de excitação de aproximadamente 5 MeV a 10 MeV. Acima de 6 MeV a diferença de energia entre níveis sucessivos é da ordem de 10 eV a 10 keV. Para energias de excitação tão altas do núcleo composto não há teoria conhecida que consiga prever a posição de tais níveis de excitação com precisão [41]. Isso implica que somente por meio de medidas experimentais é possível acessar tais informações e as medidas de seção de choque de captura de nêutron se fazem necessárias por não poderem ser determinadas teoricamente.

### 2.3 Formalismo de Westcott

A taxa de reações produzidas por nêutrons incidentes sobre um material,  $R$ , pode ser expressa como [46]:

$$R = N_0 \int_{E_1}^{E_2} \sigma(E) \phi(E) dE \quad (2.19)$$

onde  $N_0$  é o número de átomos alvo e  $\sigma(E)$  é a secção de choque dependente da energia. Se sobre um material estiver incidindo um feixe monocromático de nêutrons com energia de 0,025 eV, a secção de choque térmica é dada por:

$$\sigma_0 = \frac{R}{N_0 \Phi_0} \quad (2.20)$$

onde  $\Phi_0$  é o fluxo de nêutrons com energia 0,025 eV, também chamado de fluxo convencional, cuja relação com o fluxo em equilíbrio térmico com os átomos do moderador é dada por:

$$\Phi_{th} = \Phi_0 \sqrt{\frac{4T}{\pi T_0}} \quad (2.21)$$

Contudo, como visto na secção 2.1, o fluxo de nêutrons em um reator apresenta uma distribuição em função da energia que não pode ser aproximada para um fluxo monocromático. Portanto é necessário usar um formalismo de ativação de nêutrons que leve em conta a distribuição do fluxo para determinar a secção de choque térmica.

Considerando que o fluxo de nêutrons fora do elemento combustível de um reator é composto por nêutrons termalizados e por nêutrons ainda em processo de termalização,

convenciona-se escrever a distribuição da densidade de nêutrons como [47, 48, 49]

$$n(v) = (1 - f)n_M(v) + fn_e(v) \quad (2.22)$$

onde  $f$  é a fração da distribuição epitérmica na densidade total de nêutrons,  $n_M(v)$  é a distribuição Maxwelliana e  $n_e(v)$  é a função de distribuição da densidade de nêutrons epitérmicos que é dada por:

$$n_e(v) = \frac{n\Delta(v)}{v^2} \sqrt{\frac{2kT\mu}{m}} \quad (2.23)$$

onde  $n$  é a densidade de nêutrons total,  $\mu$  é um fator que depende do material moderador e  $\Delta(v)$  é uma função junção, ou função “degrau”, que tem a finalidade de tornar o espectro contínuo na região de junção entre a distribuição Maxwelliana e a epitérmica [48].

A partir dessas convenções é possível definir uma secção de choque efetiva  $\hat{\sigma}$  para a reação, dada por:

$$\frac{R}{N_0} = \int_0^\infty n(v)\sigma(v)v dv \Rightarrow \frac{R}{N_0} = \Phi_0\hat{\sigma} \quad (2.24)$$

Considerando a equação 2.22, a equação 2.24 pode ser escrita como:

$$\frac{R}{N_0} = (1 - f) \int_0^\infty n_M(v)\sigma(v)v dv + f \int_0^\infty n_e(v)\sigma(v)v dv = \Phi_0\sigma_0(g + rs) \quad (2.25)$$

onde  $g$ ,  $r$  e  $s$  são fatores definidos como:

$$g = \frac{1}{v_0\sigma_0} \int_0^\infty n_M(v)\sigma(v)v dv = \frac{\hat{\sigma}_m}{\sigma_0} \quad (2.26)$$

$$r = \frac{f\sqrt{\pi\mu}}{4} \quad (2.27)$$

$$s = \frac{2}{v_0\sigma_0} \sqrt{\frac{2kT}{m\pi}} \int_0^\infty \left[ \sigma(v) - \frac{v_0\hat{\sigma}_m}{v} \right] \Delta \frac{dE}{E} \quad (2.28)$$

onde  $\hat{\sigma}_m$  é a secção de choque térmica efetiva quando o fluxo de nêutrons é puramente térmico,  $g$  representa uma correção para o caso da secção de choque do material absorvedor não ser proporcional ao inverso da velocidade do nêutron,  $r$  é um fator relacionado a razão entre os fluxos térmico e epitérmico e  $s$  é um fator proporcional a razão entre a integral das regiões ressonantes e a secção de choque térmica. A partir desse formalismo define-se uma grandeza  $I_0$ , conhecida como integral de ressonância reduzida, que representa a probabilidade de interação entre os nêutrons epitérmicos e os núcleos devido às ressonâncias e é dada por:

$$I_0 = \int_0^{\infty} \left[ \sigma(v) - \frac{v_0 \hat{\sigma}_m}{v} \right] \Delta \frac{dE}{E} \quad (2.29)$$

### 2.3.1 Integral de ressonância

Para muitos núcleos a secção de choque apresenta ressonâncias e se faz também interessante a determinação da integral da secção de choque ao longo de uma faixa de energia acima da energia térmica. Em análise por ativação de nêutrons se convencionou usar uma integral ao longo da região de ressonância para nêutrons epitérmicos (nêutrons com energia acima da energia de corte de cádmio), que por simplicidade será chamada nesse trabalho apenas de integral de ressonância e é definida por [35]:

$$I = \int_{E_{Cd}}^{1,2\text{MeV}} \frac{\sigma(E)}{E} dE \quad (2.30)$$

onde  $E_{Cd}$  é a energia de corte de cádmio, que depende da espessura do cádmio usado na medida. No presente trabalho foram usadas cápsulas de cádmio com aproximadamente 0,05 cm de espessura, que proporciona uma energia de corte de cádmio de aproximadamente 0,55 eV [35].

Considerando as equações 2.4 e 2.30, pode-se concluir a seguinte relação [1]

$$\Phi_{epi} = \frac{R}{N_0 I} \ln \left( \frac{1,2}{E_{Cd}} \right), \quad E_{Cd} \text{ em MeV.} \quad (2.31)$$

Se o valor do parâmetro de correção da densidade de fluxo  $\alpha$  da fórmula 2.11 é diferente de zero a integral de ressonância corrigida,  $I(\alpha)$ , é dada por:

$$I(\alpha) = \left(\frac{\bar{E}_r}{E_{eV}}\right)^\alpha I - \left(\frac{\bar{E}_r}{E_{eV}}\right)^\alpha \frac{2\sigma_0}{2\alpha + 1} \sqrt{\frac{E_0}{E_{Cd}}} + 2\sigma_0 \sqrt{\frac{E_0}{E_{Cd}}} \quad (2.32)$$

onde  $\bar{E}_r$  é a energia efetiva de ressonância,  $E_{eV}$  é uma energia de referência adotada como 1 eV [50] e  $E_0 = 0,025$  eV é a energia térmica.

## Capítulo 3

# Metodologia

As medidas de seção de choque das reações  $^{34}\text{S}(n,\gamma)^{35}\text{S}$  e  $^{42}\text{K}(n,\gamma)^{43}\text{K}$  foram consideradas interessantes no panorama atual da física de nêutrons. A seção de choque da reação  $^{34}\text{S}(n,\gamma)^{35}\text{S}$  já foi medida algumas vezes nas últimas décadas e em nenhuma publicação foi apresentado valor experimental para a integral de ressonância da reação. A reação  $^{42}\text{K}(n,\gamma)^{43}\text{K}$  tem como alvo um nuclídeo radioativo obtido pela reação  $^{41}\text{K}(n,\gamma)^{42}\text{K}$ , caracterizando um processo de dupla captura radioativa de nêutrons. A observação de captura consecutiva de nêutrons pelo mesmo núcleo é pouco usual devido sua baixa probabilidade e não há registros publicados da obtenção experimental da seção de choque térmica e integral de ressonância da reação  $^{42}\text{K}(n,\gamma)^{43}\text{K}$ .

O método mais difundido de medida de seção de choque é o método da comparação, que consiste em estimar o valor da seção de choque da reação de interesse a partir da seção de choque de outras reações. O método da comparação única é o mais antigo, difundido e fundamentado, por isso é o método adotado no presente trabalho. Outros métodos existem como por exemplo o método do  $k_0$ , que vem sendo cada vez mais usado pelos laboratórios ao redor do mundo como opção ao método da comparação única [51], por ser mais prático em atividades rotineiras.

Uma série de reações pode ser usada como referência para o método da comparação única. As reações mais usadas são  $^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$ ,  $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$ ,  $^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr}$ ,  $^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97}\text{Zr}$ ,  $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ ,  $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{In}$ ,  $^{152}\text{Sm}(n,\gamma)^{153}\text{Sm}$ ,  $^{186}\text{W}(n,\gamma)^{187}\text{W}$  e  $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ . A reação  $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$  foi adotada como referência no presente trabalho por sua seção de choque apresentar ressonâncias em faixas de energia distantes da energia térmica, como é

possível observar na figura 2.2; pelo tempo de meia vida do  $^{198}\text{Au}$  ser conveniente e pelos valores das grandezas relevantes (seção de choque térmica, integral de ressonância, constante de decaimento, energia dos fótons emitidos e probabilidade de emissão por decaimento) apresentarem boa precisão.

Com o objetivo de medir as secções de choque das reações  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  e  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$ , foram irradiados com nêutrons compostos químicos em estado sólido contendo  $^{41}\text{K}$  e  $^{34}\text{S}$  em quantidade conhecida. As irradiações foram realizadas em um reator tipo piscina, ou seja, sob um fluxo de nêutrons composto pelas distribuições térmica e epitérmica. Para separar os nêutrons incidentes que compõem cada um desses 2 comportamentos foi usado o método da razão de cádmio.

Após a irradiação os alvos deviam conter  $^{43}\text{K}$  e  $^{35}\text{S}$ , dois núcleos instáveis que decaem emitindo partículas  $\beta^-$  (nos dois decaimentos) e  $\gamma$  (somente no decaimento do  $^{43}\text{K}$ ). Detectando tal radiação foi possível determinar qual fração dos núcleos capturou nêutrons e então inferir valores para as respectivas seções de choque.

A perspectiva de que, ao medir a atividade das amostras contendo  $^{35}\text{S}$  usando um sistema com eficiência maior que os sistemas reportados nos trabalhos anteriores, seria possível medir a integral de ressonância e obter novo valor para a seção de choque térmica levou à escolha do sistema  $4\pi\beta-\gamma$ .

A radiação  $\gamma$  proveniente do  $^{43}\text{K}$  já foi observada no trabalho anterior [31] usando detectores de germânio hiper puro, portanto neste trabalho foi usada uma metodologia similar para o cálculo da atividade a partir das medidas.

### 3.1 Depressão de fluxo e auto-blindagem

O fluxo de nêutrons em um certo ponto da piscina do reator é basicamente o resultado do processo de moderação dos nêutrons emitidos na fissão dos elementos combustíveis e pela interferência da aparelhagem envolvida na estrutura do reator. A introdução de um corpo composto por um material com secção de choque de absorção de nêutrons considerável implica numa diminuição local do fluxo devido a mudança do meio e maior absorção de nêutrons [1, 35]. Esse efeito é chamado depressão de fluxo e é representado por uma razão  $H = \Phi_S/\Phi$ , onde  $\Phi_S$  é o fluxo na superfície do corpo e  $\Phi$  é o fluxo sem a presença da folha,

ou simplesmente o fluxo não perturbado.

Outro efeito que acontece ao irradiar-se um corpo extenso é a auto-blindagem, que ocorre devido ao fato dos nêutrons serem absorvidos nas camadas superficiais do alvo e implica que as partes mais internas do mesmo fiquem expostas a fluxos menores que as mais externas. Esse efeito por sua vez é representado pela razão  $G = \bar{\Phi}/\Phi_S$ , onde  $\bar{\Phi}$  é o fluxo médio dentro do alvo.

As medidas realizadas no presente trabalho consistem em inserir corpos extensos na piscina do reator para, em seguida, medir suas atividades, portanto os efeitos descritos acima devem ser levados em conta. O fluxo calculado com a atividade dos alvos é o  $\bar{\Phi}$  e o que se pretende determinar é o  $\Phi$ , portanto o fator  $F = G \times H = \bar{\Phi}/\Phi$  deve ser utilizado nos cálculos de fluxo. Para calcular esse valor foram realizadas simulações usando o programa MCNP5 (*Monte Carlo N-Particle Version 5*), que são detalhadas na seção 5.1.

### 3.2 Atividade residual de um alvo irradiado

O processo de captura de nêutrons consiste na incorporação de um nêutron a um núcleo atômico formando um novo núcleo em um estado excitado e muitas vezes instável. Para alvos estáveis que, após a irradiação resultam em núcleos radioativos, a variação em relação ao tempo do número de núcleos alvo  $N_0$ , do número de núcleos formados pela primeira captura de nêutrons  $N_1$  (com constante de decaimento  $\lambda_1$ ) e do número de núcleos formados pela segunda captura  $N_2$  (com constante de decaimento  $\lambda_2$ ) é dada em notação matricial por [52]:

$$\frac{d}{dt} \begin{bmatrix} N_0 \\ N_1 \\ N_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -\hat{\sigma}_1\Phi_0 & 0 & 0 \\ \hat{\sigma}_1\Phi_0 & -(\lambda_1 + \hat{\sigma}_2\Phi_0) & 0 \\ 0 & \hat{\sigma}_2\Phi_0 & -\lambda_2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} N_0 \\ N_1 \\ N_2 \end{bmatrix} \quad (3.1)$$

onde  $\hat{\sigma}_1$  é a secção de choque de absorção de nêutrons do núcleo alvo,  $\hat{\sigma}_2$  é a secção de choque de absorção de nêutrons do núcleo produto da primeira captura,  $\Phi_0$  é o fluxo de nêutrons com energia 0,025 eV e  $t$  é o tempo, cuja contagem se inicia juntamente com a irradiação. Essas equações diferenciais têm como solução:

$$N_0(t) = N_0 e^{-\sigma_1\Phi_0 t} \quad (3.2)$$

$$N_1(t) = \frac{N_0 \hat{\sigma}_1 \Phi_0}{\lambda_1 + (\hat{\sigma}_2 - \hat{\sigma}_1) \Phi_0} (e^{-\hat{\sigma}_1 \Phi_0 t} - e^{-(\hat{\sigma}_2 \Phi_0 + \lambda_1)t}) \quad (3.3)$$

$$N_2(t) = N_0 \hat{\sigma}_2 \hat{\sigma}_1 \Phi_0^2 \left( \frac{e^{-\hat{\sigma}_1 \Phi_0 t}}{[\lambda_1 + (\hat{\sigma}_2 - \hat{\sigma}_1) \Phi_0] [\lambda_2 - \hat{\sigma}_1 \Phi_0]} + \frac{e^{-(\hat{\sigma}_2 \Phi_0 + \lambda_1)t}}{[\lambda_1 + (\hat{\sigma}_2 - \hat{\sigma}_1) \Phi_0] [\lambda_2 - \lambda_1 - \hat{\sigma}_2 \Phi_0]} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{[\lambda_2 - \hat{\sigma}_1 \Phi_0] [\lambda_2 - \lambda_1 - \hat{\sigma}_2 \Phi_0]} \right) \quad (3.4)$$

Após o término da irradiação, no caso de alvos estáveis, o número de núcleos alvo se mantém constante e os núcleos produto passam a obedecer a lei do decaimento exponencial, que pode ser escrita como:

$$A(t_e) = A_0 e^{-\lambda_i t_e} = \lambda N_f e^{-\lambda_i t_e} \quad (3.5)$$

onde  $A$  é a atividade do alvo após a irradiação,  $A_0$  é a atividade do alvo no fim da irradiação,  $N_f$  é o número de núcleos formados ao longo da irradiação (equivalente a  $N_1(t_i)$  e  $N_2(t_i)$ , onde  $t_i$  é o tempo de duração da irradiação) e  $t_e$  é o tempo transcorrido após o término da irradiação até o início das medidas, também denominado tempo de espera.

### 3.3 Método da razão de cádmio

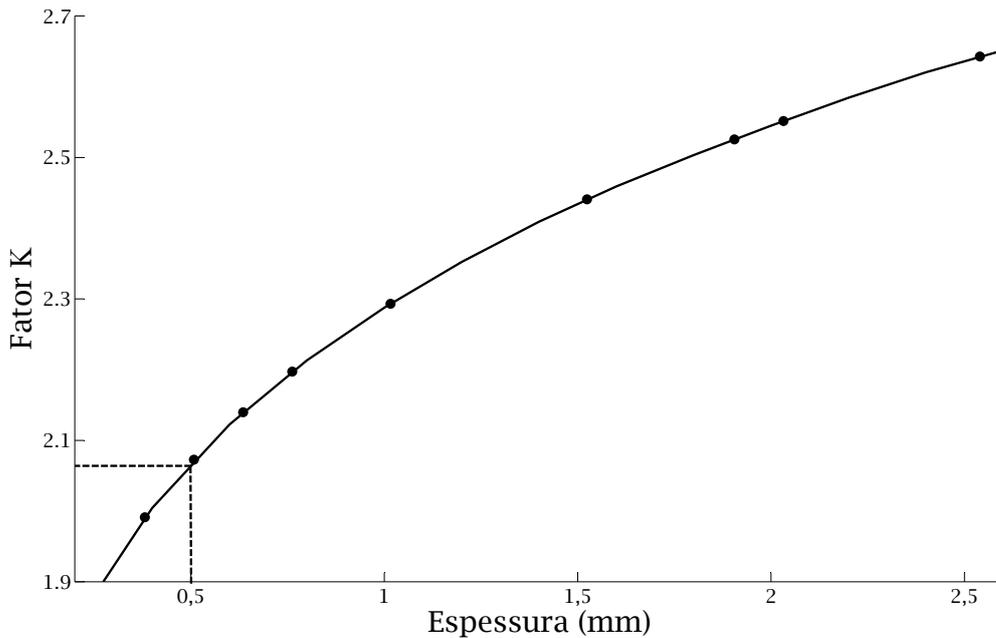
O cádmio natural é composto de oito isótopos sendo um deles o  $^{113}\text{Cd}$  (com abundância isotópica de 12,22%), com secção de choque térmica de  $2,06(4) \times 10^4$  barns e integral de ressonância da ordem de 100 barns, como pode ser observado na figura 2.3. Essas características fazem desse material um bom filtro para medidas de secção de choque, pois ele apresenta uma das maiores probabilidades de interação para nêutrons térmicos entre os núcleos estáveis. Entretanto o cádmio não é um filtro perfeito e por isso é necessária uma metodologia que leva em conta a transmissão de nêutrons térmicos e a absorção de nêutrons epitérmicos.

O método da razão de cádmio consiste em fazer duas irradiações simultâneas do mesmo material acompanhado de monitores de fluxo idênticos, sendo um conjunto de amostra e monitor envolto pela cápsula de cádmio e outro conjunto descoberto. Após a irradiação são determinadas as atividades induzidas por unidade de massa nos alvos e a razão entre a atividade de um material irradiado descoberto,  $A_{Total}$ , e a atividade do material irradiado

sob cádmio,  $A_{Cd}$ , é chamada de razão de cádmio,  $R_{Cd}$  [47, 49]:

$$R_{Cd} = \frac{A_{total}}{A_{Cd}} = \frac{g + rs}{r \left( s + \frac{1}{K} \sqrt{\frac{T}{T_0}} \right)} \quad (3.6)$$

onde  $K$  é um parâmetro que corrige a transmissão através do cádmio dos nêutrons com energia abaixo da energia de corte de cádmio e, portanto, depende da espessura da cápsula de cádmio usada. Westcott [47] calculou valores de  $K$  para diferentes espessuras de cádmio, que são mostrados na figura 3.1, juntamente com uma curva de interpolação por spline [53]. As cápsulas de cádmio usadas no presente trabalho apresentavam espessura média de 0,5 mm, portanto o valor adotado para  $K$  foi de 2,07, como mostra a linha pontilhada na figura 3.1.



**Figura 3.1:** Valores do parâmetro  $K$  para diferentes espessuras calculados por [47] e interpolação por spline. Os segmentos de reta tracejados paralelos aos eixos indicam o valor usado no presente trabalho.

A razão de cádmio do monitor de fluxo fornece a razão entre os fluxos térmico e epitérmico ponderada pela seção de choque térmica e integral de ressonância da reação de referência. Por esse método é possível determinar o valor do fator  $r$  e calcular o fluxo térmico usando a relação:

$$\Phi_{th} = \frac{A}{N_0\sigma_0(g+rs)}\sqrt{\frac{4T}{\pi T_0}} \quad (3.7)$$

onde  $A$  é a atividade do monitor de fluxo descoberto. Outra forma equivalente de calcular o fluxo térmico usando o método da razão de cádmio é [54]

$$\Phi_{th} = \frac{(A - F_{Cd}A_{Cd})R'}{N_0\sigma_0(g+rs)(R'-1)}\sqrt{\frac{4T}{\pi T_0}} \quad (3.8)$$

onde  $A_{Cd}$  é a atividade saturada do monitor de fluxo irradiado sob a cobertura de cádmio,  $F_{Cd}$  é um fator de correção para a razão de cádmio dado por:

$$F_{Cd} = \left( \frac{G_{epi}s}{g\bar{E}_r^\alpha} \sqrt{\frac{T_0}{T}} + \frac{1}{K} \right) / \left( f_\delta G_{epi} \left( \frac{s}{g\bar{E}_r^\alpha} \sqrt{\frac{T_0}{T}} - W \right) + \frac{1}{K} \right) \quad (3.9)$$

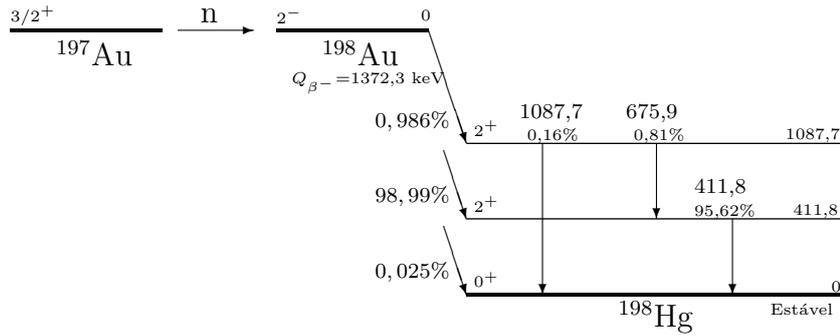
onde  $W$  é uma correção para reações com seção de choque que não obedecem à lei  $1/v$  na região do corte de cádmio e  $f_\delta$  é um fator de transmissão de nêutrons epitérmicos através do cádmio. Na equação 3.8 o fator  $R'$  é a razão de cádmio para um absorvedor ideal dada por:

$$R' = \frac{K}{r} \sqrt{\frac{T_0}{T}} \quad (3.10)$$

A razão de cádmio do alvo informa, portanto, a razão entre a seção de choque térmica e integral de ressonância da reação de interesse ponderada pelos fluxos térmico e epitérmico. Usando a equação 3.6 com o valor de  $r$  obtido com os monitores de fluxo é possível obter o valor de  $s$  da reação e, usando novamente a equação 3.7 ou 3.8, é possível obter a seção de choque de captura de nêutrons térmicos da reação.

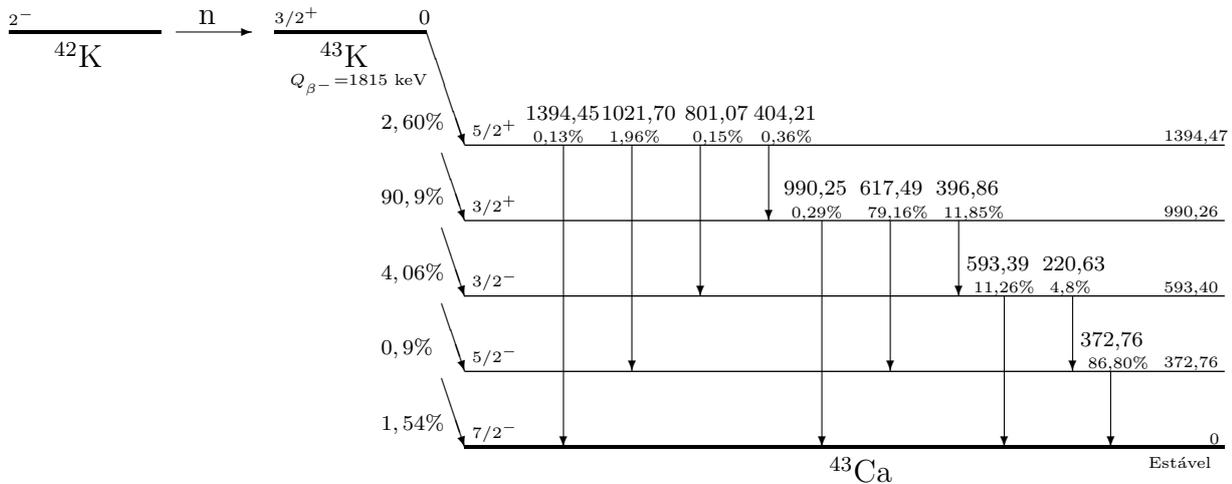
### 3.4 Núcleos-produto das reações de interesse

A reação  $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$  é comumente usada como referência em experimentos de análise por ativação de nêutrons [55, 51, 56]. A seção de choque térmica de captura dessa reação é de 98,65(9) b e a integral de ressonância 1560(28) b [57]. O núcleo residual de  $^{198}\text{Au}$  decai para  $^{198}\text{Hg}$  por meio do decaimento  $\beta^-$  ( $n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}$ ) com meia vida de 2,6943(8) d, emitido majoritariamente fótons gama de 411,80205(17) keV, cuja probabilidade de emissão por decaimento é de 95,62(1) % [58], como mostrado na figura 3.2.



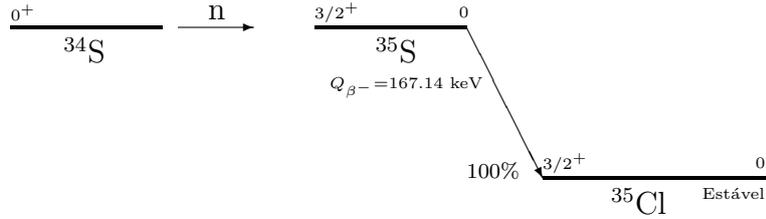
**Figura 3.2:** Reação  $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$  e esquema de decaimento do  $^{198}\text{Au}$  [58].

O núcleo de  $^{43}\text{K}$  decai para  $^{43}\text{Ca}$  por meio de um decaimento  $\beta^-$  com meia vida de 22,3(1) horas [59] emitindo fótons  $\gamma$  de 372,760(7) keV e 617,490(6) keV, cujas probabilidades de emissão por decaimento são 86,8(2)% e 79,2(6)%, respectivamente (o esquema de decaimento está mostrado na figura 3.3). Para observar esses fótons com boa precisão foi usado o detector de germânio hiper-puro (HPGe – *High Purity Germanium*), que apresenta alta resolução em energia.



**Figura 3.3:** Reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  e esquema de decaimento do  $^{43}\text{K}$  [60].

O  $^{35}\text{S}$  é um núcleo instável que decai para  $^{35}\text{Cl}$  puramente por  $\beta^-$  com máxima energia disponível de 167,33(3) keV e meia vida de 87,37(4) d [61], como sintetizado na figura 3.4. Optamos por determinar a atividade do  $^{35}\text{S}$  com um sistema de detectores em coincidência  $4\pi\beta-\gamma$ , usando o Método da Extrapolação da Eficiência associado ao Método do Traçador [62, 63], que é abordado na seção 3.5.2.



**Figura 3.4:** Reação  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$  e esquema de decaimento do  $^{35}\text{S}$  [61].

### 3.5 Determinação da atividade usando um sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$

Medidas em coincidência são amplamente usadas por possibilitarem a determinação da atividade de uma fonte com grande exatidão sem o conhecimento dos parâmetros inerentes ao processo de desintegração (como meia vida, intensidade de emissão etc) ou do equipamento utilizado (como a eficiência de detecção) [64].

O sistema de coincidências  $4\pi\beta-\gamma$  baseia-se no uso de dois detectores distintos, um para cada tipo de radiação emitida e um módulo para a determinação dos eventos coincidentes.

O método de coincidência para um sistema  $4\pi\beta-\gamma$  pode ser explicado baseando-se em uma desintegração simples, onde o núcleo emite uma partícula  $\beta^-$  seguida por um fóton  $\gamma$ . Em um sistema  $4\pi\beta-\gamma$  ideal, onde os detectores somente observem a radiação para a qual são destinados, as taxas de contagem registradas por cada detector serão dadas então por:

$$T_{\beta} = A\varepsilon_{\beta} \quad (3.11)$$

$$T_{\gamma} = A\varepsilon_{\gamma} \quad (3.12)$$

$$T_C = A\varepsilon_{\beta}\varepsilon_{\gamma} \quad (3.13)$$

onde  $A$  é a atividade da fonte;  $T_{\beta}$ ,  $T_{\gamma}$  e  $T_C$  são as taxas de contagens nos detectores de radiação  $\beta$ ,  $\gamma$  e coincidência, respectivamente;  $\varepsilon_{\beta}$  e  $\varepsilon_{\gamma}$  são as eficiências dos detectores de radiação  $\beta$  e  $\gamma$ , respectivamente. Multiplicando-se a equação 3.11 pela 3.12 e dividindo pela 3.13, temos que:

$$A = \frac{T_\beta T_\gamma}{T_C} \quad (3.14)$$

Portanto, a atividade do radionuclídeo é função apenas das taxas de contagens observadas. Neste caso simples, as eficiências também podem ser determinadas substituindo a equação 3.14 nas equações 3.12 e 3.11 obtendo-se:

$$\varepsilon_\beta = \frac{T_C}{T_\gamma} \quad (3.15)$$

$$\varepsilon_\gamma = \frac{T_C}{T_\beta} \quad (3.16)$$

Sempre que analisado o caso de detectores ideais e um esquema simples de decaimento, essas equações permitem determinar o valor da atividade do radionuclídeo sem o conhecimento dos parâmetros inerentes do equipamento usado. Porém, esquemas de desintegração nem sempre são tão simples e existe uma série de limitações experimentais que devem ser levadas em consideração. A grande maioria dos radionuclídeos apresenta esquemas de desintegração mais complexos e com vários ramos beta seguidos de transição gama ou da emissão de elétrons de conversão interna. Também não podem ser descartados parâmetros intrínsecos ao método de medida como sensibilidade de um dos detectores ao outro tipo de radiação ao qual ele não se destina, uso de fontes não puntiformes, tempos de resposta diferentes para cada detector etc. Desse modo, uma série de correções devem ser aplicadas e as equações 3.11, 3.12, 3.13 e 3.14 alteradas podendo ser reescritas como:

$$T_\beta = A \sum_{i=1}^m a_i \left[ \varepsilon_{\beta_i} + (1 - \varepsilon_{\beta_i}) \sum_{j=1}^n b_{ij} \frac{\alpha_{ij} [\varepsilon_{ec_{ij}} + (1 - \varepsilon_{ec_{ij}}) \varepsilon_{(X,A)_{ij}}] + \varepsilon_{\beta_{\gamma_{ij}}}}{1 + \alpha_{ij}} \right] \quad (3.17)$$

$$T_\gamma = A \left( \sum_{i=1}^m a_i \sum_{j=1}^n b_{ij} \varepsilon_{\gamma_{ij}} \frac{1}{1 + \alpha_{ij}} \right) \quad (3.18)$$

$$T_C = A \left[ \sum_{i=1}^m a_i \left[ \varepsilon_{\beta_i} \sum_{j=1}^n b_{ij} \varepsilon_{\gamma_{ij}} \frac{1}{1 + \alpha_{ij}} + (1 - \varepsilon_{\beta_j}) \sum_{j=1}^n b_{ij} \varepsilon_{C_{ij}} \frac{1}{1 + \alpha_{ij}} \right] \right] \quad (3.19)$$

$$\frac{T_{\beta}T_{\gamma}}{T_C} = A \left[ \frac{\sum_{i=1}^m a_i \left[ \varepsilon_{\beta_i} + (1 - \varepsilon_{\beta_i}) \sum_{j=1}^n b_{ij} \frac{\alpha_{ij} [\varepsilon_{ec_{ij}} + (1 - \varepsilon_{ec_{ij}}) \varepsilon_{(X,A)_{ij}}] + \varepsilon_{\beta_{\gamma_{ij}}}}{1 + \alpha_{ij}} \right]}{\sum_{i=1}^m a_i \left[ \varepsilon_{\beta_i} \sum_{j=1}^n b_{ij} \varepsilon_{\gamma_{ij}} \frac{1}{1 + \alpha_{ij}} + (1 - \varepsilon_{\beta_i}) \sum_{j=1}^n b_{ij} \varepsilon_{C_{ij}} \frac{1}{1 + \alpha_{ij}} \right]} \right] \quad (3.20)$$

onde:

$a_i$  = intensidade por desintegração do  $i$ -ésimo ramo beta;

$b_{ij}$  = intensidade relativa da  $j$ -ésima transição relacionada com o  $i$ -ésimo ramo;

$n$  = número de transições que seguem o  $i$ -ésimo ramo beta;  $m$  é o número de ramos beta;

$\varepsilon_{\beta_i}$  = eficiência beta associada ao  $i$ -ésimo ramo beta;

associados a  $ij$ -ésima transição estão as grandezas:

$\varepsilon_{\gamma_{ij}}$  = eficiência de detecção para o raio  $\gamma$  proveniente da transição  $ij$ ;

$\varepsilon_{\beta_{\gamma_{ij}}}$  = eficiência do detector de  $\beta$  para o raio  $\gamma$  proveniente da transição  $ij$ ;

$\varepsilon_{ec_{ij}}$  = eficiência de detecção para elétron de conversão provenientes da transição  $ij$ ;

$\varepsilon_{(X,A)_{ij}}$  = eficiência de detecção para elétrons Auger ou raios-X provenientes da transição  $ij$ ;

$\varepsilon_{C_{ij}}$  = eficiência de detecção da coincidência gama-gama para raios  $\gamma$  provenientes da transição  $ij$ ;

$\alpha_{ij}$  = coeficiente de conversão interna para a transição  $ij$ .

A equação 3.17 significa que o número de contagens beta é resultado da detecção dos elétrons do decaimento beta somada a detecção de raios gama, raios-X e elétrons devido a conversão interna, captura eletrônica e elétrons Auger. A equação 3.18 mostra que somente deve ser considerado o escoamento de fótons devido a conversão interna; a possibilidade de observar elétrons no detector de raios  $\gamma$  pode ser ignorado. A equação 3.19 mostra que

as contagens da coincidência são resultado da detecção de um elétron de um decaimento beta seguida da detecção de um fóton do mesmo decaimento, mas a isto deve ser somada a detecção de um fóton pelo detector de betas em coincidência com um fóton detectado pelo detector de gamas.

A medida da eficiência beta, dada na equação 3.15, pode então ser escrita como:

$$\frac{T_C}{T_\gamma} = \frac{\sum_{i=1}^m a_i \left[ \varepsilon_{\beta_i} + (1 - \varepsilon_{\beta_i}) \sum_{j=1}^n b_{ij} \frac{\alpha_{ij} + [\varepsilon_{ec_{ij}} + (1 - \varepsilon_{ec_{ij}}) \varepsilon_{(X,A)_{ij}}] + \varepsilon_{\beta_{\gamma_{ij}}}}{1 + \alpha_{ij}} \right]}{\sum_{i=1}^m a_i \sum_{j=1}^n b_{ij} \varepsilon_{\gamma_{ij}} \frac{1}{1 + \alpha_{ij}}} \quad (3.21)$$

### 3.5.1 Método da extrapolação da eficiência

A equação 3.20 determina que para se obter a atividade da fonte é necessário conhecer os parâmetros do esquema de desintegração e as probabilidades de detecção. Para solucionar esse problema e manter a principal característica do método que consiste na sua independência do conhecimento das eficiências de detecção e dos parâmetros do esquema de desintegração, foi desenvolvido o Método da Extrapolação da Eficiência [64, 62, 63].

Segundo esta técnica, a determinação da taxa de desintegração de um nuclídeo com esquema de desintegração complexo, sem o conhecimento prévio dos parâmetros do esquema de desintegração e das eficiências de detecção, só será possível se pudermos estabelecer uma relação funcional entre a contagem no detector beta,  $T_\beta$ , e o parâmetro de eficiência  $T_C/T_\gamma$  de forma que  $T_\beta \rightarrow A$  quando  $T_C/T_\gamma \rightarrow 1$ . Esta condição ocorre quando a eficiência dos vários ramos beta,  $\varepsilon_{\beta_\zeta}$ , puder ser representada como uma função de uma única eficiência,  $\varepsilon_{\beta_U}$ , isto é:  $\varepsilon_{\beta_\zeta} = f_\zeta(\varepsilon_{\beta_U})$ . É imprescindível que esta relação se conserve para o caso em que  $f_\zeta \rightarrow 1$  quando  $\beta_U \rightarrow 1$  para  $\zeta = 1, 2, \dots, n$ ; além de que os valores das probabilidades de detecção  $\varepsilon_{\gamma_\zeta}$ ,  $\varepsilon_{\beta_\zeta}$ ,  $\varepsilon_{C_\zeta}$  e  $\varepsilon_{ec_\zeta}$  permaneçam constantes no intervalo de variação de  $T_C/T_\gamma$ . Portanto,  $T_\beta$  resulta como uma função  $F$  do parâmetro de eficiência  $T_C/T_\gamma$ , tal que:

$$T_\beta = AF \left( \frac{T_C}{T_\gamma} \right) \quad (3.22)$$

Essa é a chamada fórmula de coincidência generalizada e pode ser escrita em uma forma mais conveniente para sua solução gráfica. Usando-se  $\frac{T_\beta T_\gamma}{T_C}$  como variável dependente e o parâmetro de ineficiência  $\frac{1 - \frac{T_C}{T_\gamma}}{\frac{T_C}{T_\gamma}}$  como variável (segundo convencionado em [64]), obtém-se

uma função  $G$  do parâmetro de ineficiência, cuja variação é mais lenta do que a da função  $F$ . Assim a fórmula de coincidência generalizada pode ser escrita como:

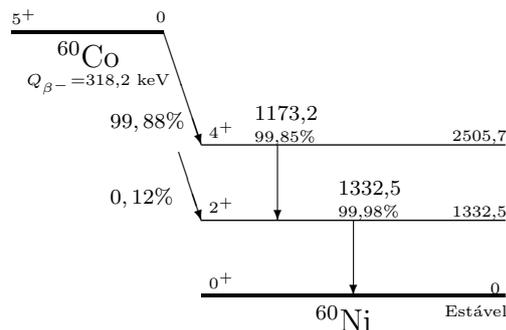
$$\frac{T_{\beta}T_{\gamma}}{T_C} = A G \left( \frac{1 - \frac{T_C}{T_{\gamma}}}{\frac{T_C}{T_{\gamma}}} \right) \quad (3.23)$$

onde as correções a serem feitas são representadas pela função  $G$ , que tende à unidade quando seu argumento tende a zero.

A variação do parâmetro de ineficiência pode ser obtida experimentalmente pelo uso de absorvedores externos, ou auto-absorção na fonte, discriminação eletrônica ou qualquer outro método que possibilite a variação da eficiência de detecção dos betas. Obtém-se então a atividade da fonte  $A$  por meio da extrapolação obtida por ajuste polinomial dos dados experimentais a partir do gráfico de  $\frac{T_{\beta}T_{\gamma}}{T_C}$  versus  $\frac{1 - \frac{T_C}{T_{\gamma}}}{\frac{T_C}{T_{\gamma}}}$  e com o auxílio de previsões teóricas que podem ser calculadas por meio de simulações.

### 3.5.2 Método do traçador

A padronização de um emissor beta puro geralmente é feita utilizando o método do traçador [63]. Nesse procedimento um emissor beta-gama conveniente é utilizado como traçador e misturado na solução do emissor beta puro. Pela simplicidade de seu esquema de decaimento, mostrado na figura 3.5, e por ter meia vida de 1925,28(14) dias, o  $^{60}\text{Co}$  foi usado neste trabalho como traçador.



**Figura 3.5:** Esquema simplificado da desintegração do  $^{60}\text{Co}$  [65].

Considerando que o decaimento do  $^{60}\text{Co}$  apresenta somente 1 ramo relevante e 2 raios  $\gamma$  com energia maior que 1 MeV, sendo o coeficiente de conversão interna para cada transição da ordem de  $10^{-4}$  [66], as equações gerais de coincidência aplicadas para esta técnica podem ser escritas como:

$$T_\beta = A_P \varepsilon_{\beta_P} + A_T \varepsilon_{\beta_T} \quad (3.24)$$

$$T_\gamma = A_T [a_1 (b_{11} \varepsilon_{1173,2} + b_{12} \varepsilon_{1332,5})] \quad (3.25)$$

$$T_C = A_T [\varepsilon_{\beta_T} (b_{11} \varepsilon_{1173,2} + b_{12} \varepsilon_{1332,5}) + (1 - \varepsilon_{\beta_T}) (b_{11} \varepsilon_{C_{11}} + b_{12} \varepsilon_{C_{12}})] \quad (3.26)$$

$$\left( \frac{T_\beta T_\gamma}{T_C} \right)_{P+T} = A_P \varepsilon_{\beta_P} \frac{T_\gamma}{T_C} + A_T \varepsilon_{\beta_T} \frac{T_\gamma}{T_C} \quad (3.27)$$

onde  $P$  e  $T$  são índices relacionados com emissores beta puro e beta-gama, respectivamente. Subtraindo a equação 3.20 da equação 3.27, considerando a equação 3.20 válida para uma medida do traçador sem a fonte que emite somente betas, teremos:

$$\left( \frac{T_\beta T_\gamma}{T_C} \right)_{P+T} - f \left( \frac{T_\beta T_\gamma}{T_C} \right)_T = A_P \varepsilon_{\beta_P} \frac{T_\gamma}{T_C} = A_P G \left( \frac{1 - \frac{T_C}{T_\gamma}}{\frac{T_C}{T_\gamma}} \right) \quad (3.28)$$

onde  $f$  é um fator de correção para a diferença de massas entre as fontes.

Portanto, para se determinar a atividade do emissor beta puro são necessárias, além das medidas em coincidência da solução de emissor beta puro misturada com o traçador, as mesmas medidas com uma fonte somente com o traçador. Com ambas as fontes deve ser realizado o processo de variar a eficiência beta para se obter a curva de extrapolação.

### 3.6 Determinação da atividade usando um detector de raios $\gamma$

Como comentado na seção 3.4, foi usado um detector HPGe para determinar a atividade  $\gamma$  das amostras irradiadas. O sinal eletrônico emitido pelo cristal de germânio hiper puro é proporcional à energia depositada pelo fóton detectado e torna possível a construção de histogramas de pequenas faixas de valores de tensão, chamados espectros  $\gamma$ , e associar as estruturas observadas nos espectros a fenômenos físicos. Quando toda a energia do fóton é depositada no cristal, resulta em uma contagem no canal correspondente à energia do fóton. Então, dependendo da quantidade de fótons de certa energia, é possível observar no espectro gama um pico de contagens com forma gaussiana ou aproximadamente gaussiana, devido o

processo de detecção estar sujeito a um número muito grande de pequenas flutuações; esse pico é chamado de pico de absorção total de energia. Considerando a posição dos picos no espectro e o número de contagens contidas neles é possível, baseando-se nos resultados obtidos com fontes padrão, inferir sobre suas energias, atividade da fonte emissora e probabilidades de emissão por decaimento.

As medidas de radiação  $\gamma$  com detectores HPGe resultam em espectros de contagens em canais, onde os números de ordem dos canais são relacionados com as energias dos fótons detectados pela seguinte equação:

$$E_\gamma = a_1 + a_2C + a_3C^2 \quad (3.29)$$

onde  $a_1$ ,  $a_2$  e  $a_3$  são parâmetros a serem determinados por meio de ajustes. Tais parâmetros dependem do ganho efetivo do sistema de detecção e por isso são suscetíveis a estabilidade eletrônica do sistema, apresentando valores distintos cada vez que o sistema é religado.

O ajuste da energia em função dos canais pode ser feito tomando como base os picos de espectros de fontes calibradas obtidos poucas horas antes, entre medidas, ou depois das medidas dos alvos irradiados.

Considerando que a eficiência do detector não muda no decorrer das medidas realizadas e que sua dependência com a energia pode ser representada por uma função contínua, é possível relacionar as atividades de diferentes fontes por meio de uma calibração de eficiência de pico, que é verificada rotineiramente. A eficiência de um detector HPGe varia de acordo com a energia do fóton detectado, podendo ser calibrada na faixa de energia de interesse por meio da seguinte relação [67]

$$\varepsilon(E_\gamma) = e^{p_1} \left( \frac{E_\gamma}{E_0} \right)^{p_2} \Rightarrow \ln(\varepsilon) = p_1 + p_2 \ln \left( \frac{E_\gamma}{E_0} \right) \quad (3.30)$$

onde  $p_1$  e  $p_2$  são os parâmetros a serem ajustados e  $E_0$  é uma energia de referência, adotada como 1 MeV, pois as energias de interesse estão no intervalo de 0,3 a  $\approx 2$  MeV.

O método de determinação de atividade de uma fonte radioativa por meio da calibração de eficiência de um detector supõe que todas as fontes envolvidas no processo tenham a mesma forma. Porém, no presente trabalho, as fontes usadas como padrão de calibração tinham da

ordem de  $0,5 \text{ mm}^3$  de volume enquanto as fontes irradiadas apresentavam volumes da ordem de  $50 \text{ mm}^3$ . Portanto nos cálculos de atividade foi necessário aplicar um fator de correção  $f = \varepsilon_V/\varepsilon_P$ , onde  $\varepsilon_V$  é a eficiência para uma fonte volumétrica e  $\varepsilon_P$  é a eficiência para a fonte pontual.

É possível calcular a correção para eficiência do detector numa posição determinada da fonte em relação a este usando modelos analíticos com resolução numérica [68] ou simulações por Monte Carlo. No presente trabalho se optou pelas simulações devido sua praticidade, com a possibilidade de calcular a variação na eficiência devido a variação da distância fonte-detector em cada ponto da fonte volumétrica e a atenuação da radiação pelo material que constitui a fonte. As simulações realizadas são detalhadas na seção 5.3.

Feitas as calibrações é possível calcular as atividades das fontes radioativas considerando a equação 3.5 em que o número de decaimentos,  $N_d$ , durante um certo tempo de medida,  $\Delta t$ , é dado por:

$$N_d = \int_{t_e}^{t_e+\Delta t} A(t) dt = \lambda N_f \int_{t_e}^{t_e+\Delta t} e^{-\lambda t} dt \Rightarrow N_d = N_f e^{-\lambda t_e} (1 - e^{-\lambda \Delta t}) \quad (3.31)$$

No presente trabalho a atividade do núcleo produto de dupla captura foi obtida com um detector HPGe, que tem eficiência menor que o sistema  $4\pi\beta-\gamma$ , mas apresenta melhor resolução em energia depositada pelas partículas detectadas. Para se obter o número de decaimentos da fonte se observa então a área  $S_\gamma$  do pico no espectro gama correspondente aos fótons emitidos pela fonte, que é dada por:

$$S_\gamma = \varepsilon_\gamma I_\gamma N_d \quad (3.32)$$

onde  $\varepsilon_\gamma$  e  $I_\gamma$  são respectivamente a eficiência de pico e a probabilidade de emissão por decaimento do raio  $\gamma$ . Dessa forma é possível calcular a atividade de uma amostra a partir da área obtida por meio de espectroscopia. Caso haja efeitos de detecção que impliquem na perda de contagens na área (como empilhamento e soma) o valor dessa deve ser corrigido para o uso da equação 3.32.

### 3.7 Métodos estatísticos

Os valores experimentais são interpretados usando os tratamentos estatísticos apresentados na bibliografia [69, 70]. As variâncias das grandezas calculadas a partir de dados estatisticamente independentes são calculadas pela expressão:

$$\zeta_y^2 = \sum_{i=1}^n \left( \frac{\partial y}{\partial x_i} \right)^2 \zeta_{x_i}^2 \quad (3.33)$$

onde  $\zeta_y^2$  é a variância de uma grandeza  $y$  e  $\zeta_{x_i}^2$  é a variância de uma das  $n$  grandezas  $x_i$ . Cada um dos termos da somatória também pode ser calculado como:

$$\left( \frac{\partial y}{\partial x_i} \right)^2 \zeta_{x_i}^2 \cong |y(x_i + \zeta_x) - y(x_i)|^2 \quad (3.34)$$

escolhendo-se a forma mais prática para cada termo.

Quando as grandezas não são estatisticamente independentes, são calculadas por meio da relação:

$$\mathbf{V}_y \cong \mathbf{D} \cdot \mathbf{V}_x \cdot \mathbf{D}^t \quad (3.35)$$

onde  $\mathbf{V}_y$  é a matriz das covariâncias das  $m$  grandezas calculadas,  $\mathbf{V}_x$  é a matriz de covariâncias das  $n$  grandezas  $x_i$  e  $\mathbf{D}$  é dado por:

$$\mathbf{D} = \begin{pmatrix} \frac{\partial y_1}{\partial x_1} & \frac{\partial y_1}{\partial x_2} & \dots & \frac{\partial y_1}{\partial x_n} \\ \frac{\partial y_2}{\partial x_1} & \frac{\partial y_2}{\partial x_2} & \dots & \frac{\partial y_2}{\partial x_n} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial y_m}{\partial x_1} & \frac{\partial y_m}{\partial x_2} & \dots & \frac{\partial y_m}{\partial x_n} \end{pmatrix} \quad (3.36)$$

O resultado final para grandezas que foram medidas mais de uma vez (como a atividade das fontes, constante de decaimento e seções de choque das reações de interesse) é dado pela média entre os valores experimentais. A média ponderada pelas incertezas entre medidas independentes de uma grandeza,  $\bar{x}$ , é dada por [71]:

$$\bar{x} = \frac{\sum_{i=1}^n \frac{x_i}{\varsigma_i^2}}{\sum_{j=1}^n \frac{1}{\varsigma_j^2}} \quad (3.37)$$

onde  $n$  é o número de valores obtidos e cada valor  $x$  apresenta uma incerteza  $\varsigma$ . A incerteza da média  $\varsigma_{\bar{x}}$  será dada então por:

$$\varsigma_{\bar{x}} = \sqrt{\frac{1}{\sum_{j=1}^n \frac{1}{\varsigma_j^2}}} \quad (3.38)$$

Todos os ajustes foram realizados por meio do Método dos Mínimos Quadrados, onde a confiança nos ajustes foi determinada com o auxílio do teste de hipótese baseado na estatística de  $\chi^2$ .



## Capítulo 4

# Procedimento Experimental

Neste capítulo, são descritos os equipamentos, materiais e procedimentos usados para preparação, irradiação e medida de atividade das amostras, com o objetivo de determinar as secções de choque de captura de nêutrons dos  $^{42}\text{K}$  e o  $^{34}\text{S}$ . O procedimento adotado consiste basicamente em:

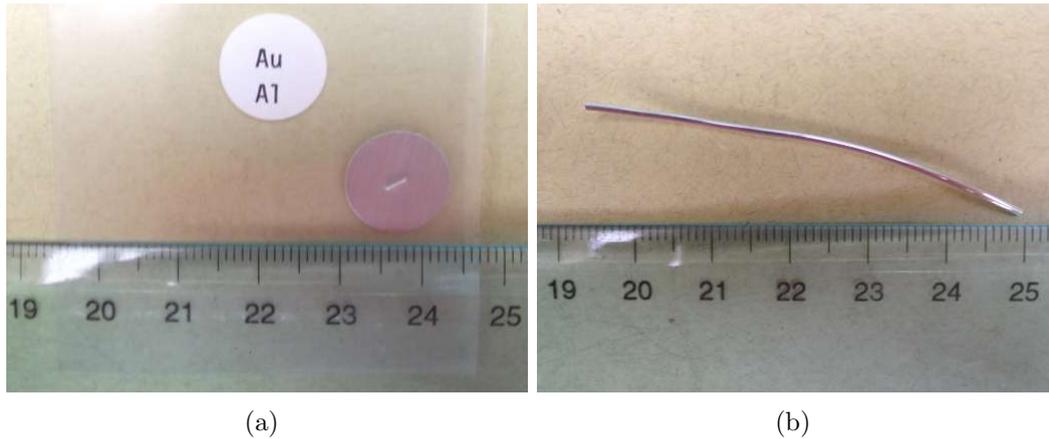
- preparar amostras que contenham o núcleo alvo da reação de interesse;
- determinar a quantidade de núcleos alvo presentes em cada amostra;
- irradiar as amostras com nêutrons no reator de pesquisas IEA-R1;
- medir a atividade induzida nas amostras por meio de sistemas que detectam radiação  $\beta$  ou  $\gamma$ ;
- determinar a secção de choque a partir dos modelos apresentados no capítulo 3.

### 4.1 Preparação dos alvos

Os materiais que foram usados como alvo para irradiações são de alta pureza e podem ser classificados em dois tipos: monitores de fluxo e compostos químicos contendo núcleos de interesse.

Os monitores de fluxo adotados (como mostrados na figura 4.1) foram ligas metálicas de Au-Al em forma de:

- discos com 12,7 mm de diâmetro e 0,127 mm de espessura, contendo 0,1143(1) % de ouro, da *Reactor Experiments Incorporation*;



**Figura 4.1:** Fotos (a) da folha e (b) do fio, ambos de Au-Al, usados como monitores de fluxo. A escala de referência é parte de uma régua em cm.

- fios cilíndricos com 1 mm de diâmetro, contendo 0,1003(6) % de ouro, do *Institute for Reference Materials and Measurements*.

As folhas e os fios de Au-Al foram cortados com uma tesoura comum limpa com álcool etílico, em pedaços de tamanhos convenientes a cada dispositivo de irradiação. Estes pedaços foram limpos com álcool etílico seguido de um banho em água destilada e secos com lenços de papel. Após a limpeza, as amostras foram pesadas e embrulhadas em papel alumínio com espessura da ordem de 0,05 mm, também limpo com álcool etílico.

Os compostos químicos adotados foram selecionados a partir de um conjunto de compostos possíveis de serem irradiados. Os critérios de seleção incluíram:

- facilidade no manuseio;
- maior porcentagem do elemento de interesse no composto;
- estabilidade do material;
- contaminantes que pudessem ser ativados na irradiação com nêutrons, se transformando em produtos radioativos indesejados, seja do ponto de vista de proteção radiológica, seja quanto a possíveis interferências causadas na detecção.

Para a observação da reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  foram cogitados os seguintes compostos químicos: cloreto de potássio (KCl), carbonato de potássio ( $\text{K}_2\text{CO}_3$ ), nitrito de potássio ( $\text{KNO}_2$ ) e nitrato de potássio ( $\text{KNO}_3$ ). O KCl foi descartado pela possibilidade de produção de  $^{36}\text{Cl}$ ,

que tem meia vida de  $3,01(2) \times 10^5$  anos [72] e é volátil. Tentou-se confeccionar alvos com  $K_2CO_3$  e  $KNO_2$ , mas estes compostos se mostraram higroscópicos a ponto de comprometer a precisão da medida das massas e a estabilidade geométrica dos alvos. Por fim, foi eleito o  $KNO_3$ , que é pouco higroscópico e não apresenta elementos voláteis. O nitrato de potássio usado foi obtido da empresa J. T. Baker com 99,9(1) % de pureza.

Para se observar a reação  $^{34}S(n, \gamma)^{35}S$  foi selecionado o enxofre natural, que foi adquirido da Alfa Aesar com 99,999(1) % de pureza.

As massas das amostras a serem irradiadas foram medidas com uma balança analítica comercial da marca Micronal do tipo Mettler H20T com precisão de 0,05 mg. Os valores obtidos nas pesagens dos alvos foram corrigidos considerando o empuxo que o ar exerce em cada corpo. Segundo o Princípio de Arquimedes, o valor real da massa  $m$  de um corpo é dada pela relação:

$$m = \frac{m_{ef}^2}{m_{ef} - \rho_{ar}V} \quad (4.1)$$

onde  $m_{ef}$  é a massa medida na balança,  $\rho_{ar} = 1,09 \text{ kg/m}^3$  é a densidade do ar <sup>1</sup> e  $V$  é o volume do corpo pesado.

#### 4.1.1 Alvos de enxofre

O enxofre natural é composto por quatro isótopos estáveis do enxofre: 94,99(26) % de  $^{32}S$ , 0,75(2) % de  $^{33}S$ , 4,25(24) % de  $^{34}S$  e 0,01(1) % de  $^{36}S$ . Considerando que a secção de choque da reação  $^{36}S(n, \gamma)^{37}S$  é de 242(12) mb [28] e que o decaimento do  $^{37}S$  tem meia vida de 5,05(2) minutos [73], é esperado observar, após a irradiação do enxofre natural e os tempos de espera típicos neste trabalho, somente a radiação proveniente do  $^{35}S$ . Vale comentar que as secções de choque de captura de nêutron para o  $^{32}S$  e para o  $^{33}S$  são, respectivamente, 518(14) e 454(25) mb [27], portanto haverá produção desprezível de  $^{34}S$  ao longo das irradiações e a porcentagem isotópica do  $^{34}S$  pode ser adotada como constante.

O enxofre natural foi obtido na forma de fragmentos heterogêneos, como mostra a figura 4.2. Tendo em vista que após a irradiação o enxofre deve ser diluído em uma solução, não houve necessidade de se comprimir o composto em pastilhas. Os fragmentos foram pe-

---

<sup>1</sup>a 20°C, 760 m acima do nível do mar e umidade relativa do ar de 70 %



**Figura 4.2:** Fragmentos de enxofre como os usados nas irradiações. Régua de referência em cm.

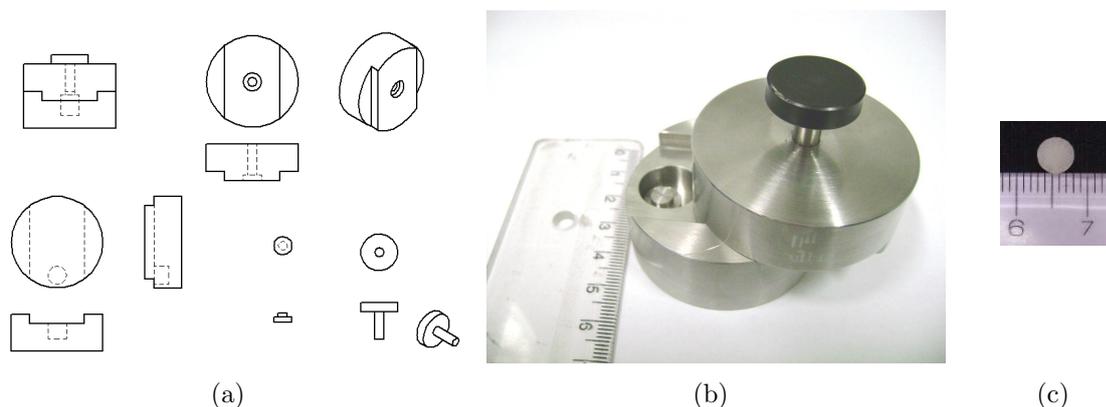
sados e embrulhados em alumínio.

#### 4.1.2 Alvos contendo potássio

O  $\text{KNO}_3$  apresenta 38,7(1) % de potássio natural em massa [74]. O potássio natural possui o isótopo  $^{41}\text{K}$ , que é estável e representa 6,7302(44) % da composição do potássio natural; portanto 2,605(7) % do alvo era composto de  $^{41}\text{K}$ . Após a irradiação dos compostos, se esperava a formação de  $^{43}\text{K}$  em quantidade suficiente para ser observado pelo detector HPGe usado. Contudo, pela composição química dos alvos, é possível inferir que, juntamente com a reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ , ocorrem as reações  $^{15}\text{N}(n, \gamma)^{16}\text{N}$ ,  $^{18}\text{O}(n, \gamma)^{19}\text{O}$  e  $^{41}\text{K}(n, \gamma)^{42}\text{K}$  com secções de choque térmica de  $2,4(8) \times 10^{-5}$  b,  $1,6(1) \times 10^{-5}$  b [57] e 1,57(4) b [32], respectivamente. Os núcleos produto  $^{16}\text{N}$ ,  $^{19}\text{O}$  e  $^{42}\text{K}$  apresentam meias vidas de 7,13(2) s [75], 26,88(5) s [76] e 12,321(25) h [77], respectivamente. Baseando-se nesses dados é possível concluir que, como visto no trabalho anterior [31], somente o  $^{42}\text{K}$  será observado juntamente com o  $^{43}\text{K}$ . O núcleo de  $^{42}\text{K}$  se transforma em um núcleo de  $^{42}\text{Ca}$  por meio de um decaimento  $\beta^-$  emitindo, com maior probabilidade, fótons  $\gamma$  de 1524,6(3) keV, 312,60(25) keV, 899,7(4) keV, 1021,2(9) keV e 2424,3(7) keV [77]. As energias dos fótons provenientes do decaimento do  $^{42}\text{K}$  não coincidem com as do  $^{43}\text{K}$ , apresentadas na figura 3.3, isso indica que é possível identificar os isótopos nas medidas com espectroscopia  $\gamma$ .

O  $\text{KNO}_3$  foi adquirido em forma de pó. Visando manter o formato da amostra ao longo do processo experimental, o  $\text{KNO}_3$  foi preparado para as irradiações sendo comprimido em pastilhas cilíndricas, para as medidas de seção de choque térmica, ou fundido em uma ampola de quartzo, para as medidas da integral de ressonância.

A compressão do  $\text{KNO}_3$  foi realizada com uma prensa 00-25 da Beckman associada a um



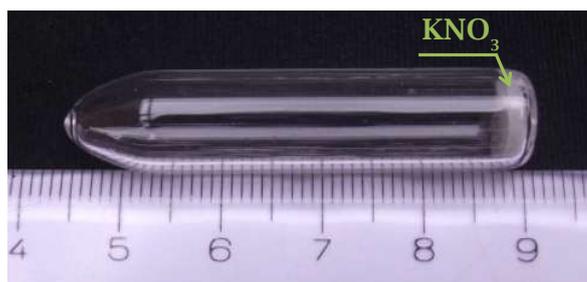
**Figura 4.3:** (a) *Esquema de peças e montagem do pastilhador.* (b) *Foto do pastilhador de aço inox.* (c) *Fota da pastilha de KNO<sub>3</sub>. As réguas de referência estão em cm.*

dispositivo de aço VC 131 denominado “pastilhador”, que se compõe basicamente de duas bases e pistões que se encaixam a orifícios. No orifício da base se coloca o pó. Quando o dispositivo é colocado na prensa o pistão desce e o pó fica compactado em pastilhas de 5 mm de diâmetro e altura variável entre 1 e 3 mm. Na figura 4.3 são mostrados o esquema do pastilhador, uma fotografia deste e uma pastilha de KNO<sub>3</sub>.

Antes de irradiadas, as pastilhas foram acondicionadas isoladamente dentro de um invólucro de polietileno selado e limpo com álcool etílico. O objetivo do invólucro foi facilitar o manuseio no preparo do dispositivo de irradiação e evitar contaminações e/ou perda de material ao longo do acondicionamento prévio, da irradiação e da medida de atividade das amostras.

Para as irradiações em duas etapas, que são explicadas na seção 4.2.3, foram usadas ampolas feitas a partir de tubos de quartzo com 6 mm de diâmetro externo e parede de 1 mm de espessura. Tubos de aproximadamente 10 cm foram transformados em ampolas selando suas extremidades com um maçarico oxiacetilênico. Primeiramente uma das extremidades do tubo foi selada de forma que ficasse plana. Em seguida o mesmo foi limpo com detergente, água destilada e álcool etílico. Para secar, o tubo foi colocado em uma estufa a 60°C por algumas horas e na sequência foi pesado. O alvo de KNO<sub>3</sub> foi inserido no tubo e a extremidade ainda aberta do tubo foi selada, formando uma ampola de aproximadamente 5 cm de altura.

Para as primeiras irradiações em duas etapas foi colocada uma pastilha de KNO<sub>3</sub> com invólucro de polietileno dentro da ampola de quartzo.

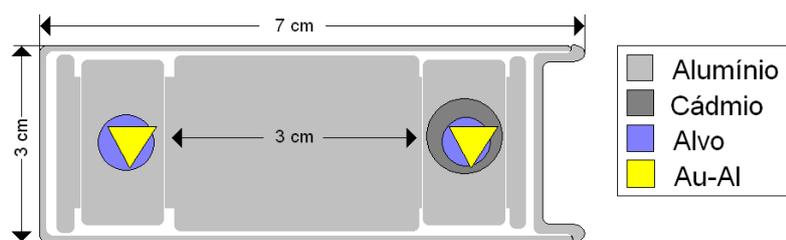


**Figura 4.4:** Fotografia de uma ampola de quartzo contendo  $KNO_3$  fundido, indicado pela seta. A escala de referência é parte de uma régua em cm.

Para as irradiações seguintes os alvos foram preparados de forma que, após limpos os tubos semi-abertos de quartzo, foram depositados no fundo do frasco aproximadamente 100 mg de  $KNO_3$ . O conjunto foi colocado em uma mufla e aquecido a uma taxa de aproximadamente  $10^\circ C/min$  até a temperatura de  $350^\circ C$ , onde permaneceu durante 3 horas, para que o  $KNO_3$  fundisse e se fixasse no tubo de quartzo (considerando que a temperatura de fusão do  $KNO_3$  é  $334^\circ C$  e a de decomposição  $400^\circ C$ ). O processo de resfriamento da amostra consistiu em desligar a mufla e aguardar que o forno entrasse em equilíbrio térmico com o ambiente. A amostra foi pesada novamente para determinar com precisão, pela diferença das massas, a de  $KNO_3$  depositada. A outra extremidade do tubo foi selada também com um maçarico e a amostra foi limpa externamente com detergente, água destilada e álcool etílico. A figura 4.4 mostra uma ampola de quartzo com deposição de  $KNO_3$  usando este procedimento.

## 4.2 Irradiações realizadas

Pedaços das ligas de Au-Al, com massa entre 2 e 10 mg, foram usadas nas irradiações como monitores de fluxo, próximos a cada alvo de interesse. Todas as irradiações dos alvos de enxofre e parte das irradiações dos alvos de  $KNO_3$  contavam com dois conjuntos alvo-monitor, sendo um conjunto dentro de uma cápsula de cádmio com 0,5 mm de espessura e outro embrulhado somente em alumínio. Cada conjunto contendo uma amostra do material de interesse e um monitor de fluxo (tanto o coberto por cádmio quanto o descoberto) foi embalado em alumínio e fixado em uma extremidade de uma haste, também de alumínio. A distância entre os conjuntos de amostras ao longo da irradiação foi da ordem de 3 cm; esta distância é necessária para que a depressão no fluxo de nêutrons causada pela presença do cádmio não interfira na medida das amostras nuas, porém essa distância deve ser pequena



(a)



(b)

**Figura 4.5:** (a) Esquema da posição dos alvos no dispositivo de irradiação e (b) foto de um cilindro de alumínio (coelho) e uma haste de alumínio com os alvos fixados (régua de referência em cm).

para que se possa supor que o valor do fluxo médio ao redor de todo o dispositivo seja o mesmo [35]. Tal armação é parte do método da razão de cádmio, discutido na seção 3.3. O dispositivo descrito acima foi colocado dentro de um cilindro de alumínio (chamado “coelho”) que antes de ser colocado no reator foi soldado para evitar a entrada de água e a perda de alguma das amostras <sup>2</sup>. Um exemplo deste dispositivo de irradiação é mostrado na figura 4.5.

As irradiações foram realizadas no núcleo do reator de pesquisas IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP. Mais especificamente na posição 24A da prateleira 5 do Elemento de Irradiação Refrigerado a Água 2 (EIRA 2). Essa posição é mostrada na figura 4.6.

A seguir, serão descritos os detalhes das irradiações realizadas. Os resultados das medidas dos alvos irradiados serão apresentados no capítulo 6.

#### 4.2.1 Irradiações do enxofre

Foram realizadas irradiações de fragmentos de enxofre com massas entre 20 e 100 mg, dispostos no coelho como apresentado na figura 4.5. Inicialmente foi usada uma amostra de enxofre de menor pureza que o citado na seção 4.1, pois as irradiações tinham caráter de teste. As duas primeiras irradiações tiveram duração de 30 e 60 minutos e tempos de espera de até

<sup>2</sup>É feito um teste de estanqueidade mergulhando o coelho selado em glicerina a 180°C.

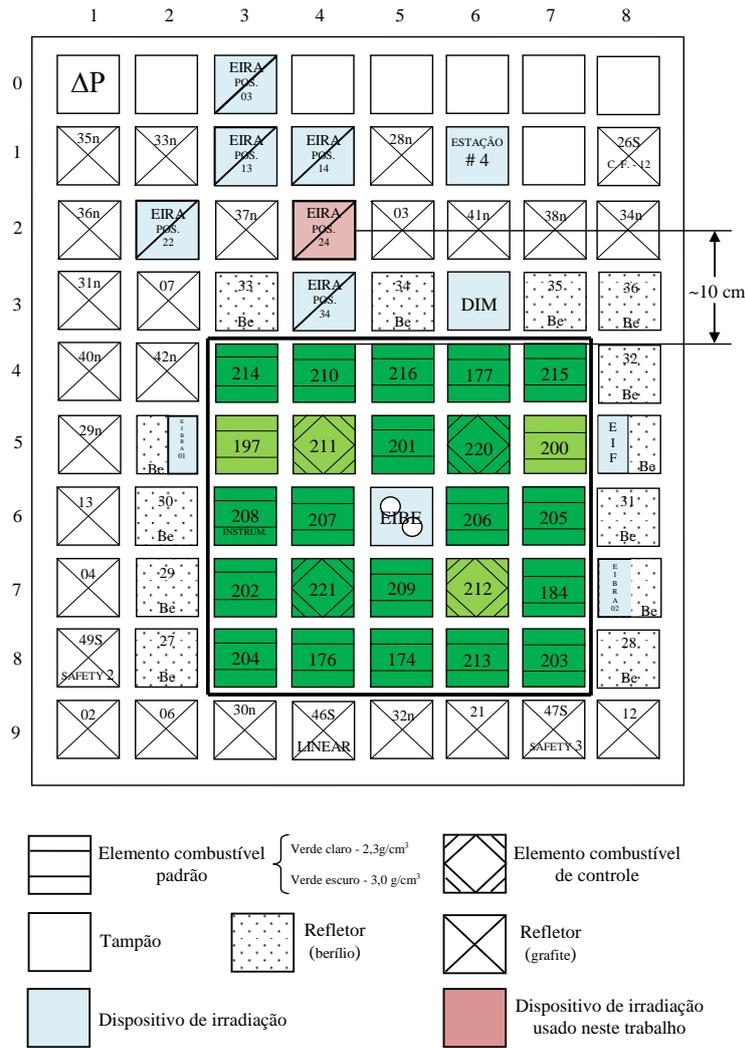


Figura 4.6: Esquema simplificado da configuração do núcleo do reator IEA-R1.

3 dias. As fontes radioativas montadas com o enxofre irradiado não apresentaram atividade suficiente para serem medidas no sistema  $4\pi\beta-\gamma$ , assim se optou por fazer irradiações de maior duração.

As irradiações seguintes tiveram duração de 10 e 20 horas, com tempos de espera de até 3 dias para a medida da atividade dos monitores de fluxo e de até 2 meses para a medida da atividade do enxofre.

#### 4.2.2 Confeção das fontes de $^{35}\text{S}$

Para realizar medidas de atividade  $\beta$  no sistema de coincidências  $4\pi\beta-\gamma$  é necessário que a fonte radioativa seja diluída e depositada sobre um substrato de nitrato de celulose (também chamado colódio) aderido a uma arandela de aço inoxidável e metalizado com  $\approx 10\mu\text{g}$  de ouro por  $\text{cm}^2$ . O colódio deve ser fino o suficiente para evitar que haja auto-absorção de

elétrons ou raio-X de baixa energia. O ouro depositado sobre a superfície do substrato faz com que a fonte se comporte como um condutor para que, uma vez colocado no interior do detector proporcional, não interfira no seu campo elétrico.

Como explicado na seção 3.5.2, foi usado o método do traçador para determinar a atividade  $\beta$  do enxofre irradiado, portanto antes de depositar a solução contendo enxofre sobre o colódio, foi depositada uma alíquota conhecida de uma solução calibrada contendo  $^{60}\text{Co}$ . A quantidade de núcleos de  $^{60}\text{Co}$  contidos na fonte foi obtida pelo método do picnômetro, que consiste na determinação da massa de uma alíquota de solução radioativa calibrada pela diferença entre pesagens consecutivas do picnômetro que a contém, antes e depois da deposição da alíquota no substrato.

A solução radioativa de  $^{60}\text{Co}$  tem como solvente o ácido clorídrico (HCl), que não danifica o colódio e necessita de surfactante para a confecção de fontes. O enxofre natural não é solúvel em HCl e para escolher um solvente adequado foram realizados testes “a frio” (com compostos não irradiados) de dissolução e deposição de enxofre usando tolueno ( $\text{C}_7\text{H}_8$ ) e dissulfeto de carbono ( $\text{CS}_2$ ) como solventes. Os resultados quanto a capacidade de dissolução e estabilidade da fonte radioativa resultante da deposição levaram à escolha do  $\text{CS}_2$  como solvente mais adequado. O  $\text{CS}_2$  evapora a  $46^\circ\text{C}$ , o que significa que, a temperatura ambiente (entre  $15$  e  $25^\circ\text{C}$ ) é muito volátil e inviabiliza o uso do método do picnômetro para determinação da massa da fonte. Como alternativa se optou por depositar a solução usando uma micropipeta, e para reduzir a taxa de evaporação o  $\text{CS}_2$  foi mantido, nos intervalos entre seu uso, dentro de um recipiente com gelo durante os testes e confecção das fontes. No processo de calibração com a solução foi observado que a massa da alíquota depositada pela micropipeta podia variar até 50 %. Então, para determinar a quantidade de  $^{35}\text{S}$  se optou pela pesagem da arandela com colódio antes e depois da deposição de material radioativo.

Os fragmentos de enxofre irradiados (somando aproximadamente 100 mg de massa) foram diluídos em 5 ml de  $\text{CS}_2$  e depositados sobre os filmes de colódio contendo  $^{60}\text{Co}$ . Um esquema explicativo e uma foto de uma fonte de  $^{60}\text{Co}$  e  $^{35}\text{S}$  são mostrados na figura 4.7.



**Figura 4.7:** Fotografia de um anel com colódio metalizado. Se observa o círculo onde foi depositada a alíquota de solução radioativa contendo  $^{60}\text{Co}$  e  $^{35}\text{S}$ . Régua de referência em cm.

### 4.2.3 Irradiações do nitrato de potássio

Foram realizadas diversas irradiações contendo entre 50 e 100 mg de  $\text{KNO}_3$  como alvo. Considerando as conclusões do trabalho anterior [31], todas as irradiações tiveram duração maior que 12 horas, para que fosse possível a posterior observação da radiação proveniente do  $^{43}\text{K}$ . Tempos de irradiação tão longos exigiram tempos de espera entre 3 e 5 dias, para evitar que no processo de remoção das amostras do coelho as pessoas envolvidas tomassem dose radioativa superior às normas de proteção radiológica.

A primeira irradiação durou 12 horas e tinha por objetivo determinar, concomitantemente, a seção de choque térmica e a integral de ressonância da reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ , por isso foram preparados dispositivos de irradiação como os apresentados na figura 4.5. Após 3 dias de tempo de espera as atividades dos alvos foram medidas, porém somente foi possível a observação de atividade do  $^{43}\text{K}$  no alvo irradiado sem cobertura de cádmio. Foi realizada uma nova irradiação com 22 horas de duração, onde foram obtidos resultados semelhantes.

Ao final dessas primeiras irradiações se observou que o polietileno que envolvia as pastilhas, assim como as próprias pastilhas de  $\text{KNO}_3$ , ficaram fragilizados com irradiações de longa duração. A possibilidade dos alvos se fragmentarem ao longo do experimento impôs limites de tempo para as irradiações (estimado em  $\approx 20$  horas).

As duas irradiações seguintes tiveram duração de 12 e 24 horas e continham um alvo de

$\text{KNO}_3$  descoberto acompanhado de um monitor de fluxo e sob uma cápsula de cádmio outro monitor de fluxo.

A irradiação seguinte com o alvo de  $\text{KNO}_3$  sob cádmio, que durou 24 horas, contou com monitor de fluxo apenas sob o cádmio, já que o fluxo externo ao cádmio não afeta a ativação da amostra. Mesmo com tempo de irradiação tão alto, não foi possível observar a atividade do  $^{43}\text{K}$  após 5 dias de tempo de espera.

Com o objetivo de aumentar o número de núcleos de  $^{42}\text{K}$  na pastilha de  $\text{KNO}_3$ , foram planejadas irradiações em duas etapas. Na primeira etapa a pastilha, acompanhada de um monitor de fluxo, deveria ser irradiada descoberta por 22 horas. Para monitorar o fluxo epitérmico nesta primeira etapa seria irradiado no mesmo coelho um fio de Au-Al dentro de um tubo de cádmio. Após a irradiação, o material seria separado e somente o alvo de  $\text{KNO}_3$  seria colocado em uma cápsula de cádmio junto com um novo monitor de fluxo e colocado dentro de um coelho a ser selado. Esse aparato seria irradiado novamente por mais 29 horas, como segunda etapa do processo. Os tempos de irradiação foram planejados levando em conta o ciclo de funcionamento do reator (que tem duração média de 72 horas) e o tempo de espera mínimo para se retirar um alvo do reator (entre 6 e 8 horas, dependendo da atividade da amostra).

Na primeira tentativa de irradiação em duas etapas, após a primeira, não foi possível selar o coelho para a segunda etapa devido a alta atividade da amostra. Para evitar o ocorrido, na irradiação seguinte a pastilha de  $\text{KNO}_3$ , envolvida por polietileno, foi colocada dentro de uma ampola de quartzo. A irradiação ocorreu normalmente, mas ao final se percebeu que a pastilha se desfez ao longo do processo.

Para evitar o uso de polietileno dentro da ampola de quartzo e fixar a posição do  $\text{KNO}_3$  ao longo de todo o experimento, foram testados métodos de fixação do nitrato de potássio no fundo da ampola de quartzo e se optou pelo método explicado na seção 4.1.2.

Foram preparadas três ampolas de quartzo contendo alvos de  $\text{KNO}_3$ , que foram embrulhadas individualmente com folhas de alumínio e colocadas no coelho junto com o monitor de Au-Al (para monitorar o fluxo total) e um fio, também de Au-Al, dentro de um tubo de cádmio com espessura de 0,5 mm (para monitorar o fluxo epitérmico). O dispositivo foi irradiado por 22 horas e, após 8 horas de espera, o coelho foi aberto e os alvos foram separados.

Das 3 ampolas de quartzo irradiadas, 2 se romperam. A ampola que se manteve íntegra foi colocada, junto com um novo monitor de fluxo, dentro de uma cápsula de cádmio em forma de cilindro com aproximadamente 2,5 cm de diâmetro e 5 cm de altura, confeccionada manualmente a partir de folhas de cádmio com 0,5 mm de espessura. Sob essa nova disposição o alvo foi irradiado por mais 29 horas. Após um tempo de espera de 3 dias, a atividade  $\gamma$  da amostra foi medida. Os resultados para a integral de ressonância da reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  que são apresentados no capítulo 6 provêm desta irradiação.

### 4.3 Descrição dos sistemas de detecção

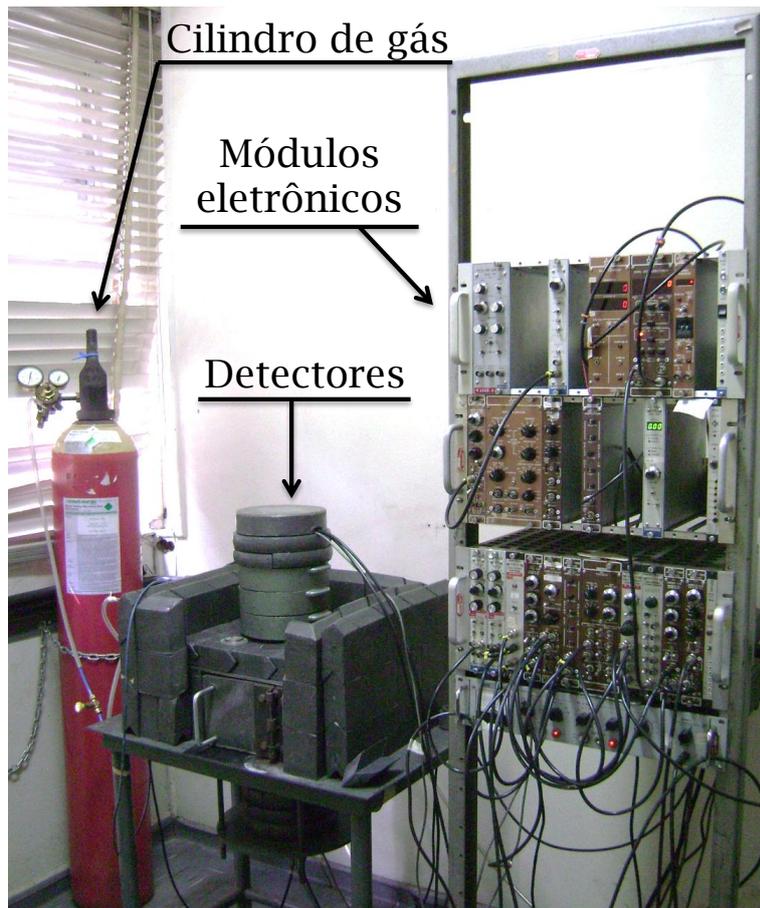
Foram usados dois sistemas de detecção distintos. Um sistema de coincidências  $4\pi\beta-\gamma$  para determinar a atividade  $\beta$  das fontes contendo enxofre e um detector de germânio hiper puro para determinar a atividade  $\gamma$  dos monitores de fluxo e dos alvos de  $\text{KNO}_3$ .

#### 4.3.1 Sistema de detecção $4\pi\beta-\gamma$

As atividades das amostras de enxofre foram medidas no sistema de detecção  $4\pi\beta-\gamma$  do Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN/CNEN-SP usando o método de coincidências, que é aplicado a núclídeos que se desintegram pela emissão de duas radiações que possam ser consideradas simultâneas tais como  $\beta-\gamma$ ,  $\alpha-\gamma$ ,  $\gamma-\gamma$ ,  $\gamma-X$  etc [78], onde o período de transição ao nível fundamental seja desprezível comparado com os tempos de resolução eletrônicos. No caso das coincidências  $\beta-\gamma$ , usam-se dois detectores, de tal forma que cada tipo de radiação é detectado por apenas um deles.

O sistema de coincidência  $4\pi\beta-\gamma$ , mostrado na figura 4.8, é constituído por um detector proporcional a gás fluente, com geometria  $4\pi$  para detecção da radiação  $\beta$  ( $\beta^+$  e  $\beta^-$ ),  $\alpha$ , elétrons de conversão, raios-X e elétrons Auger, acoplado a dois cristais cintiladores de  $\text{NaI(Tl)}$ , para detecção da radiação gama. Os eventos coincidentes são registrados quando detectados simultaneamente nos dois detectores (proporcional e  $\text{NaI(Tl)}$ ). A geometria deste sistema foi simulada e está detalhada na seção 5.2.

O detector proporcional do LMN é composto por duas peças simétricas de latão, mostradas na figura 4.9, entre as quais é encaixada uma placa deslizante com um orifício para o posicionamento da fonte no interior do detector, sem a necessidade de abri-lo. A vedação é garantida por um sistema de anéis de borracha dispostos em cada uma das metades.

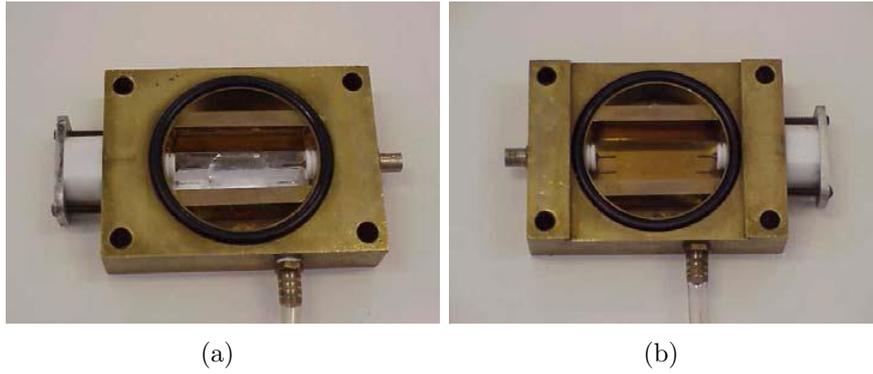


**Figura 4.8:** Fotografia do sistema de coincidências  $4\pi\beta-\gamma$ .

Seu volume interno é delimitado por definidores de latão, que o tornam aproximadamente cilíndrico quando as duas partes do conjunto são justapostas, tendo 3,0 cm de diâmetro e comprimento de 7,5 cm.

O contador proporcional apresenta baixo ruído, baixa sensibilidade para radiação  $\gamma$  ( $< 1\%$ ) [79], tempo de recuperação de  $\approx 100$  ns, e alta eficiência na detecção de partículas  $\beta$ , (entre 90 % e 100 %). Em cada metade do detector, paralelamente ao eixo do cilindro, um anodo, formado por um fio de aço inoxidável, com diâmetro de  $25\ \mu\text{m}$ , está esticado e preso por isoladores de teflon em um dos lados e ligados a conectores de alta tensão (2050 V) do outro lado. O interior do contador é preenchido com gás de alta pureza constituído de 90 % de argônio e 10 % de metano (mistura P10), operado à pressão de 0,1 MPa (pressão atmosférica).

A detecção de radiação pelo contador proporcional consiste em coletar as cargas formadas pela interação entre a radiação emitida por uma fonte e o gás. Os elétrons livres assim formados são acelerados pelo campo elétrico no interior do detector em direção ao anodo,



**Figura 4.9:** Partes simétricas (a) superior e (b) inferior do contador proporcional do LMN [79].

ganhando energia no percurso e ionizando outras moléculas do gás, originando uma avalanche, conhecida como avalanche Townsend [67], que termina quando todos os elétrons livres são coletados no anodo. A corrente formada é proporcional ao número de elétrons, que por sua vez, é proporcional à energia depositada pela partícula.

Os pulsos provenientes dos dois anodos distintos do detector proporcional  $4\pi$  são somados gerando um único sinal que passa por um estágio de amplificação. A medida nesta via é feita selecionando-se a região do espectro beta acima do ruído eletrônico. Para isso se faz a discriminação por meio de um analisador monocanal com retardo (*Single Channel Analyzer-Timing*, ou simplesmente SCA-Timing). Após esta discriminação, os pulsos são enviados a um módulo de porta e atraso (*Gate and Delay Generator*) onde é fixado o atraso para a separação dos pulsos no espectro de aquisição de dados, sendo posteriormente enviados para um conversor de tempo em altura de pulso para o registro dos eventos.

As janelas de alumínio (espessura de 0,3 mm) de dois cristais cintiladores cilíndricos de NaI (Iodeto de Sódio) ativado com tálio (Tl), com 76 mm de altura e 76 mm de diâmetro, estão posicionados em contato direto com as faces superior e inferior do contador proporcional.

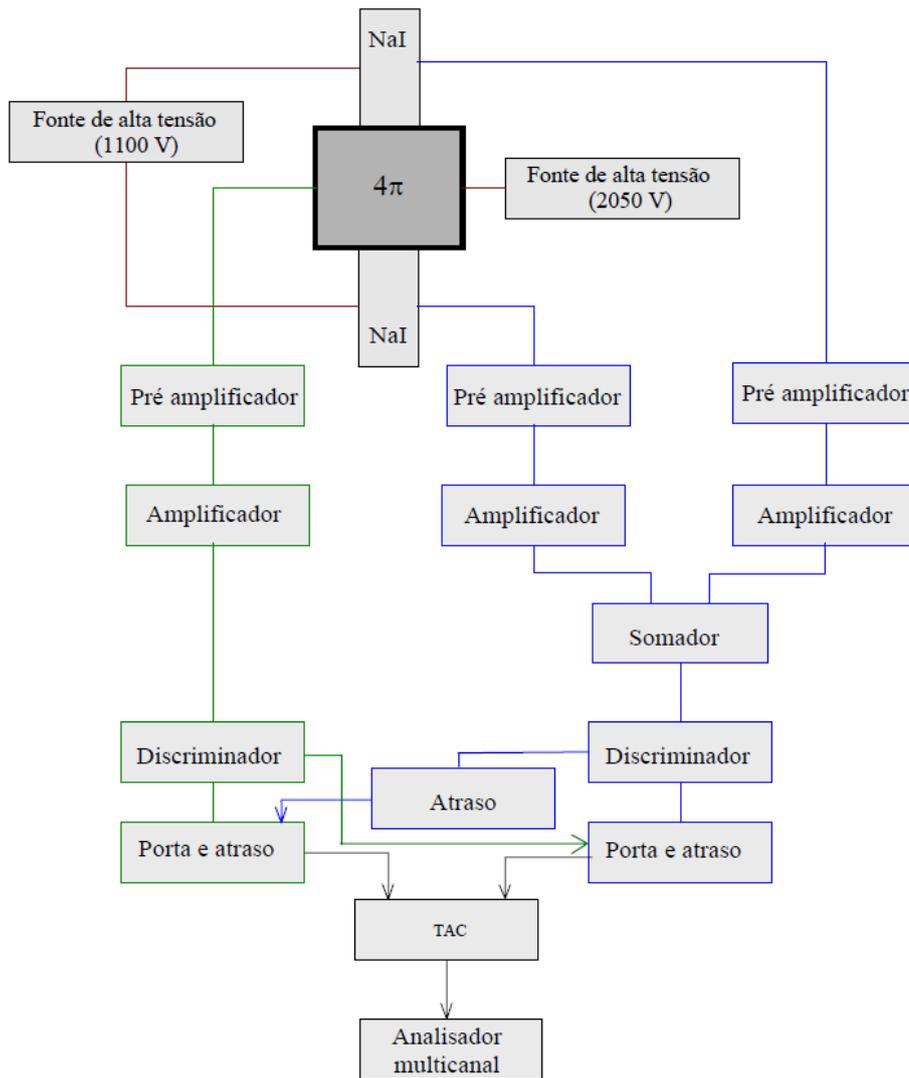
Os fótons emitidos pela fonte radioativa atravessam o latão, a janela de alumínio e incidem sobre o cristal produzindo ionizações que podem ser detectadas pela emissão de cintilações por meio das quais as moléculas do cristal retornam ao estado fundamental. A luz visível assim gerada incide em um fotocátodo que a converterá em elétrons que, posteriormente, serão multiplicados nos dinodos da fotomultiplicadora. Esta corrente elétrica produz um pulso cuja altura é proporcional à energia depositada pela radiação no interior do cristal.

A cada um dos detectores estão acoplados equipamentos eletrônicos que permitem os ajustes necessários para a medida e aquisição de dados. Este sistema é composto por duas vias distintas,  $\beta$  e  $\gamma$ , cada uma destinada a um tipo de detector.

Os pulsos provenientes dos dois detectores distintos de NaI(Tl) passam por amplificadores e são somados gerando um único sinal. A medida nesta via é feita selecionando-se, por meio de um SCA-Timing, uma faixa de energia do espectro gama que cubra as contagens referentes a um ou mais picos de absorção total. Somente as contagens dentro dessa faixa de energia, também chamada de “janela”, são consideradas para a coincidência. Após esta discriminação, os pulsos são tratados de modo semelhante à via beta. O esquema do sistema eletrônico é apresentado na figura 4.10.

Antes de se iniciar as medidas com o sistema  $4\pi\beta-\gamma$  é necessário verificar o bom funcionamento de cada detector individualmente e definir as janelas de discriminação. Lendo o sinal diretamente de cada amplificador e posteriormente de cada discriminador, é possível observar os espectros  $\beta$  e  $\gamma$  como os apresentados na figura 4.11. A janela do espectro  $\beta$ , como mostrada na figura 4.11(a), discrimina somente os sinais de ruído a baixa energia (estimado em 0,7 keV [80]) que não compõem a estrutura principal do espectro, atribuída ao decaimento  $\beta$  da fonte. Para diminuir a probabilidade de coincidências  $\gamma-\gamma$ , a janela do espectro  $\gamma$  cobre somente a faixa de energia que contém os picos de absorção total dos fótons de 1173 e 1332 keV, como se observa na figura 4.11(b).

O método utilizado para o registro das contagens em coincidência foi desenvolvido no LMN do IPEN e utiliza um módulo TAC (*Time-to-Amplitude Converter*), acoplado a um multicanal, onde é feito o registro dos espectros de aquisição de dados [79, 80, 81]. O espectro de coincidência é montado a partir da diferença de tempo entre os pulsos recebidos. Quando o módulo TAC recebe um pulso, se inicia uma contagem de tempo que cessa com a chegada de um novo pulso. Cada canal do espectro corresponde a uma diferença de tempo entre pulsos, assim os diferentes tempos de atraso dados aos pulsos das vias  $\beta$  e  $\gamma$  permitem a associação das contagem nos espectros aos eventos de detecção. Como pode ser visto na figura 4.12, as contagens  $\beta$  estão localizadas nos canais iniciais e as contagens  $\gamma$  nos canais finais. Quando a espera entre dois pulsos consecutivos da mesma via é interrompido por um pulso da outra via, resulta em uma contagem no centro do espectro, que caracteriza uma coincidência [82].



**Figura 4.10:** Diagrama do arranjo eletrônico convencional utilizado no sistema de coincidências  $4\pi\beta-\gamma$  [79].

Isso implica que uma parte, tanto das contagens  $\beta$  quanto das contagens  $\gamma$ , é contabilizada como coincidência; dessa maneira o número total de contagens  $\beta$  e  $\gamma$  é a contagem de cada pico somada as contagens de coincidência. As contagens intermediárias entre a coincidência e os picos são coincidências espúrias (ou acidentais), que estão diretamente relacionadas com a taxa de contagem.

Foram realizadas séries de medidas de 3000 s de cada uma das fontes radioativas preparadas e para cada medida de fonte foram medidos 500 s de fundo. Os resultados foram analisados com o auxílio do programa CONTAC [81], cujo funcionamento será explicado no capítulo 6.

Para obter a atividade da fonte, é necessário uma curva de eficiência em função da ineficiência do sistema, assim como explicado na seção 3.5.1. Com o intuito de variar a eficiência  $\beta$  de detecção foram adicionados filmes de colódio metalizado com ouro (assim como descrito na seção 4.2.2) acima e abaixo da fonte (formada pela arandela com colódio contendo material radioativo). Os filmes de colódio são fixados na arandela ao se criar uma atmosfera rica em acetona com o auxílio de uma placa petri.

A cada filme de colódio adicionado à fonte, foi realizada uma medida de 3000 s da fonte e 500 s de fundo. Na seção 5.2 é mostrado um conjunto de dados obtido por esse método e a curva de extrapolação obtida por simulações é apresentada.

### 4.3.2 Detectores de germânio hiper puro

Detectores coaxiais de germânio hiper puro (HPGe – *High Purity Germanium*) consistem basicamente em um monocristal de germânio sob alta tensão com um furo em uma das bases onde se encaixa uma barra cilíndrica de cobre, cuja extremidade oposta fica mergulhada em nitrogênio líquido para manter o cristal a baixa temperatura; essa barra é chamada de dedo frio. O cristal é também conectado a um sistema de amplificação de pulsos resultantes da coleta de cargas. Todo esse dispositivo fica encapsulado em uma casca cilíndrica de alumínio com conectores para os cabos de tensão e comunicação com o amplificador e uma abertura para o dedo frio ficar mergulhado em nitrogênio dentro de um dewar, como mostrado no esquema da figura 4.13.

As medidas de atividade gama residual das fontes irradiadas foram efetuadas com um detector HPGe da marca Canberra, que possui um cristal cilíndrico, cujo eixo principal tem orientação vertical, com 4,65 cm de diâmetro e 4,55 cm de altura que funciona sob tensão de -4000 V. O detector está montado de forma que o cristal fique dentro de uma blindagem feita com blocos de chumbo, como mostrado na figura 4.13. Com tal blindagem é possível reduzir consideravelmente a detecção do fundo radioativo, podendo chegar a menos que 3 contagens por segundo. A blindagem também conta com revestimentos internos de cádmio, cobre, alumínio e plástico para barrar raios-x produzidos pelo espalhamento da radiação na própria blindagem.

Para realizar as medidas, as fontes radioativas foram colocadas em suportes rígidos com

geometria reproduzível, mostrada na figura 4.13. A escolha da distância entre a fonte radioativa e a superfície plana superior da cápsula de alumínio do detector se baseia nos critérios:

- número de contagens que se pretende obter considerando a taxa de decaimento das amostras;
- limite da taxa de contagem que o sistema de detecção pode discriminar;
- minimização da correção por efeito de soma e do tempo morto da aquisição de dados.

O sistema eletrônico de detecção consiste no detector HPGe conectado a um módulo eletrônico DSPEC, que por sua vez está conectado a um micro computador para armazenar e analisar os espectros obtidos, como mostrado na figura 4.14.

O DSPEC (*Digital gamma ray SPECTrometer*) é um espectrômetro digital, capaz de digitalizar os pulsos do pré-amplificador e tratar estes dados numericamente até a obtenção do espectro, evitando perdas e deformações por empilhamento, resultando em um bom controle de tempo morto. Tal sistema também assegura a estabilidade da posição do foto-pico e a resolução do espectro gama para medidas de longa duração (podendo chegar a meses). Com este dispositivo, é possível otimizar os parâmetros de integração e derivação numérica do sinal digitalizado (tempo de subida, platô, inclinação e cúspide), obtendo-se um tempo morto de medição muito reduzido, resolução em energia semelhante à observada em taxas baixas e deformação mínima do pico de absorção total de energia no espectro gama obtido a taxas de até  $1,0 \times 10^5$  contagens por segundo [83].

Antes de realizar as medidas de atividade dos alvos irradiados foi necessária a calibração dos detectores em energia, para identificar os picos de interesse, e em eficiência, para quantificar as atividades das amostras. As medidas de calibração consistiram em medidas de curta duração (de 1 a 60 minutos) de fontes padrão de referência. As fontes de calibração usadas foram  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{152}\text{Eu}$ , cujos detalhes técnicos (como construção, materiais e dimensões) são apresentadas no apêndice A da referência [84] e a lista de energias e intensidades  $\gamma$  consideradas na calibração são apresentadas na tabela 4.1.

Também foram realizadas medidas sem nenhuma fonte radioativa próxima ao detector, para observar a radiação natural do ambiente; essa medida (multiplicada por um fator de

**Tabela 4.1:** Radionuclídeos usados como fonte padrão [65, 85, 86].

| Nuclídeo          | Meia-vida (anos) | Energia dos fótons $\gamma$ (keV) | Intensidade $\gamma$ por decaimento (%) |
|-------------------|------------------|-----------------------------------|---|
| $^{60}\text{Co}$  | 5,2747(4)        | 1173,228(3)                       | 99,85 (3)                               |
|                   |                  | 1332,492(4)                       | 99,9826(6)                              |
| $^{137}\text{Cs}$ | 30,08(9)         | 661,657(3)                        | 85,10(20)                               |
|                   |                  | 244,6975(8)                       | 7,61(4)                                 |
|                   |                  | 344,2785(12)                      | 26,6(5)                                 |
|                   |                  | 411,1163(11)                      | 2,237(25)                               |
|                   |                  | 443,965(3)                        | 2,830(23)                               |
| $^{152}\text{Eu}$ | 13,537(6)        | 778,9040(18)                      | 12,96(14)                               |
|                   |                  | 964,079(18)                       | 14,65(7)                                |
|                   |                  | 1112,069(3)                       | 13,69(7)                                |
|                   |                  | 1408,006(3)                       | 21,07(10)                               |
|                   |                  |                                   |   |

equivalência dos tempos de medida) foi subtraída das medidas com fontes para evitar que a radiação de fundo seja incluída indesejavelmente na área dos picos de interesse, em caso de coincidir no espectro a posição de um pico de radiação de fundo com um pico da fonte radioativa.

Como visto na secção 3.6, a atividade de uma fonte é determinada a partir do valor da área do pico apresentado no espectro. Para determinar a área dos foto-picos é usado o programa *IDEFIX from WINDOWS* [87, 88]. Tal programa foi desenvolvido no Laboratório do Acelerador Linear e permite ajustar, usando o método dos mínimos quadrados, gaussianas sobre os picos de absorção total do espectro  $\gamma$  para calcular as áreas dos mesmos a partir da integral sob a curva ajustada. Um exemplo de ajuste está mostrado na figura 4.15.

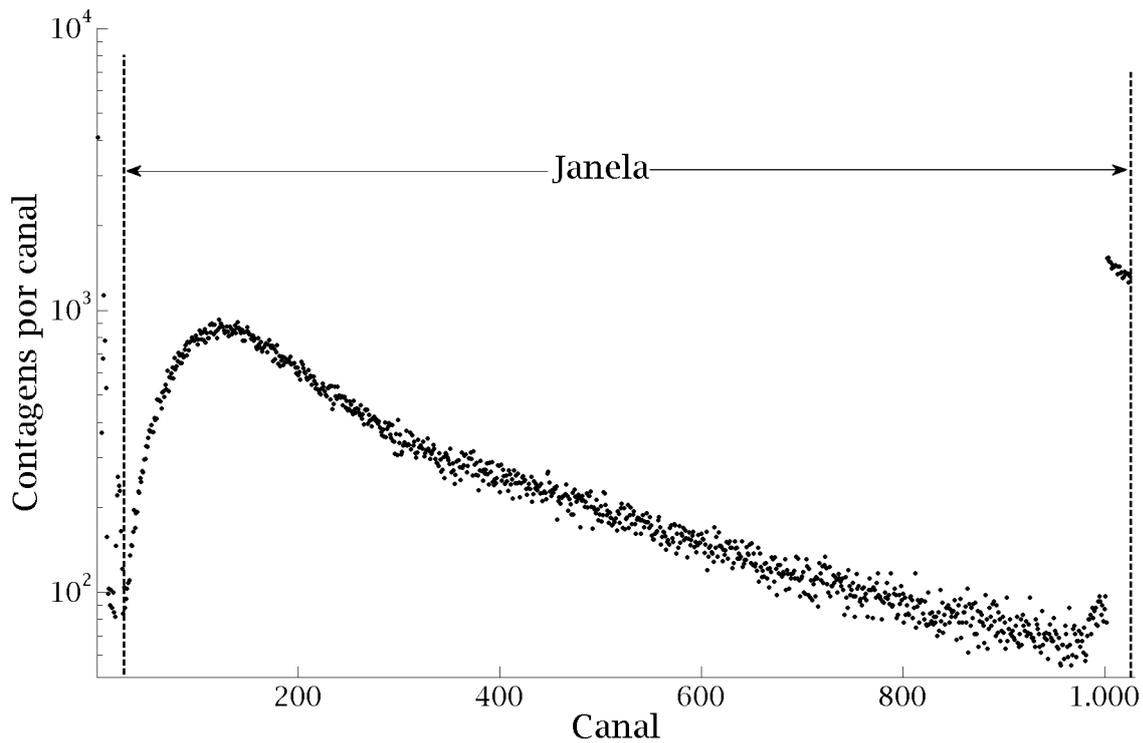
Para o uso da equação 3.32 no cálculo das atividades a partir das áreas observadas, foi necessária a correção da perda de contagens por efeito soma para os picos de absorção total do  $^{60}\text{Co}$  e do  $^{152}\text{Eu}$  (explicada no apêndice A da referência [31]). Como as atividades das fontes calibradas são conhecidas, o valor que se obtém com a equação 3.32 é a eficiência para a energia dos fótons emitidos pelas fontes. A função mostrada na equação 3.30 foi ajustada às eficiências de detecção experimentais para as energias apresentadas na tabela 4.1 por meio do Método dos Mínimos Quadrados e pode ser observada na figura 4.16.

A atividade das pastilhas irradiadas foi determinada por meio de séries de 1 a 50 medidas com tempos entre 60 e 3600 s. Nas medidas das pastilhas de  $\text{KNO}_3$  foi colocado, entre a fonte e o detector, um absorvedor de alumínio para barrar as partículas  $\beta^-$  provenientes do  $^{42}\text{K}$

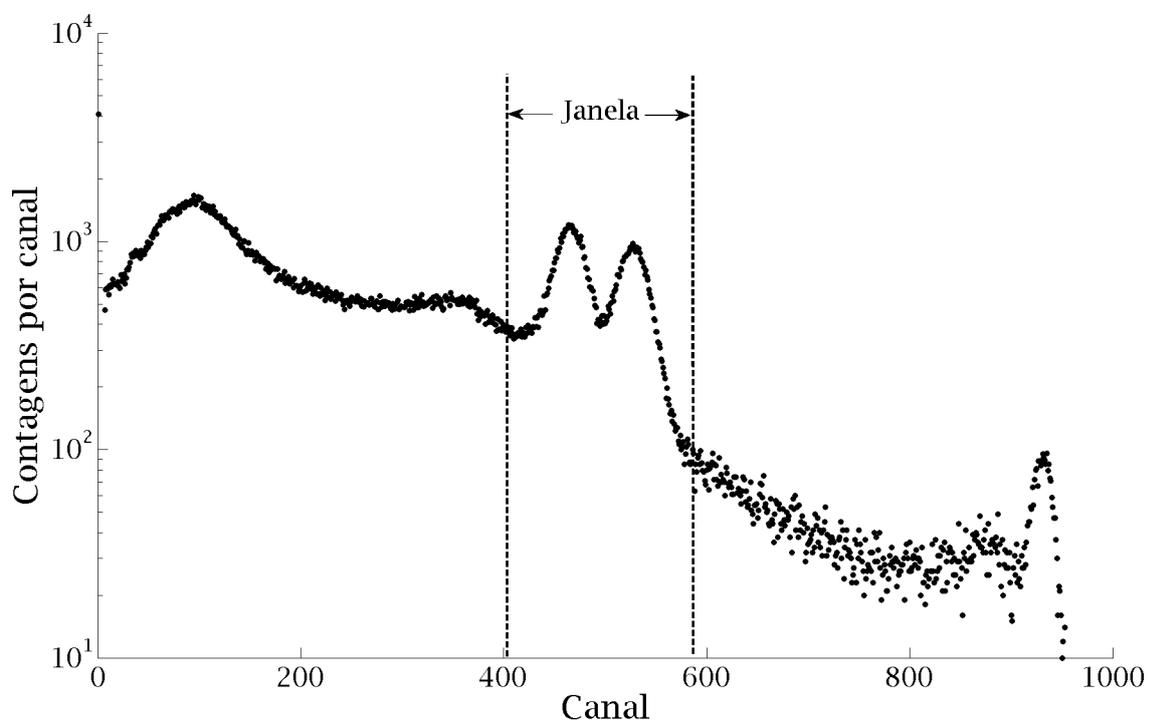
**Tabela 4.2:** Energia, intensidade gama e procedência dos foto-picos enumerados na figura 4.17. Na última coluna, ES e ED explicitam que o pico foi formado a partir do escape simples ou duplo dos fótons de aniquilação,  $\gamma^\pm$ .

| Número | Energia (keV)                 | Intensidade gama (%)    | Núcleo de origem                 |
|--------|-------------------------------|-------------------------|----------------------------------|
| 1      | 72-75 e 84-88                 | -                       | raios-X K do Pb                  |
| 2      | 312,60(25)                    | 0,336(20)               | $^{42}\text{K}$                  |
| 3      | <b>372,60(25)</b>             | <b>86,80</b>            | $^{43}\text{K}$                  |
| 4      | 411,80205(17)                 | 95,62                   | $^{198}\text{Au}$                |
| 5      | 510,998910(13)                | -                       | $\gamma^\pm$                     |
| 6      | 554,348(2)                    | 71,1(8)                 | $^{82}\text{Br}$                 |
| 7      | <b>617,490(6); 619,106(4)</b> | <b>79,2(6); 43,5(5)</b> | $^{43}\text{K}; ^{82}\text{Br}$  |
| 8      | 698,374(5)                    | 28,3(4)                 | $^{82}\text{Br}$                 |
| 9      | 776,517(3)                    | 83,4(12)                | $^{82}\text{Br}$                 |
| 10     | 827,828(6)                    | 24,0(4)                 | $^{82}\text{Br}$                 |
| 11     | 899,7(4)                      | 0,052(3)                | $^{42}\text{K}$                  |
| 12     | 1014                          | -                       | ES 1524,6(3) $^{42}\text{K}$     |
| 13     | 1044,002(5)                   | 28,3(4)                 | $^{82}\text{Br}$                 |
| 14     | 1077,0(4)                     | 8,64                    | $^{86}\text{Rb}$                 |
| 15     | 1173,228(3)                   | 99,85(3)                | $^{60}\text{Co}$                 |
| 16     | 1317,473(10); 1332,492(4)     | 26,8(4);99,9826(6)      | $^{82}\text{Br}; ^{60}\text{Co}$ |
| 17     | 1368,626(5)                   | 99,9936(15)             | $^{24}\text{Na}$                 |
| 18     | 1474,88(1)                    | 16,60(23)               | $^{82}\text{Br}$                 |
| 19     | 1524,6(3)                     | 18,08                   | $^{42}\text{K}$                  |
| 20     | 1732                          | -                       | ED 2754 $^{24}\text{Na}$         |
| 21     | 2243                          | -                       | ES 2754 $^{24}\text{Na}$         |

(detalhado na referência [31]). Um exemplo de espectro obtido nessas medidas é mostrado na figura 4.17. As energias e origens dos foto-picos enumerados na figura 4.17 são mostradas na tabela 4.2. Na figura 4.18 são ampliadas as regiões do espectro mostrado na figura 4.17 que contêm os foto-picos provenientes do decaimento do  $^{43}\text{K}$ .

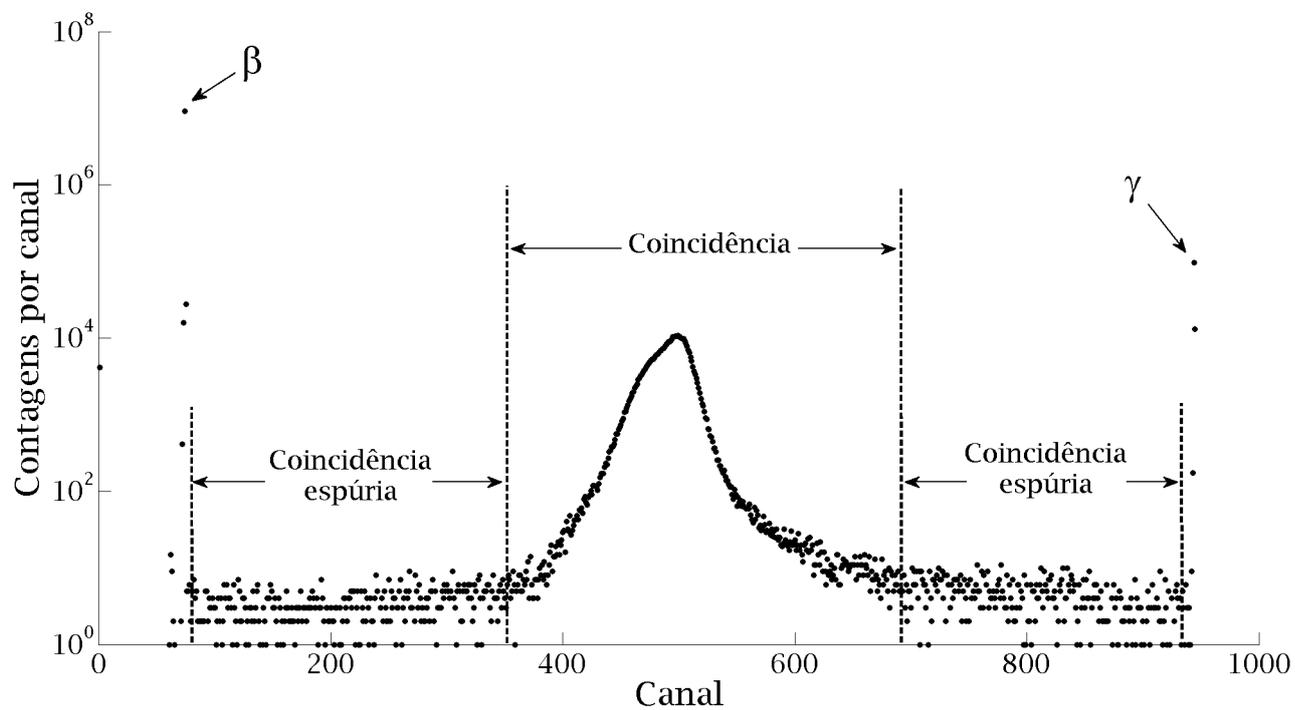


(a)

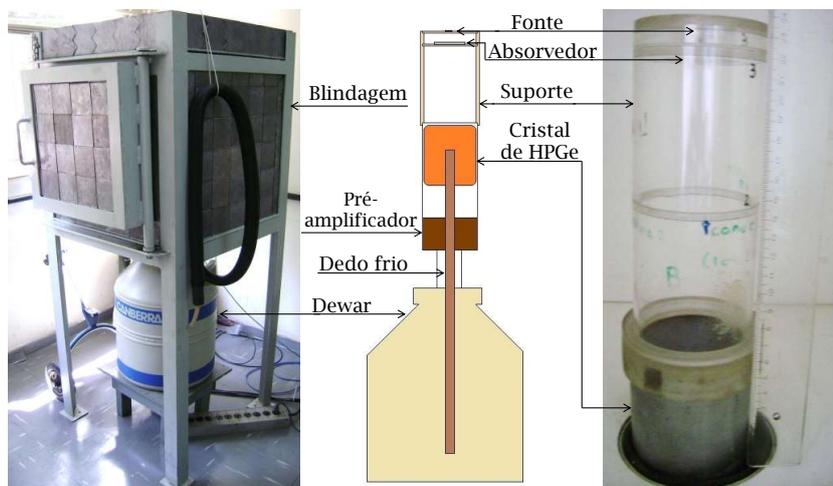


(b)

**Figura 4.11:** Espectros (a)  $\beta$  e (b)  $\gamma$ , resultantes de medidas de 1000 s de uma fonte de  $^{60}\text{Co} + ^{35}\text{S}$ . As linhas verticais tracejadas indicam os limites de aceitação da janela de coincidência. No espectro  $\gamma$  é possível observar, próximo ao canal 1000, o pico formado pela soma dos fótons provenientes do  $^{60}\text{Co}$ .



**Figura 4.12:** Espectro de diferenças de tempo de uma medida de 3000 s de uma fonte de  $^{60}\text{Co}+^{35}\text{S}$ . As setas e linhas verticais tracejadas indicam a origem das contagens em cada região do espectro.



**Figura 4.13:** Fotografias do detector HPGe com esquema explicativo.

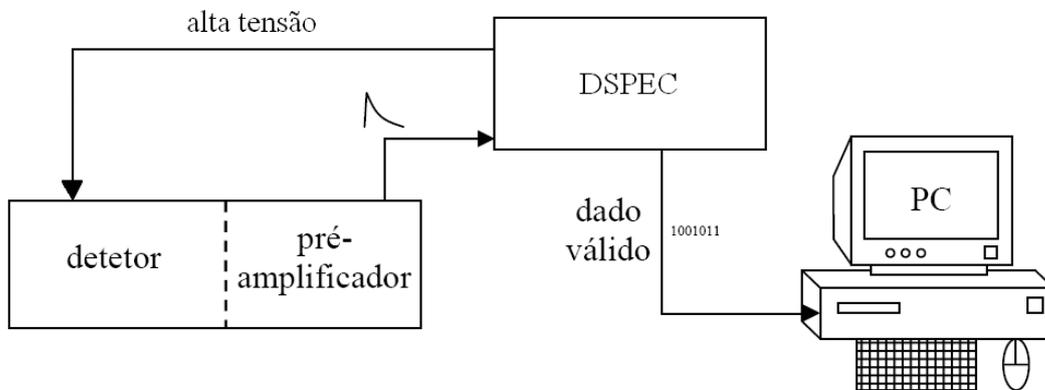


Figura 4.14: Esquema do sistema para medição da radiação gama com detector HPGe.

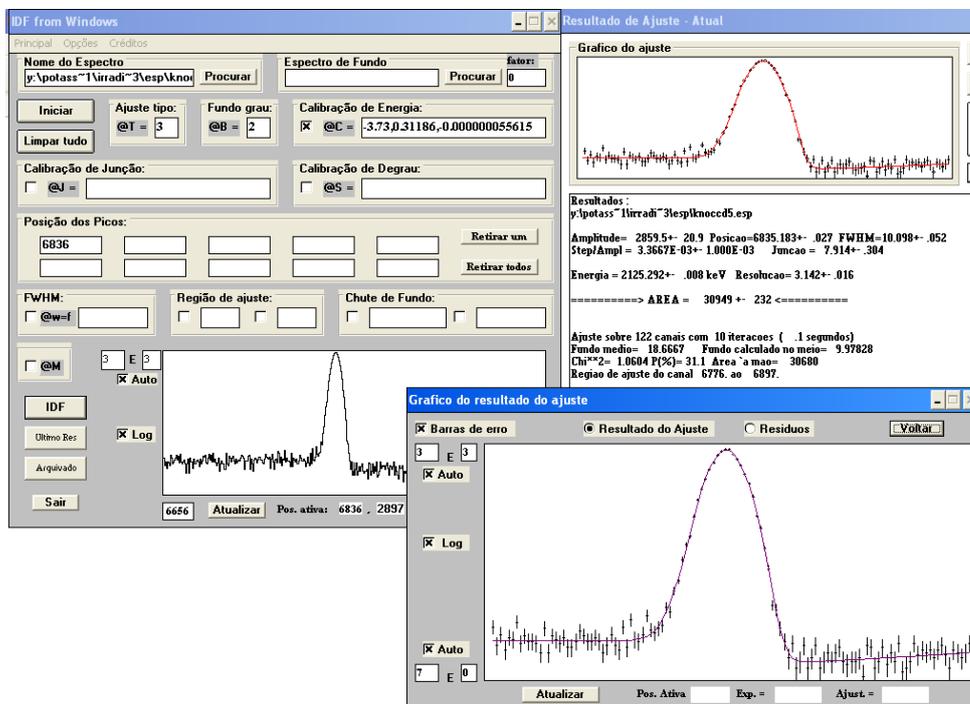
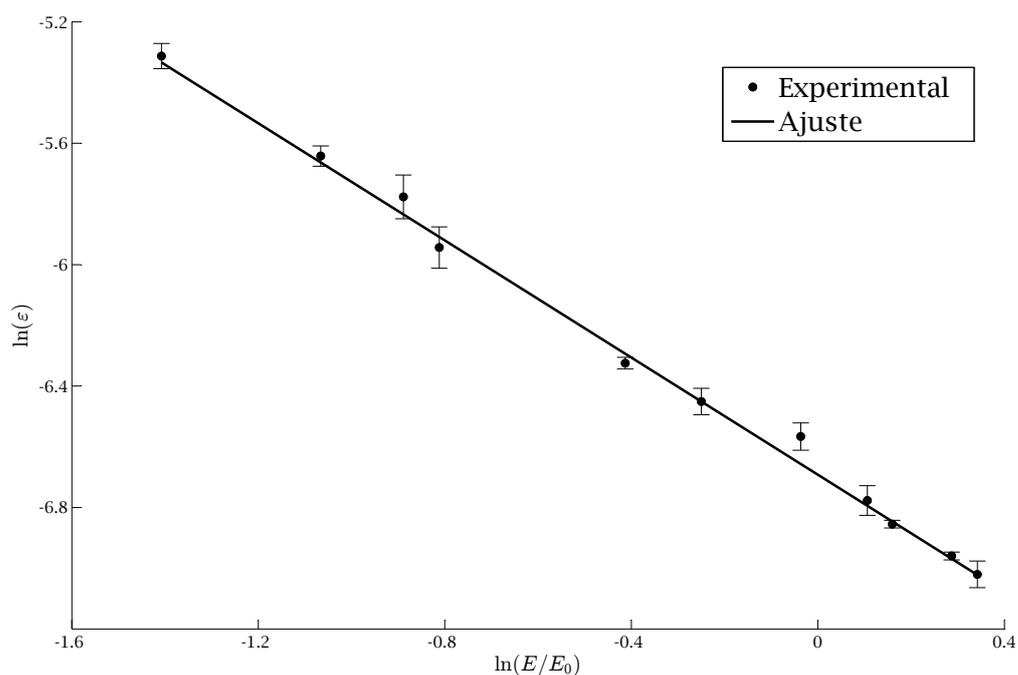
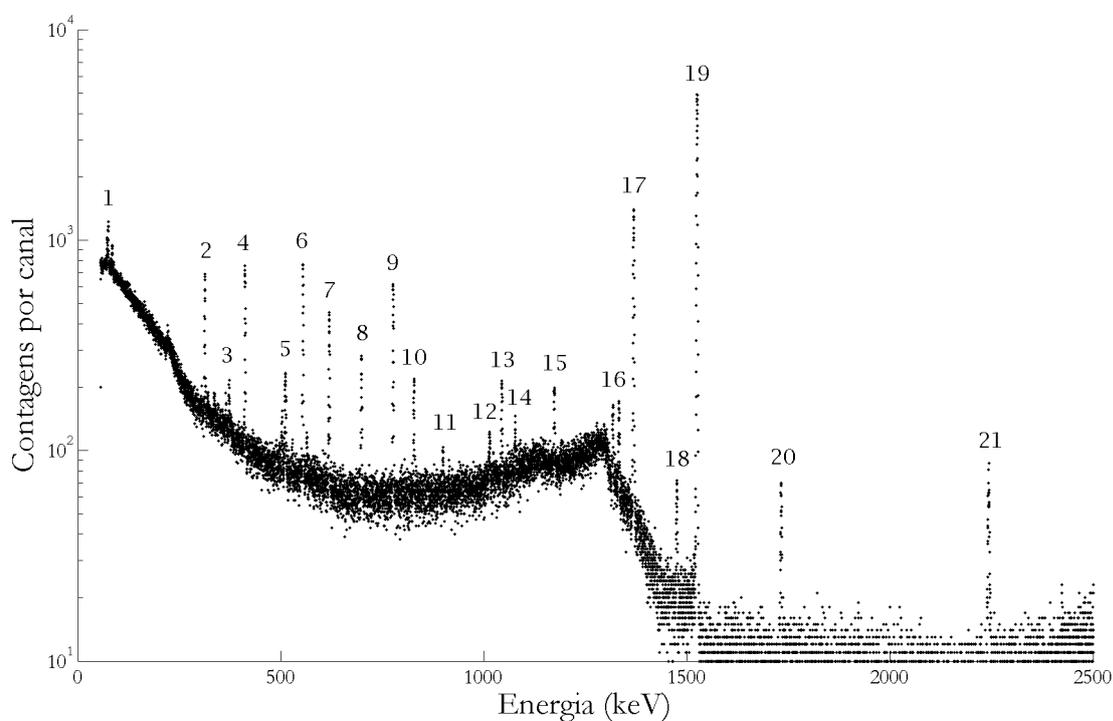


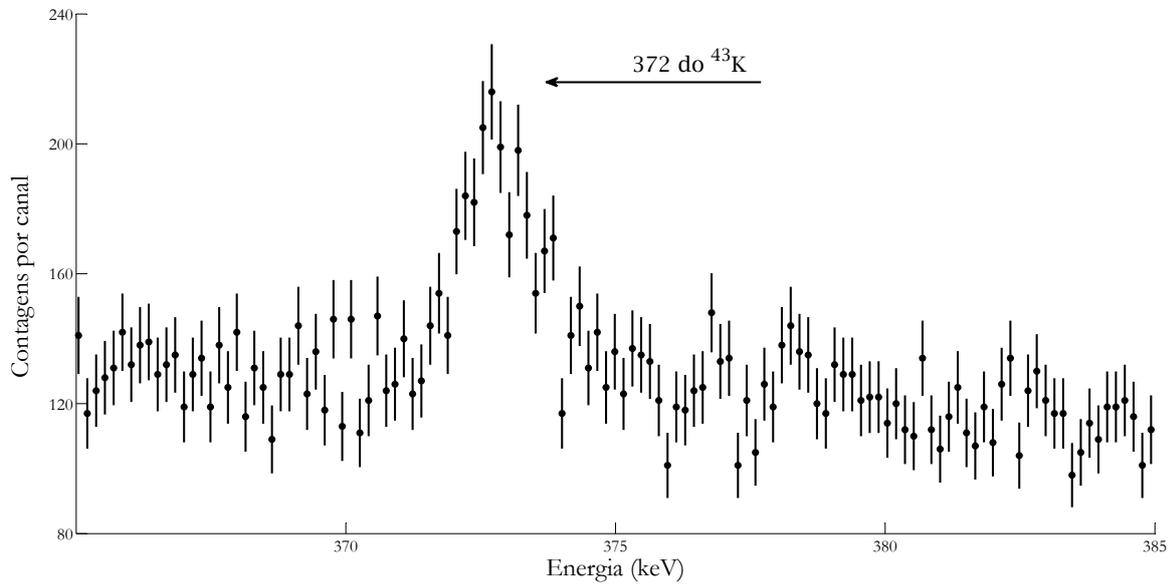
Figura 4.15: Telas do programa IDEFIX from WINDOWS mostrando um ajuste de função às contagens do pico de absorção total.



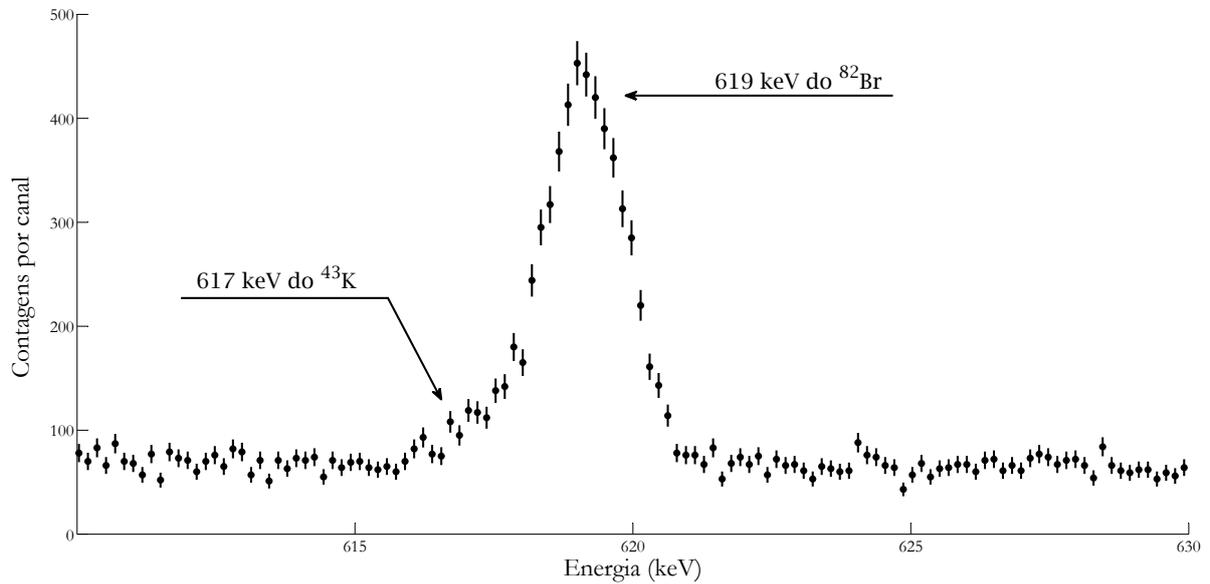
**Figura 4.16:** *Reta ajustada aos resultados experimentais da eficiência de detecção para fontes de  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{152}\text{Eu}$ , a 10 cm de distância fonte-detector.*



**Figura 4.17:** *Espectro da atividade  $\gamma$  induzida em uma pastilha de  $\text{KNO}_3$  irradiada por 12 horas. Tempo de medida de 1 hora e 10 cm de distância fonte-detector com resolução de 0,16 keV/canal, com absorvedor de Al de 520 mg/cm<sup>2</sup>.*



(a)



(b)

**Figura 4.18:** Regiões 3, em (a), e 7, em (b), do espectro  $\gamma$  apresentado na figura 4.17 contendo os picos de interesse do  $^{43}\text{K}$ .



## Capítulo 5

# Simulações

Quando certos fenômenos físicos repetem-se aleatoriamente em grande quantidade e com probabilidades variadas, é comum usar o método de Monte Carlo para tentar obter uma solução numérica dos problemas relacionados aos mesmos. O método de Monte Carlo consiste em realizar sorteios virtuais, usando números pseudo-aleatórios, repetidas vezes de forma a simular processos aleatórios da natureza e possibilitar, a partir daí, a simulação de experimentos de interesse [89]. Em física, cada dia é mais comum o uso de códigos de Monte Carlo de confiabilidade reconhecida para simulações de experimentos com o objetivo de otimizá-los [90].

Os programas MCNP5 (*Monte Carlo N-Particle version 5*) [91, 92] e PENELOPE (*PE-Netration and Energy LOss of Positrons and Electrons*) [93] são programas multi-propósito capazes de transportar, separadamente ou de forma acoplada, fótons, elétrons, pósitrons e, somente no caso do MCNP5, nêutrons. Os códigos aplicam modelos de interação no transporte de partículas e dão suporte para a simulação de geometrias tri-dimensionais arbitrárias preenchidas com quaisquer dos materiais cujas seções de choque são conhecidas, assim, os resultados dependem dos valores das bibliotecas de seções de choque cuja precisão, em alguns casos ou para certas interações pode diferir dos resultados experimentais [90, 94, 95].

No presente trabalho, o programa MCNP5 foi usado para calcular, por meio de transporte de nêutrons, fatores de correção relacionados à depressão de fluxo, auto-blindagem e auto-absorção nos alvos irradiados. O código do programa PENELOPE foi modificado para simular, por meio do transporte de elétrons e fótons, o sistema de coincidências e calcular a curva de extrapolação da eficiência.

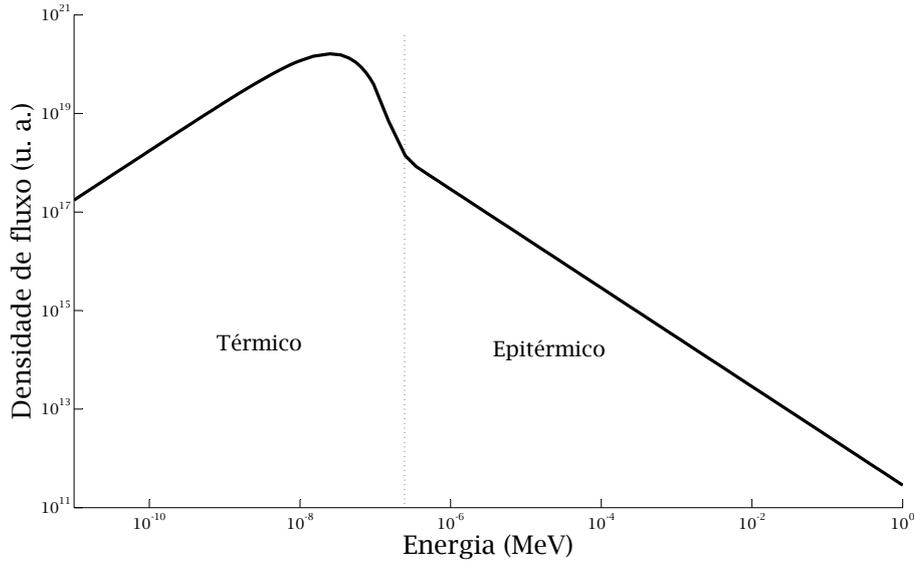
## 5.1 Correção do fluxo

Foi usado o programa MCNP5 para calcular o fator de correção  $F$ , que corrige os efeitos de depressão do fluxo de nêutrons e auto-blindagem do alvo, fatores necessários de serem levados em consideração, como comentado na seção 3.1.

O MCNP5 é uma das versões mais atuais do grupo de programas de transporte de partículas que vêm sendo desenvolvidos desde a década de 40, chamado MCNP. Capaz de transportar nêutrons com energia desde  $10^{-11}$  MeV até 150 MeV e fótons desde 1 keV até 100 GeV, o MCNP5 permite o uso de resultados de 6 bases de dados distintas (contendo valores de seções de choque, parâmetros de modelos de transporte etc). Para usar o MCNP5 é necessário a criação de um arquivo contendo:

- especificações da geometria;
- localização e características físicas da fonte de radiação como o tipo de partícula emitida, distribuição de probabilidades de energia e direção etc;
- tipo de resposta ou registro que se deseja do cálculo;
- descrição dos materiais e seleção da base de dados a ser usada;
- especificações do uso de técnicas de redução de variância para aumentar a eficiência das simulações.

Para analisar as irradiações realizadas foi necessário simular a distribuição do fluxo de nêutrons ao redor do alvo. Baseando-se nos modelos apresentados na seção 2.1, o fluxo de nêutrons incidentes no alvo foi composto por uma parte maxwelliana, descrita pela equação 2.2, e uma parte inversamente proporcional a energia, descrita pela equação 2.4. O parâmetro de forma  $\alpha$  do fluxo epitérmico para a posição 24A prateleira 5 foi adotado com sendo igual a  $1 \times 10^{-3}$ , considerando resultados obtidos em trabalhos anteriores para a mesma posição do reator [96, 97]. O fluxo teórico foi calculado de forma que a razão entre o fluxo total e epicádmio teórica fosse igual à experimental. O resultado obtido é apresentado na figura 5.1, onde a linha vertical pontilhada marca a energia de transição entre o fluxo térmico e epitérmico, adotada como a energia de corte do cádmio: 0,55 eV.



**Figura 5.1:** Fluxo de nêutrons calculado para simular as irradiações realizadas.

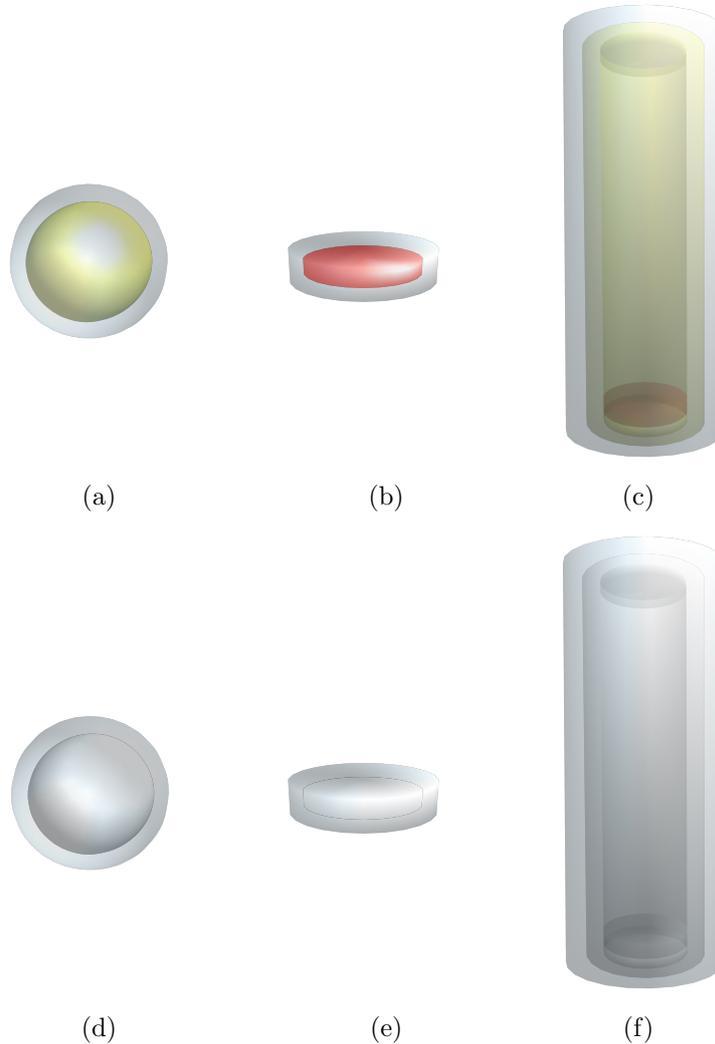
Dada a distribuição em energia do fluxo, foram feitas simulações para verificar a depressão de fluxo e auto blindagem. Os alvos simulados, com as mesmas dimensões que os irradiados, foram representados no centro de uma superfície de exclusão<sup>1</sup> semelhante à superfície exterior do alvo, mas com dimensões 1 mm maiores e sem preenchimento de material. Os nêutrons foram emitidos de pontos aleatórios do volume formado entre a superfície de exclusão e a superfície do alvo. A posição e direção inicial dos nêutrons foram sorteados de forma que todos os valores possíveis das grandezas tivessem a mesma probabilidade. Já a energia inicial dos nêutrons foi sorteada de forma que a distribuição obedecesse a curva teórica apresentada na figura 5.1.

A determinação dos fatores de correção consistiram em comparar o fluxo médio integrado dentro do material irradiado com o fluxo médio dentro da mesma forma geométrica que representa o alvo, mas sem conter o material, assim como mostrado na figura 5.2. O fluxo médio,  $\bar{\Phi}_V$ , dentro de volume,  $V$ , é informado pelo MCNP5 por meio do registro (*tally*) F4, que calcula o fluxo médio da seguinte forma:

$$\bar{\Phi}_V = \frac{1}{V} \int dE \int dt \int dV \int d\Omega \Psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, E, t) \quad (5.1)$$

<sup>1</sup>o programa pára de acompanhar os nêutrons emitidos assim que eles saem desta superfície

onde  $\vec{r}$ ,  $\hat{\Omega}$  e  $E$  são, respectivamente, a posição, a direção, a energia do nêutron,  $t$  é o tempo virtual calculado a partir da velocidade dos nêutrons e  $\Psi$  é o fluxo angular de nêutrons [98, 99].



**Figura 5.2:** *Imagens ilustrativas das geometrias usadas para simular as irradiações, fora de escala. Envolvidos pelas fontes volumétrica de nêutrons (em cinza) estão os alvos: (a) esfera de enxofre (em amarelo); (b) pastilha de  $\text{KNO}_3$  (em vermelho) e (c) depósito de  $\text{KNO}_3$  (em vermelho) dentro da ampola de quartzo (em amarelo claro). Nas figuras (d), (e) e (f) estão reproduzidas as mesmas geometrias que em (a), (b) e (c), mas os alvos não são preenchidos com materiais (a falta de material é representada pela cor branca, que não pode ser visualizada por estar atrás das fontes volumétricas de nêutrons em cinza).*

Para cada alvo foram realizadas duas simulações, uma do alvo com sua composição química e densidade conhecida e outra com a mesma geometria, mas sem preenchimento. As simulações acompanharam o resultado de  $10^9$  histórias (número de histórias suficientes para que fossem satisfeitos os testes estatísticos), que levaram até 1 dia de máquina para serem calculados.

Todas as irradiações contaram com monitores de fluxo, por isso inicialmente foi simulada a depressão de fluxo e auto-absorção em uma folha de Au-Al sob fluxo total (mas registrando separadamente os nêutrons com energia abaixo de 0,55 eV dos acima de 0,55 eV, o que possibilitou o cálculo dos fatores epitérmicos) e em um fio de Au-Al sob fluxo epitérmico. A expectativa era de que não houvesse perturbação considerável no fluxo [100, 101], e considerando que as massas dos monitores de fluxo são no máximo de 10 mg, foram simulados um disco de Au-Al com 0,127 mm de espessura e 3 mm de diâmetro e um fio de Au-Al com 1 mm de diâmetro e 5 mm de altura. Os fatores foram obtidos pela razão entre os fluxos das simulações (alvo com e sem material), onde  $F$  corresponde ao fator de correção para o fluxo total e  $F_{epi}$  para o fluxo epitérmico. Os resultados são apresentados na tabela 5.1 e é possível observar que os fatores envolvem correções de, no máximo, 0,2 %. Como esperado, as correções são pequenas diante das incertezas dos fluxos que serão apresentados no capítulo 6.

**Tabela 5.1:** *Fatores de correção dos efeitos de auto-blindagem e depressão de fluxo nos monitores de fluxo.*

| Fator     | Folha     | Fio       |
|-----------|-----------|-----------|
| $F$       | 0,9992(2) |           |
| $F_{epi}$ | 0,9992(3) | 0,9984(3) |

Como descrito na seção 4.1.2, os alvos de  $\text{KNO}_3$  eram de 2 tipos: pastilhas com 5 mm de diâmetro e altura de até 3 mm, e deposições no fundo de ampolas de quartzo, que formavam cilindros de 4 mm de diâmetro e até 4 mm de altura. Para o cálculo da seção de choque térmica da reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  foram considerados os resultados de 3 pastilhas irradiadas, com altura de 2,3, 2,8 e 2,9 mm. A integral de ressonância da reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  foi obtida a partir do resultado de 1 amostra de  $\text{KNO}_3$  que, pela massa, foi simulada como tendo 4 mm de altura dentro de um tubo de quartzo, como se observa na figura 5.2. Os alvos de enxofre consistiam em fragmentos disformes. Considerando que a massa dos alvos foi de até 100 mg, os alvos de enxofre foram simulados como esferas com 2,3 mm de raio. Os valores obtidos para os fatores de correção para os efeitos de auto blindagem são apresentados na tabela 5.2. As correções chegam a ser de 1 % para o caso do  $\text{KNO}_3$  dentro do quartzo, correção considerável, porém menor que as incertezas obtidas para as atividades dos alvos, que serão apresentadas no capítulo 6

**Tabela 5.2:** *Fatores de correção dos efeitos de auto-blindagem e depressão de fluxo nos alvos irradiados.*

| Fator     | Espessura da pastilha de KNO <sub>3</sub> (mm) |             |             | KNO <sub>3</sub><br>no quartzo | Enxofre     |
|-----------|--|-------------|-------------|--------------------------------|-------------|
|           | 2,3  | 2,8         | 2,9         |                                |             |
| $F$       | 0,99400(14)                                    | 0,99436(14) | 0,99453(14) | 0,9900(8)                      | 0,99651(14) |
| $F_{epi}$ | 0,99181(14)                                    | 0,99206(14) | 0,99223(14) | 0,9943(8)                      | 0,99778(14) |

## 5.2 Extrapolação da eficiência no detector $4\pi\beta-\gamma$

Medidas com sistemas de coincidências  $4\pi\beta-\gamma$  possibilitam o uso do método da extrapolação da eficiência (como visto na secção 3.5.1), que consiste em estabelecer a relação funcional da eficiência de detecção de elétrons com a razão entre a taxa de coincidência e as taxas de contagem dos dois detectores, de modo que se obtenha o valor da atividade por extrapolação da eficiência a 100 %. Há vários métodos para variar a eficiência do detector  $\beta$ : alterar a auto-absorção pela adição de uma certa quantidade de carregador à solução de preparação das fontes; adicionar, dos dois lados das fontes, absorvedores externos ou variar o nível de discriminação do espectro beta em baixa energia [63].

Portanto, para aplicar o Método da Extrapolação da Eficiência, se faz necessário o conhecimento da resposta do sistema para valores de eficiência que não são obtidos experimentalmente (devido principalmente à necessidade de depositar a solução radioativa sobre um substrato absorvedor) e dependem de modelagem. Um dos métodos que possibilita a obtenção desses valores é o uso de simulações com o método de Monte Carlo.

O sistema de coincidências  $4\pi\beta-\gamma$  do Laboratório de Metrologia Nuclear já foi representado virtualmente com o programa MCNP4C (versão 4c do programa MCNP) e foram realizadas simulações com fontes radioativas [79, 80]. Para fins de comparação e aprimoramento da técnica esse sistema foi reconstruído virtualmente em uma linguagem compatível com o programa PENELOPE.

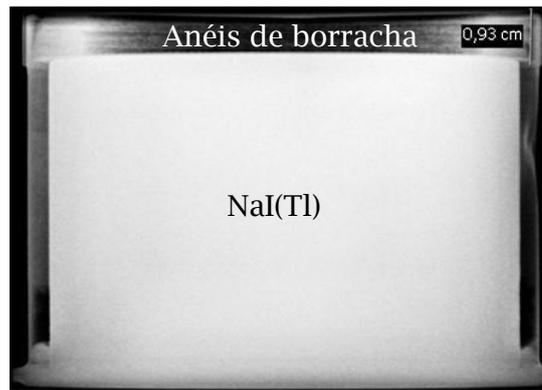
O código de transporte de radiação multi-propósito PENELOPE, que apresenta modelos precisos de interação física (limitado apenas pela generalidade exigida do código) é um algoritmo robusto de rastreamento para elétrons, pósitrons e fótons [102]. O PENELOPE é um pacote constituído por arquivos em código FORTRAN contendo sub-rotinas que gerenciam o uso da base de dados e efetuam os cálculos necessários. Para realizar simulações é necessário

o uso de um programa principal que gerencie a interação entre as sub-rotinas e apresente os resultados em formatos convenientes ao usuário. Optou-se por usar o programa principal do pacote PENEASY [103].

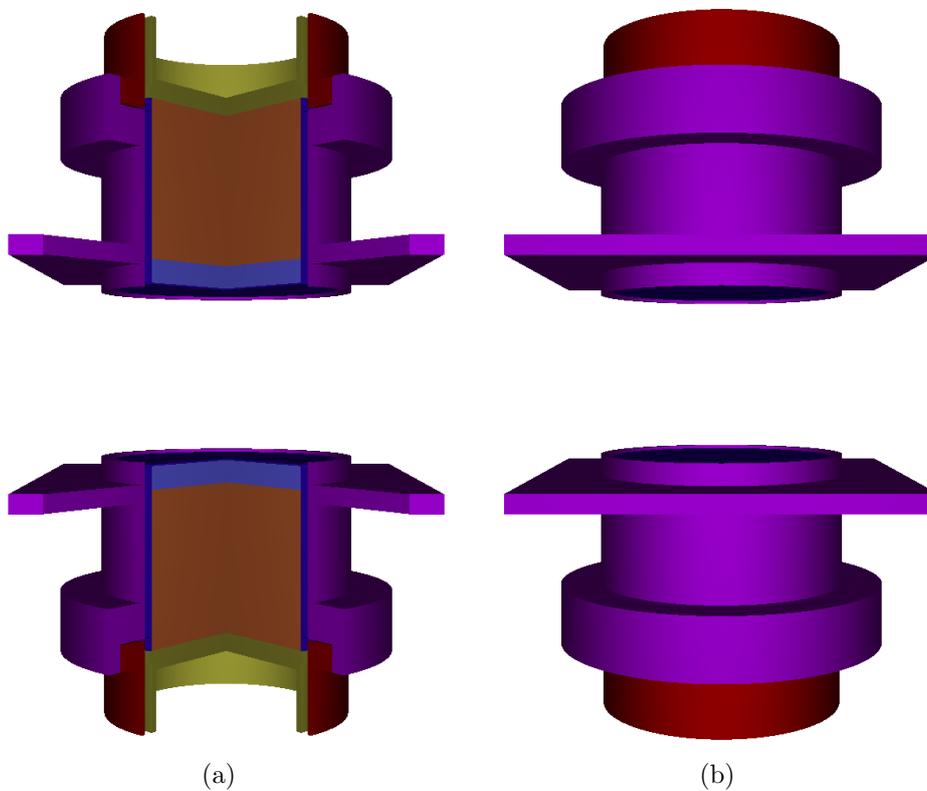
Inicialmente foram construídos os arquivos dos materiais. Para tal processo foi usado o programa MATERIAL, que está contido no pacote do programa PENELOPE. Esse programa permite selecionar um arquivo de material da base de dados disponível no pacote (que inclui cem elementos químicos e 180 compostos e misturas comuns em simulações, como ar, água, metais e compostos orgânicos) ou também possibilita a construção de um material composto a partir de suas características (composição química, proporção estequiométrica e densidade). Ao final do processo o programa MATERIAL gera um arquivo com as informações necessárias para efetuar as simulações.

Os modelos geométricos do sistema simulado foram feitos com o PENGEOM, código que permite construir objetos agrupando superfícies quádricas. Por se tratar de uma geometria complexa, se optou por simplificar algumas partes. Os cristais de NaI foram modelados como cilindros com 7,62 cm diâmetro e 7,62 cm de altura, com distância de 0,93 cm entre o cristal e a capa de alumínio, distância obtida por meio de uma radiografia de um detector idêntico aos simulados, mostrada na figura 5.3. A estrutura interna da fotomultiplicadora foi ignorada e apenas as partes mais próximas dos cristais de NaI foram modeladas, como mostrado na figura 5.4. A câmara de contador proporcional foi modelada como duas peças de latão com simetria em relação ao plano XY, como é possível observar na figura 5.5. Em volta dos detectores foi colocada a blindagem de chumbo com 5 cm de espessura, representada em azul na figura 5.6. As figuras 5.4, 5.5 e 5.6 foram obtidas com o programa *gview3d*, incluso no pacote PENELOPE. Em algumas imagens uma cunha foi excluída para permitir a visão das partes internas do sistema mostrado.

Medidas em coincidência não são contempladas pelos pacotes PENELOPE e PENEASY, porém seus códigos se mostraram versáteis ao ponto de se poderem implementar tais configurações sem a necessidade de modificar sub-rotinas básicas. O programa PENELOPE foi modificado para tornar possíveis simulações com até vinte materiais diferentes, sendo que inicialmente o programa permitia o uso de até dez materiais. No pacote PENEASY padrão há apenas uma sub-rotina que gera partículas emitidas pela fonte (chamado *Box Isotropic*

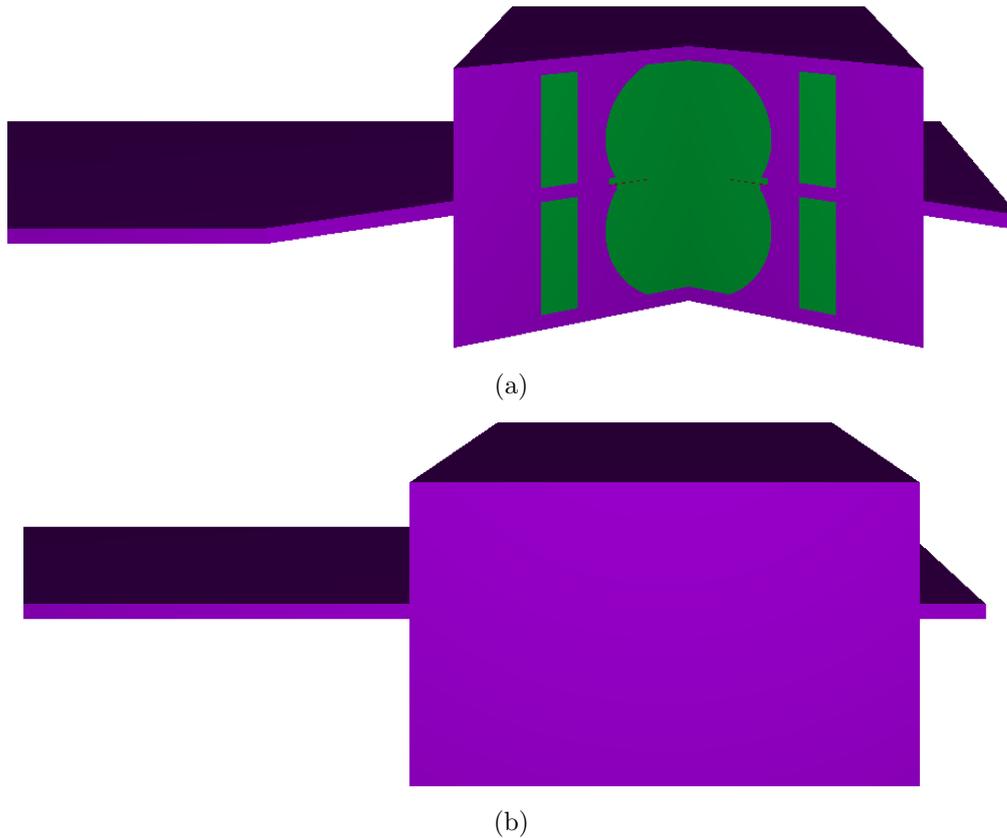


**Figura 5.3:** Imagem da cápsula do detector de NaI obtida com raios-x. Os anéis de borracha estão dentro da cápsula na parte frontal, adicionando 0,93 cm de distância fonte-detector que não é observada a olho nu.



**Figura 5.4:** Parte da geometria que corresponde aos cristais de NaI (em laranja) envoltos de uma capsula de alumínio (em azul), parte de fotomultiplicadora (em amarelo e vermelho) e suporte de latão (em roxo). (a) Geometria seccionada em um ângulo de  $80^\circ$  no plano XY; (b) sistema visto de fora.

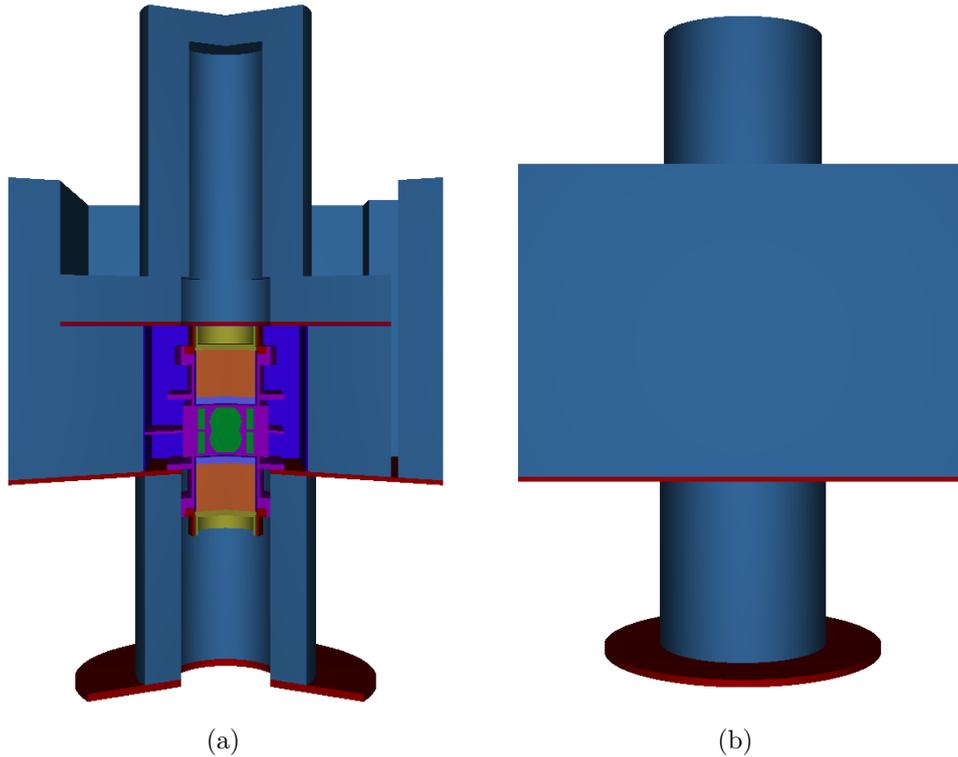
*Gauss Spectrum* - BIGS), assim o usuário não tem permissão para simular fontes com tipos mistos de partículas e com distribuições de probabilidade distintas. A sub-rotina BIGS foi duplicada para permitir emissões  $\beta$  e  $\gamma$  de uma mesma fonte. Também foi aplicada nas rotinas BIGS a correlação angular entre as direções de emissão dos dois fótons da cascata do decaimento do  $^{60}\text{Co}$ . A rotina de registro de deposição de energia (chamado de *Tally Energy*



**Figura 5.5:** Parte da geometria que corresponde a estrutura de latão (em roxo) e o gás (em verde) do contador proporcional. (a) Geometria seccionada em um ângulo de  $80^\circ$  no plano  $XY$ ; (b) sistema visto de fora.

*Deposition Pulse Spectrum* - EDPS) também foi modificada e duplicada. Três sub-rotinas EDPS foram preparadas: as duas primeiras para registrar os espectros  $\beta$  e  $\gamma$  da deposição de energia em um material, sendo que no registro do espectro gama foi considerada a resolução experimental dos picos, implementada por meio de um sorteio com distribuição gaussiana em torno do canal correspondente a energia depositada; a terceira sub-rotina EDPS registra o número de eventos de coincidência. O número de canais possíveis no espectro de saída do registro EDPS foi aumentado para reproduzir o espectro experimental, que contém 1024 canais.

Com o intuito de verificar que as modificações realizadas mantiveram as características essenciais do programa PENELOPE e a confiabilidade nos resultados, foram comparadas as eficiências  $\gamma$  experimental e simulada dos detectores de NaI(Tl). O trabalho adotado como referência experimental [104] apresenta valores de eficiência para um cristal cilíndrico de NaI com 7,62 cm de diâmetro e 7,62 cm de altura a 10 cm de distância de uma fonte radioativa



**Figura 5.6:** Geometria completa com os detectores dentro de uma blindagem de chumbo (em azul claro). (a) Geometria seccionada em um ângulo de  $120^\circ$  no plano  $XY$ ; (b) sistema visto de fora.

calibrada (foram usadas  $^{203}\text{Hg}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{22}\text{Na}$  e  $^{42}\text{K}$ ). O equivalente virtual da geometria experimental foi adotado como um cristal de NaI com mesmas dimensões e com a mesma distância à fonte dentro de uma esfera de ar. Os resultados dessa série de simulações são apresentados na tabela 5.3, onde eficiência intrínseca de pico é a probabilidade de um raio  $\gamma$  que incide no cristal ser contado no foto-pico. Pode-se verificar a concordância entre os dados experimentais e simulados dentro de até 2 desvios padrão.

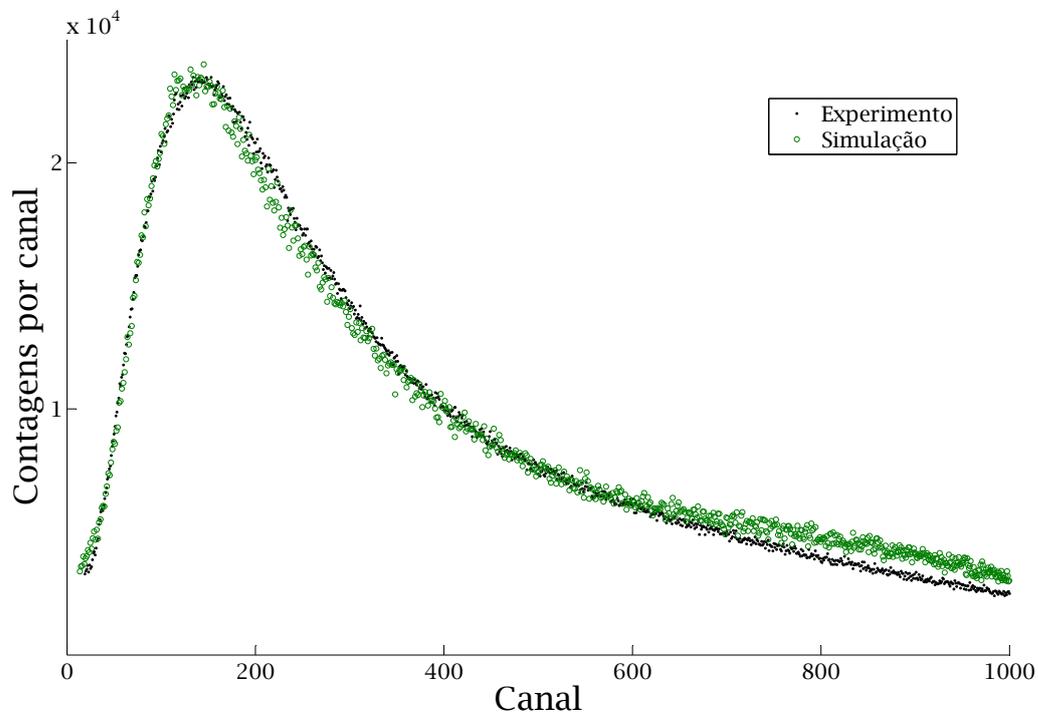
**Tabela 5.3:** Valores de eficiência de intrínseca de pico no detector  $\text{NaI}(\text{Tl})$  para raios  $\gamma$  de referência.

| Núcleo            | Referência | Eficiência intrínseca de pico |                    |           |
|-------------------|------------|-------------------------------|--------------------|-----------|
|                   |            | Energia (keV)                 | Experimental [104] | Simulada  |
| $^{203}\text{Hg}$ | [105]      | 279,1952(10)                  | 0,64(4)            | 0,6462(4) |
| $^{137}\text{Cs}$ | [85]       | 661,657(3)                    | 0,34(2)            | 0,3263(3) |
| $^{95}\text{Zr}$  | [106]      | 756,725(12)                   | 0,29(2)            | 0,2899(3) |
| $^{54}\text{Mn}$  | [107]      | 834,848(3)                    | 0,26(2)            | 0,2653(3) |
| $^{22}\text{Na}$  | [108]      | 1274,537(7)                   | 0,20(1)            | 0,1832(2) |
| $^{42}\text{K}$   | [77]       | 1524,6(3)                     | 0,150(3)           | 0,1558(2) |

O espectro  $\beta$  de emissão de cada isótopo simulado foi calculado com o programa FERMI

[109, 110]. A faixa de energia de emissão possível dos elétrons<sup>2</sup> foi dividida em 100 intervalos e a probabilidade de emissão em cada intervalo foi dada como parâmetro de entrada para as simulações.

Foi observado como o espectro  $\beta$  muda com a variação: da espessura do absorvedor, com a resolução, com a densidade do gás, com o formato da câmara e diferentes densidades de latão da câmara. Concluiu-se que o espectro é muito sensível a mudanças de densidade do gás na câmara e esta foi corrigida para a pressão atmosférica do laboratório, que é 10 % menor que a pressão a nível do mar. A figura 5.7 mostra a comparação entre o resultado obtido por simulação e o espectro  $\beta$  experimental.



**Figura 5.7:** *Espectro  $\beta$  simulado do  $^{60}\text{Co}$  comparado ao espectro experimental.*

Concluídos os estudos iniciais, foram feitas as simulações da extrapolação da eficiência  $\beta$ . A fonte radioativa foi simulada como um ponto, sendo capaz de emitir até dois fótons e um elétron para cada decaimento simulado (reproduzindo assim o decaimento do  $^{60}\text{Co}$ , mostrado na figura 3.5). Foram rodadas simulações com fontes de  $^{60}\text{Co}$  e  $^{35}\text{S}$ , separadamente. Para cada história das simulações com  $^{60}\text{Co}$  foi emitida isotropicamente pela fonte um fóton

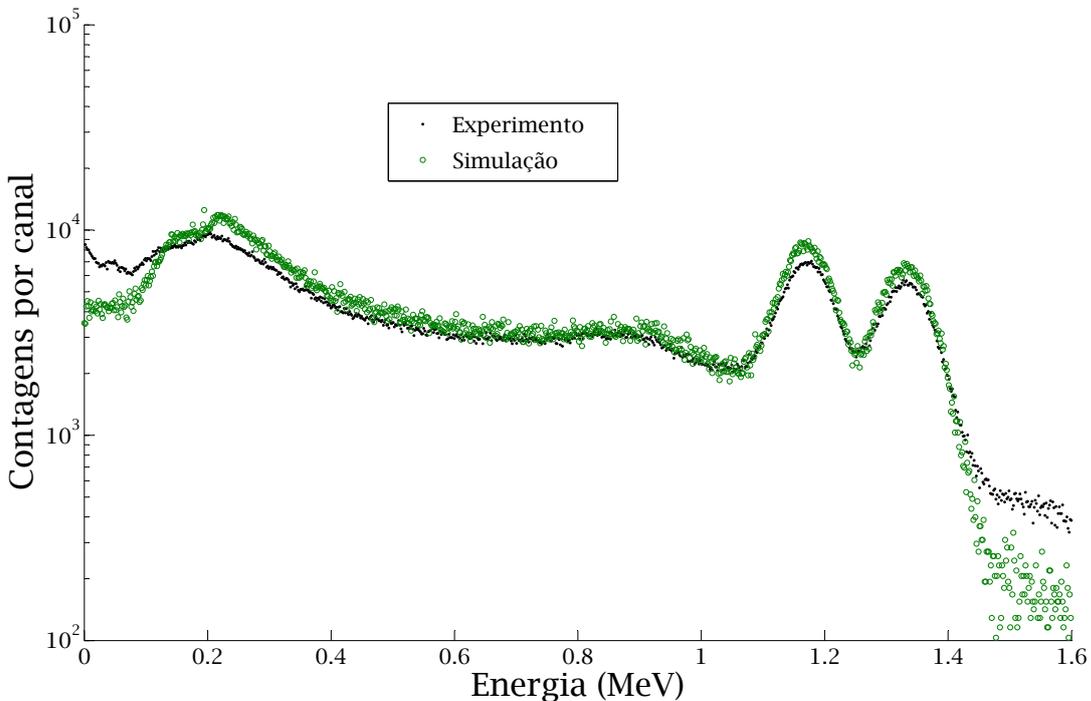
---

<sup>2</sup>Energia desde 0 keV até a energia disponível para decaimento.

de 1,173 MeV seguido de um de 1,332 MeV com direção correlacionada com a direção do primeiro fóton por meio da distribuição:

$$W(\theta) = 1 + \frac{1}{8} \cos^2(\theta) + \frac{1}{24} \cos^4(\theta) \quad (5.2)$$

onde  $\theta$  é o ângulo entre os vetores das direções dos fótons emitidos. Após os fótons foi emitido um elétron com energia dada pela distribuição da transição beta permitida do  $^{60}\text{Co}$ , que apresenta energia máxima disponível de 318,2(5) keV e energia média de 95,77(15) keV [65]. O registro da deposição de energia nos detectores de NaI em forma de espectro com resolução próxima a do detector é mostrado na figura 5.8.

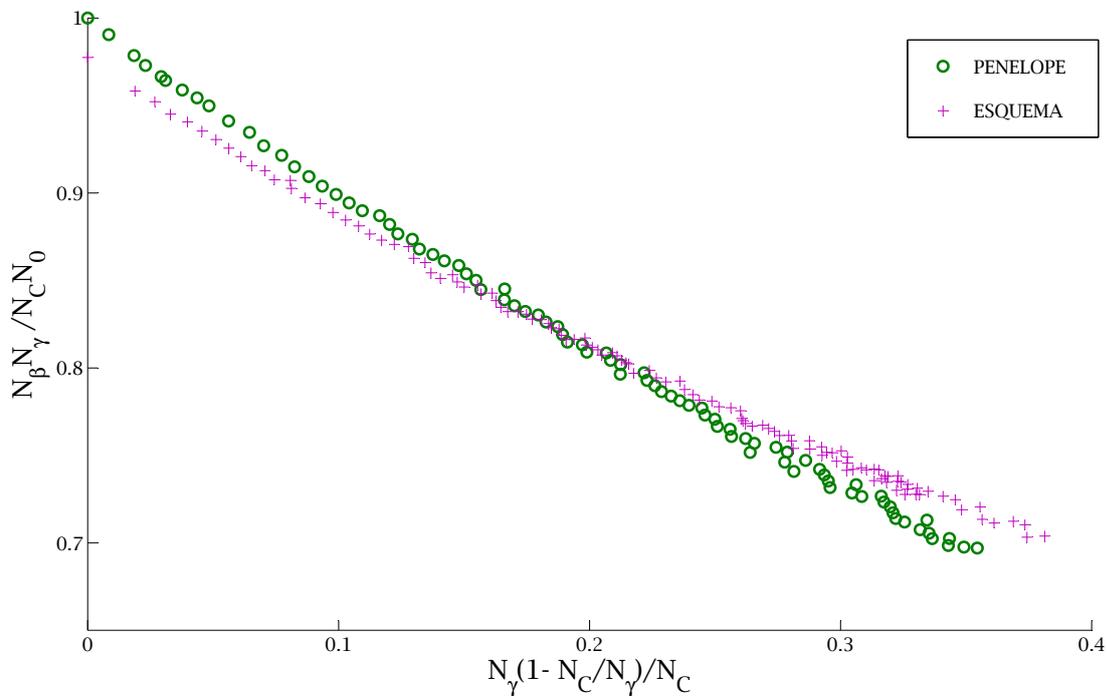


**Figura 5.8:** Espectro  $\gamma$  simulado no detector de NaI(Tl) dos dois fótons do  $^{60}\text{Co}$  comparado ao espectro experimental. O espectro simulado foi normalizado pela área total do espectro experimental.

Para cada história das simulações com  $^{35}\text{S}$  foi emitido isotropicamente um elétron com energia máxima disponível de 167,33(3) keV e energia média de 48,758(23) keV [61]. Para variar a eficiência  $\beta$  simulada foram colocados absorvedores de collodion (com densidade superficial de  $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) por cima e por baixo da fonte, assim como no experimento.

No presente trabalho foi usado como referência o programa ESQUEMA [79], que simula o

processo de desintegração dos núclídeos usados como fonte radioativa e a perda de energia das partículas nos absorvedores que envolvem a fonte. A partir de tabelas de resposta do detector proporcional  $4\pi$  para elétrons monoenergéticos e tabelas de resposta do detector NaI(Tl) para fótons monoenergéticos, ambas calculadas com o MCNP4C, o programa ESQUEMA calcula a função resposta, para qualquer faixa de eficiência de interesse, do sistema de detecção do Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN/CNEN-SP [80]. Os resultados obtidos para a variação da eficiência  $\beta$  da fonte em função da ineficiência (definida na secção 3.5.2 pela equação 3.28) é mostrada na figura 5.9, onde são comparados aos resultados obtidos com o programa ESQUEMA.

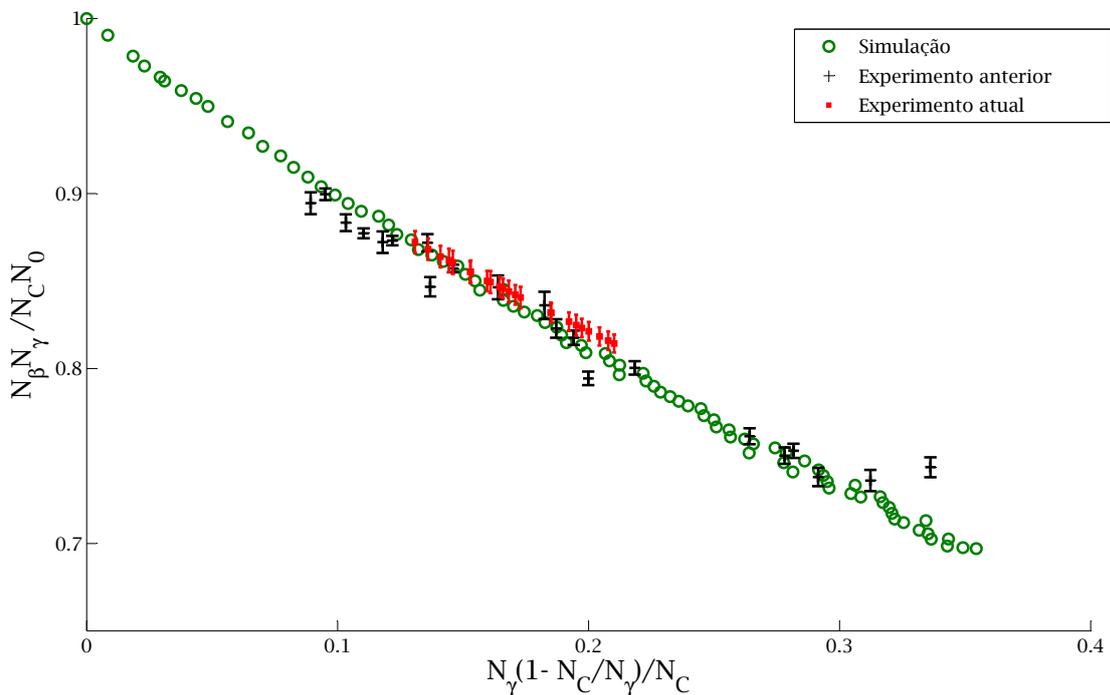


**Figura 5.9:** Resultados do programa PENELOPE (modificado) comparados com os resultados obtidos com o programa ESQUEMA. As incertezas nos pontos simulados são menores que o tamanho dos pontos.

A discrepância nos resultados é de 2,3 % para o valor extrapolado e se deve ao fato do transporte da radiação nos materiais que envolvem a fonte e na câmara de gás ser feito de forma distinta por cada programa. O programa ESQUEMA usa tabelas de alcance da radiação nos materiais para estimar a quantidade de energia depositada pela radiação. Já o programa PENELOPE simula a interação da radiação com a matéria usando tabelas de

seções de choque diferenciais para cada mecanismo de interação possível entre a radiação e as moléculas do material. As simulações com PENELOPE são mais detalhadas do ponto de vista físico e, conseqüentemente, mais confiáveis.

Os resultados obtidos com o programa PENELOPE foram ajustados, pelo método dos mínimos quadrados, aos resultados de um experimento [79] onde se variou a eficiência de detecção de uma fonte de  $^{60}\text{Co}$  e  $^{35}\text{S}$  adicionando absorvedores de collodion à fonte (assim como descrito na seção 4.3.1). Os resultados são apresentados na figura 5.10.



**Figura 5.10:** Resultados do programa PENELOPE (modificado) ajustados a resultados experimentais obtidos, para o mesmo sistema, em outro trabalho [79] e no presente trabalho. As incertezas nos pontos simulados são menores que o tamanho dos pontos.

A curva de extrapolação obtida provê o valor da função  $G\left(\frac{1 - \frac{A_C}{A_\gamma}}{\frac{A_C}{A_\gamma}}\right)$  na equação 3.28. Portanto os valores da correção dependem das ineficiências obtidas experimentalmente, que são mostradas na seção 6.2.1.

### 5.3 Correção da eficiência no detector HPGe

Como descrito na seção 3.6, é necessário aplicar um fator de correção para a determinação da atividade de fontes volumétricas usando as atividades de fontes praticamente puntiformes,

de volume bem menor, como referência. O método para determinar o fator de correção da eficiência,  $f$ , consistiu em:

- construir virtualmente um cristal de germânio hiper puro;
- comparar a eficiência de detecção do cristal simulado com a do sistema de detecção experimental;
- corrigir a geometria do cristal simulado para que a eficiência simulada seja equivalente à eficiência experimental;
- simular fontes pontuais e volumétricas emitindo fótons de mesma energia e comparar a eficiência.

Os valores experimentais obtidos no processo de calibração dos detectores HPGe, explicado na seção 4.3.2, foram adotados como referência para o ajuste de parâmetros desconhecidos do cristal de germânio, como a espessura da camada superficial inativa do cristal de germânio, chamada de camada morta [111]. Inicialmente foi simulado o detector HPGe com uma fonte pontual a 17,3 cm de distância e foi introduzido um absorvedor de alumínio a 6 mm da fonte, entre ela e o detector, com densidade igual ao absorvedor utilizado no experimento real ( $523 \text{ mg/cm}^2$ ), assim como apresentado na figura 4.13. Para cada energia de fóton emitida pela fonte real foi feita uma simulação com a fonte virtual, ou seja, uma simulação para cada pico de interesse.

O manual do detector de HPGe fornece as dimensões do cristal de germânio como volume ativo, camada morta, distância entre o cristal de germânio e a cápsula de alumínio, profundidade e raio do furo interno do detector. São, porém, valores nominais dados pelo fabricante e podem não corresponder aos valores reais de cada detector. As discrepâncias entre os valores nominais e reais são devidas, principalmente ao processo de fabricação [111, 112] e envelhecimento do detector [113]. Por esse motivo é necessário ajustar esses parâmetros para que a resposta do detector simulado corresponda à do real. A primeira série de simulações teve como objetivo verificar que a eficiência dos picos de absorção total correspondentes aos fótons das fontes de calibração usadas no detector virtual fossem equivalentes às reais. A

resposta do detector simulado foi observada na simulação por meio de um registro de distribuição de energias de pulsos criados no corpo virtual que simula o cristal do detector (*tally* F8 [91, 114]). Os valores obtidos para as eficiências relativas são apresentados na tabela 5.4. Os resultados foram considerados satisfatórios considerando que os valores de eficiência são compatíveis com os experimentais dentro de até 3 desvios padrão. Partindo destes resultados, foram feitas as simulações para determinar o fator  $f$  para as energias dos fótons do decaimento do  $^{42}\text{K}$  e do  $^{43}\text{K}$  quando emitidos por uma fonte extensa de  $\text{KNO}_3$ .

**Tabela 5.4:** *Eficiência de pico de absorção total de energia para os fótons provenientes das fontes de calibração a 17,3 cm de distância fonte-detector. Os valores entre parênteses correspondem às incertezas em unidades dos últimos algarismos.*

| Núcleo            | Energia (keV) | Eficiência de foto-pico ( $\times 10^{-4}$ ) |            |
|-------------------|---------------|--|------------|
|                   |               | Experimental                                 | Simulada   |
| $^{137}\text{Cs}$ | 661,657(3)    | 8,06(10)                                     | 7,908(9)   |
| $^{60}\text{Co}$  | 1173,228(3)   | 4,73(7)                                      | 4,694(7)   |
|                   | 1332,492(4)   | 4,19(5)                                      | 4,192(6)   |
| $^{152}\text{Eu}$ | 244,6975(8)   | 22,6(6)                                      | 21,512(15) |
|                   | 344,2785(12)  | 15,5(3)                                      | 15,238(12) |
|                   | 411,1163(11)  | 14,4(7)                                      | 12,671(11) |
|                   | 443,965(3)    | 12,5(6)                                      | 11,705(10) |
|                   | 778,9040(18)  | 6,46(18)                                     | 6,791(8)   |
|                   | 964,079(18)   | 5,83(16)                                     | 5,601(7)   |
|                   | 1112,069(3)   | 5,08(15)                                     | 4,927(7)   |
|                   | 1408,006(3)   | 3,97(9)                                      | 3,984(6)   |

Para verificar que a geometria da ampola de quartzo simulada corresponde à real foram realizadas medidas e simulações para duas disposições diferentes da ampola: uma com a base plana (onde está depositado o  $\text{KNO}_3$ ) apoiada no suporte de fontes e outra com a ponta (parte sem deposição de  $\text{KNO}_3$ ) apoiada no suporte de fontes. Foram comparadas as razões entre as eficiências para os picos dos raios- $\gamma$  provenientes do  $^{42}\text{K}$ , que apresentavam incertezas relativas bem menores que os resultados para os picos dos raios- $\gamma$  provenientes do  $^{43}\text{K}$ . Os resultados são apresentados na tabela 5.5 e é possível observar que o experimento e a simulação apresentam boa concordância.

As simulações para o cálculo do fator de correção da eficiência consistiram em simular fontes pontuais e volumétricas emitindo fótons com as energias dos raios  $\gamma$  de maior probabilidade de emissão por decaimento do  $^{42}\text{K}$  e do  $^{43}\text{K}$ . Os fatores  $f$  apresentados na tabela 5.6

**Tabela 5.5:** Comparação de valores simulados e experimentais para a razão entre as eficiências dos picos de interesse obtidas para duas posições distintas da ampola de quartzo contendo  $\text{KNO}_3$ . Os valores entre parênteses correspondem às incertezas nos últimos algarismos.

| Energia do foto-pico (keV) | Experimental | Simulada  |
|----------------------------|--------------|-----------|
| 312,60(25)                 | 5,73(11)     | 5,723(18) |
| 1524,6(3)                  | 5,08(4)      | 5,031(9)  |

são as razões entre as eficiências obtidas. É possível observar que todas as correções são significativas, podendo chegar a  $\approx 15\%$  no caso do  $\text{KNO}_3$  depositado no quartzo.

**Tabela 5.6:** Fatores de correção para as eficiências de pico dos raios  $\gamma$  do  $^{42}\text{K}$  e do  $^{43}\text{K}$ . Os valores entre parenteses correspondem à incerteza nos últimos algarismos.

| Núcleo          | Energia do foto-pico (keV) | Espessura da pastilha de $\text{KNO}_3$ (mm) |            |            | $\text{KNO}_3$ no quartzo |
|-----------------|----------------------------|--|------------|------------|---------------------------|
|                 |                            | 2,3  | 2,8        | 2,9        |                           |
| $^{42}\text{K}$ | 312,60(25)                 | 0,9652(9)                                    | 0,9577(9)  | 0,9563(9)  | 0,8533(6)                 |
|                 | 1524,6(3)                  | 0,9747(20)                                   | 0,9711(20) | 0,9706(20) | 0,9135(19)                |
| $^{43}\text{K}$ | 372,760(7)                 | 0,9673(9)                                    | 0,9595(9)  | 0,9581(9)  | 0,8606(6)                 |
|                 | 617,490(6)                 | 0,9707(12)                                   | 0,9642(12) | 0,9632(12) | 0,8819(10)                |



## Capítulo 6

# Resultados e Discussão

### 6.1 Caracterização das fontes radioativas

Como comentado nas seções 4.1.2 e 4.1.1 é esperada a presença do  $^{43}\text{K}$  e do  $^{35}\text{S}$  nos alvos irradiados. São também observados, porém, outros elementos radioativos, que são produtos de reações nucleares em contaminantes do alvo irradiado. Estes contaminantes podem ter origem na própria composição das substâncias químicas da amostra ou, até mesmo, provirem do contato entre o alvo e o dispositivo de irradiação (que envolve alumínio e cádmio). A identificação desses contaminantes é necessária para isolar as informações provenientes somente dos núcleos produto das reações de interesse.

Os espectros resultantes das medidas de radiação  $\gamma$  dos alvos irradiados apresentaram da ordem de dezenas de picos, dos quais apenas alguns eram de interesse, como pode ser visto na figura 4.17. Assim, o tratamento inicial dado aos espectros teve por objetivo a identificação dos núclídeos radioativos presentes na fonte incluindo a confirmação da presença dos núclídeos de interesse.

A identificação dos núcleos se baseou nos seguintes critérios:

- a) Probabilidade de produção: Os elementos radioativos produzidos na irradiação que podem ser identificados por espectroscopia gama são normalmente resultado de reações de captura radioativa de nêutrons. Os núcleos com deficiência de nêutrons ou com excesso de três ou mais nêutrons que o núcleo estável são pouco considerados na identificação.
- b) Energia do fóton: A partir da calibração de energia e considerando a dispersão do

espectro<sup>1</sup> é possível determinar com boa precisão a energia dos fótons detectados e identificar possíveis núcleos emissores com o auxílio de tabelas e programas [59, 115, 116].

- c) Meia vida: Assim como a energia dos fótons emitidos, a meia vida caracteriza o núcleo radioativo e pode ser determinada com uma série de medidas com o mesmo tempo de contagem.
- d) Intensidade relativa: A partir da calibração de eficiência é possível comparar as probabilidades de emissão por decaimento dos fótons com os valores conhecidos para os diferentes nuclídeos.

A determinação das constantes de decaimento,  $\lambda$ , foi realizada considerando que as equações 3.31 e 3.32 resultam na seguinte relação:

$$\frac{S_\gamma}{I_\gamma \varepsilon_\gamma A_0} = \frac{e^{-\lambda t}}{\lambda} (1 - e^{-\lambda \Delta t}) \approx \Delta t e^{-\lambda t} \Rightarrow \ln S_\gamma = \ln (I_\gamma \varepsilon_\gamma A_0 \Delta t) - \lambda t \quad (6.1)$$

tornando possível o ajuste de uma reta aos valores das áreas, obtidas em uma série de contagens com mesmo tempo de duração  $\Delta t$ , para estimar a constante de decaimento de um núcleo.

Seguindo esses critérios e procedimentos, foram identificados contaminantes nas ligas de Au-Al, nas pastilhas de  $\text{KNO}_3$  e nos fragmentos de enxofre. Os núcleos com maior atividade identificados e a comprovação da presença dos núcleos de interesse são apresentados nas sub-seções seguintes.

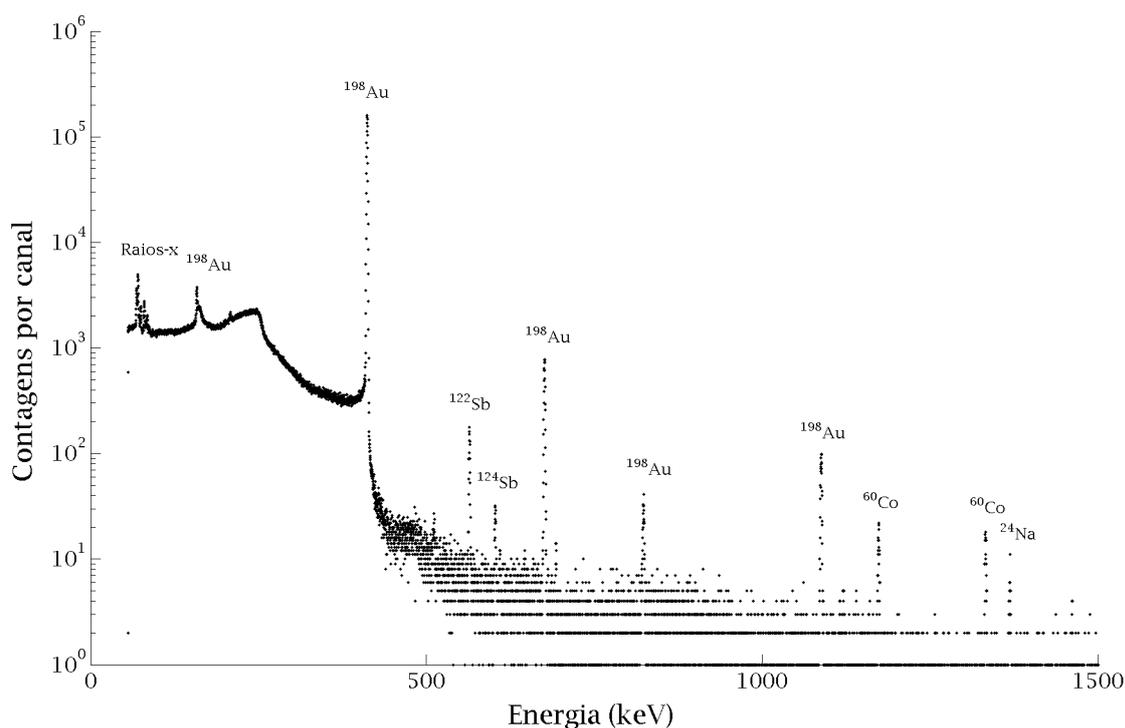
### 6.1.1 Caracterização dos monitores de fluxo

A figura 6.1 apresenta um espectro  $\gamma$  obtido com o detector HPGe de uma folha de Au-Al irradiada.

Foi observada a presença de 4 contaminantes radioativos distintos nas folhas de Au-Al e os valores obtidos para suas meia-vidas, energias dos fótons  $\gamma$  e intensidades relativas são apresentadas na tabela 6.1.

---

<sup>1</sup>da ordem de 0,2 keV/canal



**Figura 6.1:** Espectro da atividade  $\gamma$  induzida em uma folha de Au-Al irradiada por 12 horas; com as origens dos picos mais pronunciados.

Os contaminantes encontrados nas amostras de Au-Al apresentam picos em regiões do espectro que não influenciam as medidas dos picos de interesse. Foram identificados picos correspondentes aos 3 gamas mais intensos do decaimento do  $^{198}\text{Au}$  e são apresentados na tabela 6.2, assim como os valores apresentados na literatura. O ajuste realizado para obter o valor da constante de decaimento é apresentado na figura 6.2.

### 6.1.2 Caracterização do enxofre

Foram tomados espectros do enxofre irradiado no intuito de observar contaminantes ativados durante a irradiação. Se optou por usar o detector HPGe para esta tarefa por apresentar resolução melhor que a dos detectores NaI(Tl) e, conseqüentemente, maior capacidade de discernimento entre picos. A figura 6.3 apresenta um dos espectro obtidos; nele é possível observar uma estrutura devida a radiação de *bremstrahlung* causada pelo frenamento dos elétrons emitidos pelo  $^{35}\text{S}$  e os picos dos raios-x característicos provenientes do rearranjo eletrônico da camada K do chumbo.

A área dos picos dos raios-x característicos representam 0,3 % da área total do espectro.

**Tabela 6.1:** Valores de meia-vida, energia e intensidade relativa para os contaminantes encontrados nas folhas de Au-Al.

| Núcleo            | Ref.  | Meia-vida (horas) |           | Energia (keV)              |                          | Intensidade relativa |              |
|-------------------|-------|-------------------|-----------|----------------------------|--------------------------|----------------------|--------------|
|                   |       | bibliografia      | obtida    | bibliografia               | obtida                   | bibliografia         | obtida       |
| $^{124}\text{Sb}$ | [117] | 1448,8(7)         | -         | 602,7260(23)               | 602,66(6)                | 1                    | 1            |
| $^{122}\text{Sb}$ | [118] | 63,371(5)         | $\sim 65$ | 564,24(4)<br>692,65(4)     | 564,16(4)<br>692,85(15)  | 1<br>0,054(2)        | 1<br>0,05(1) |
| $^{24}\text{Na}$  | [119] | 14,997(12)        | $\sim 15$ | 1368,626(5)                | 1368,66(4)               | 1                    | 1            |
| $^{60}\text{Co}$  | [65]  | 46206(3)          | -         | 1332,492(4)<br>1173,228(3) | 1331,70(4)<br>1173,31(4) | 1<br>0,9987(3)       | 1<br>1,12(7) |

**Tabela 6.2:** Comparação entre os valores obtidos apresentados na bibliografia pra a meia-vida, energias dos fótons, e intensidades relativas do decaimento do  $^{198}\text{Au}$ .

| Núcleo            | Meia-vida (horas) |           | Energia (keV)                               |                                       | Intensidade relativa          |                               |
|-------------------|-------------------|-----------|---|---------------------------------------|-------------------------------|-------------------------------|
|                   | bibliografia      | obtida    | bibliografia                                | obtida                                | bibliografia                  | obtida                        |
| $^{198}\text{Au}$ | 64,694(7)         | $\sim 69$ | 411,80205(17)<br>675,8836(7)<br>1087,684(3) | 411,71(4)<br>675,95(4)<br>1087,95(15) | 1<br>0,00841(3)<br>0,00166(2) | 1<br>0,0076(2)<br>0,00171(19) |

Também foram encontrados picos com energia compatível com a dos gamas emitidos nos decaimentos dos  $^{122}\text{Sb}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{46}\text{Sc}$ . A comprovação completa da presença desses nuclídeos, porém, não foi possível devido às pequenas áreas observadas (a soma de todas as áreas dos contaminantes é da ordem de 0,01 % da área total).

### 6.1.3 Caracterização do $\text{KNO}_3$

Como mostrado na figura 4.17 e na tabela 4.2 os principais contaminantes encontrados nas pastilhas de  $\text{KNO}_3$  foram:  $^{82}\text{Br}$ ,  $^{86}\text{Rb}$ ,  $^{60}\text{Co}$  e  $^{24}\text{Na}$ . Também foram observados os fótons provenientes do decaimento do  $^{42}\text{K}$ , como previsto na seção 4.1.2. Os valores de meia-vida, energia e intensidade relativa para os fótons do  $^{60}\text{Co}$  e do  $^{24}\text{Na}$  obtidos com os espectros das pastilhas de  $\text{KNO}_3$  irradiadas são equivalentes aos apresentados na tabela 6.1 e por isso são omitidos na tabela 6.3.

A atividade da amostra devida ao decaimento do  $^{42}\text{K}$  foi maior que a do núcleo de interesse durante todas as medidas. O patamar Compton produzido pelo espalhamento dos fótons de 1524 keV interferiu no limiar de detecção para os picos produzidos pelos gamas de 373 e 617 keV. Por isso foram necessárias séries de medidas de acompanhamento do espectro  $\gamma$  ao longo do tempo até ser observado o espectro ótimo onde o a área dos picos

**Tabela 6.3:** Valores de meia-vida, energia e intensidade relativa para os contaminantes e concorrentes encontrados nas pastilhas de  $\text{KNO}_3$ .

| Núcleo           | Ref.  | Meia-vida (horas) |            | Energia (keV) |             | Intensidade relativa |             |
|------------------|-------|-------------------|------------|---------------|-------------|----------------------|-------------|
|                  |       | bibliografia      | obtida     | bibliografia  | obtida      | bibliografia         | obtida      |
| $^{82}\text{Br}$ | [120] | 35,282(7)         | 37,7(7)    | 776,517(3)    | 776,50(4)   | 1                    | 1           |
|                  |       |                   |            | 554,348(2)    | 554,32(4)   | 0,852(16)            | 0,90(2)     |
|                  |       |                   |            | 619,106(4)    | 619,09(4)   | 0,522(10)            | 0,55(2)     |
|                  |       |                   |            | 698,374(5)    | 698,38(3)   | 0,339(7)             | 0,323(12)   |
|                  |       |                   |            | 1044,002(5)   | 1044,10(5)  | 0,339(7)             | 0,37(2)     |
|                  |       |                   |            | 1317,473(10)  | 1317,60(6)  | 0,321(7)             | 0,31(2)     |
|                  |       |                   |            | 827,828(6)    | 827,82(4)   | 0,288(6)             | 0,295(12)   |
| $^{42}\text{K}$  | [77]  | 12,321(25)        | 12,456(13) | 1474,88(1)    | 1474,85(7)  | 0,199(4)             | 0,209(13)   |
|                  |       |                   |            | 1524,6(3)     | 1524,69(4)  | 1                    | 1           |
|                  |       |                   |            | 312,60(25)    | 312,83(4)   | 0,0186(11)           | 0,0181(4)   |
| $^{86}\text{Rb}$ | [121] | 447,4(4)          | -          | 899,7(4)      | 899,43(5)   | 0,00288(17)          | 0,00277(12) |
|                  |       |                   |            | 1077,0(4)     | 1076,95(10) | 1                    | 1           |

correspondentes aos fótons de 373 e 617 keV fosse significativamente maior que o limiar de detecção <sup>2</sup>. Outro pico que interferiu nas medidas das áreas dos picos de interesse foi o 619,106(4) keV proveniente do  $^{82}\text{Br}$ , que está bem próximo do pico correspondente ao fóton de 617,490(6) keV originário do decaimento do  $^{43}\text{K}$ . Contudo, com a resolução do sistema de detecção associado ao HPGe e a modelagem da área dos picos feita pelo programa *IDF from WINDOWS*, é possível distinguir os picos, como mostra a figura 6.4, e calcular suas áreas separadamente. Nota-se que o DSPEC produz picos bastante simétricos, mesmo nas taxas de contagens usadas.

Os valores medidos correspondentes aos 2 picos do decaimento do  $^{43}\text{K}$  são apresentados na tabela 6.4, assim como os valores apresentados na literatura. O ajuste realizado para obter o valor da constante de decaimento é apresentado na figura 6.5.

**Tabela 6.4:** Valores de meia-vida para o  $^{43}\text{K}$ , e energia e intensidade relativa para os raios  $\gamma$  provenientes de seu decaimento [77].

| Núcleo          | Meia-vida (horas) |         | Energia (keV) |           | Intensidade relativa |         |
|-----------------|-------------------|---------|---------------|-----------|----------------------|---------|
|                 | bibliografia      | obtida  | bibliografia  | obtida    | bibliografia         | obtida  |
| $^{43}\text{K}$ | 22,3(1)           | 23,6(8) | 372,760(7)    | 372,72(4) | 1                    | 1       |
|                 |                   |         | 617,490(6)    | 617,53(7) | 0,912(7)             | 0,94(7) |

<sup>2</sup>Considerando que a meia vida do  $^{42}\text{K}$  é de aproximadamente metade do tempo da meia vida do  $^{43}\text{K}$ , a área dos picos provenientes do  $^{42}\text{K}$  diminuiam a 1/4 do valor inicial enquanto os picos provenientes do  $^{43}\text{K}$  diminuiam por um fator 1/2.

## 6.2 Determinação das secções de choque térmicas e integrais de ressonância

As medidas de atividade das fontes radioativas com o detector HPGe foram realizadas em séries com um mesmo tempo de contagem. A atividade das fontes foi calculada a partir dos valores de área que corresponderiam à atividade no fim da irradiação. A correção da área  $S_\gamma$  pelo tempo de medida  $\Delta t$  e tempo de espera  $t_e$ , conforme a equação 3.31, é dada por:

$$S'_\gamma = \frac{S_\gamma}{e^{-\lambda t_e}(1 - e^{-\lambda \Delta t})} \quad (6.2)$$

Foi calculada, usando a equação 3.37, a média ponderada pelos desvios padrão das áreas corrigidas pelo tempo,  $\bar{S}'_\gamma$ . As atividades  $A_0$  foram calculadas a partir das equações 3.31 e 3.32, de forma que:

$$A_0 = \frac{\lambda \bar{S}'_\gamma}{\varepsilon_\gamma I_\gamma} \quad (6.3)$$

### 6.2.1 Reação $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$

Os fluxos térmico e epitérmico foram determinados pelas equações 3.8 e 2.31, respectivamente. O fluxo térmico foi calculado usando o método da diferença de cádmio descrito na secção 3.3. Para calcular a razão de cádmio entre as amostras foi necessário considerar as diferentes massas das amostras por meio da expressão:

$$R_{Cd} = \frac{A_{Total} N_{0Cd}}{A_{Cd} N_0} \quad (6.4)$$

Com o valor de  $R_{Cd}$  é possível obter os valores de  $r$  e  $R'$  por meio das equações 3.6 e 3.10, respectivamente. Considerando que durante as irradiações a temperatura dos nêutrons térmicos em equilíbrio com o moderador do reator foi 313(10) K [21], foram atribuídos os valores  $g_{Au} = 1,0073(5)$  e  $s_{Au} = 17,2$  [51]. Os valores de  $R_{Cd}$ ,  $r$ ,  $R'$  e dos fluxos térmico,  $\Phi_{th}$ , e epitérmico,  $\Phi_{epi}$  obtidos são mostrados na tabela 6.5.

Os valores obtidos para a seção de choque térmica e integral de ressonância para a

**Tabela 6.5:** Valores obtidos a partir das atividades dos monitores de fluxo.

| $R_{Cd}$   | $r_0$     | $R'$    | $\Phi_{th}$<br>(em nêutrons/cm <sup>2</sup> s) | $\Phi_{epi}$             |
|------------|-----------|---------|--|--------------------------|
| 2,7167(19) | 0,0327(3) | 63,4(7) | $1,95(4) \times 10^{13}$                       | $1,04(3) \times 10^{13}$ |

reação  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$  são apresentados na tabela 6.6. Os desvios padrão obtidos se devem principalmente às incertezas nas massas de enxofre no alvo, que contribuem com  $\approx 90\%$  do valor da incerteza.

O resultado obtido para a seção de choque térmica da reação  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$ , como é possível observar na tabela 6.6, é compatível com todos os resultados publicados até hoje dentro de 2 desvios padrão, com exceção do valor obtido por Raman [27].

**Tabela 6.6:** Valores para seção de choque térmica,  $\sigma_0$ , e integral de ressonância,  $I$ , já publicados em comparação com os resultados obtidos no presente trabalho.

| 1º autor, ano                  | $\sigma_0$ (mb) | $I$ (mb)      |
|--------------------------------|-----------------|---------------|
| Seren, 1947 [23]               | 260(52)         |               |
| Durham, 1961 [24]              | 270(40)         |               |
| Kappe, 1965 [25]               | 238(10)         |               |
| Ishikawa, 1973 [26]            | 230(3)          |               |
| Raman, 1985 [27]               | 294(15)         |               |
| Beer, 1997 [28]                | 247(9)          |               |
| Mughabghab, 2006 [57]          | 256(9)          | 106(5)        |
| <b>Presente trabalho, 2012</b> | <b>228(14)</b>  | <b>144(6)</b> |

O conjunto de resultados experimentais para a seção de choque térmica apresenta probabilidade do  $\chi^2$  ser excedido menor que 0,1 %, caracterizando um grupo inconsistente de dados. Se for desconsiderado, porém, o resultado obtido por Raman [27] a probabilidade do  $\chi^2$  ser excedido passa a ser de 24 %, mostrando consistência estatística do conjunto.

A seção de choque térmica e a integral de ressonância da reação  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$  foram obtidas por ativação de nêutrons seguida de medidas da radiação  $\beta$  residual, assim como nos trabalhos de Seren [23], Durham [24], Kappe [25] e Ishikawa [26] (Raman [27] e Beer [28] determinaram o valor a partir de medidas em linha de raios  $\gamma$  prontos). Portanto, considerando a concordância do valor para a seção de choque térmica com os trabalhos anteriores, é possível inferir que o valor obtido para a integral de ressonância tem boa confiabilidade mesmo sendo discrepante em relação à previsão teórica de Mughabghab [57].

### 6.2.2 Reação $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$

Considerando que a secção de choque térmica para a reação  $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$  é de 98,65(9) b, o fluxo do reator de pesquisa obtido em medidas anteriores para a mesma posição de irradiação é da ordem de  $10^{13}$  nêutrons/cm<sup>2</sup>s e as irradiações têm um tempo de duração máxima da ordem  $10^5$  s, pode ser adotado que  $N_0(t) = N_0$ , logo a equação 3.3 pode ser aproximada para:

$$N_1(t) = \frac{N_0\sigma_1\Phi_0}{\lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 t}) \quad (6.5)$$

Como obtido no trabalho anterior [32] a secção de choque da reação  $^{41}\text{K}(n, \gamma)^{42}\text{K}$  é de 1,57(4) b. Se a secção de choque da reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  para um fluxo térmico for de até 5000 b e adotando para o fluxo e o tempo de irradiação os mesmos valores que os comentados no parágrafo anterior, pode ser adotado que  $e^{-\sigma_1\Phi t} \approx e^{-\sigma_2\Phi t} \approx 1$ ,  $\lambda_2 - \sigma_1\Phi_0 \approx \lambda_2$  e  $\lambda_2 - \lambda_1 - \sigma_2\Phi_0 \approx \lambda_2 - \lambda_1$ ; logo a equação 3.4 pode ser aproximada, sem perda significativa de precisão, para:

$$N_2(t) = N_0\sigma_2\sigma_1\Phi_0^2 \left( \frac{1}{\lambda_1\lambda_2} - \frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_1(\lambda_2 - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2(\lambda_2 - \lambda_1)} \right) \quad (6.6)$$

Calculando a razão  $N_2(t)/N_1(t)$ , ou seja, a equação 6.6 dividida pela equação 6.5, temos:

$$\frac{N_2(t)}{N_1(t)} = \frac{\sigma_2\Phi_0}{\lambda_2(1 - e^{-\lambda_1 t})} \left( 1 - \frac{\lambda_2 e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_2 - \lambda_1} + \frac{\lambda_1 e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2 - \lambda_1} \right) \quad (6.7)$$

Considerando o tempo de irradiação, o fluxo térmico calculado pela equação 3.8 e o número de núcleos ativados, calculados pelas equações 3.31 e 3.32, é possível calcular a seção de choque térmica de captura de nêutrons para a reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ .

Os cálculos de seção de choque térmica,  $\sigma_0$ , para a reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  foram realizados a partir dos resultados de 3 irradiações. Os fluxos térmicos medidos com os monitores de fluxo de cada irradiação são apresentados na tabela 6.7.

Para cada irradiação foi possível calcular 2 valores de seção de choque térmica usando a equação 6.7, uma a partir da área do 372,60(25) keV e outra a partir do 617,490(6) keV. Para determinar a atividade de  $^{42}\text{K}$  na amostra foram usadas as áreas do 1524,6(3) keV. Os

**Tabela 6.7:** Fluxos térmicos nas irradiações realizadas para medir  $\sigma_0$  da reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ .

| $\Phi_0$ ( $\times 10^{13}$ nêutrons/cm <sup>2</sup> s) |                           |                           |
|---|---------------------------|---------------------------|
| 1 <sup>a</sup> irradiação                               | 2 <sup>a</sup> irradiação | 3 <sup>a</sup> irradiação |
| 2,73(6)   | 2,62(6)                   | 2,51(6)                   |

resultados obtidos são mostrados na tabela 6.8.

**Tabela 6.8:** Valores de seção de choque térmica,  $\sigma_0$ , para a reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  obtidas a partir das áreas observadas devidas aos gamas 373 e 617 keV do  $^{43}\text{K}$  e 1525 keV do  $^{42}\text{K}$ .

| Área usada<br>para o cálculo | $\sigma_0$ $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ (b) |                           |                           |
|------------------------------|--|---------------------------|---------------------------|
|                              | 1 <sup>a</sup> irradiação                              | 2 <sup>a</sup> irradiação | 3 <sup>a</sup> irradiação |
| $S_{373}$                    | 40,6(23)   | 51,6(28)                  | 44,0(13)                  |
| $S_{617}$                    | 45,7(36)   | 47,2(37)                  | 45,4(18)                  |

Como descrito na seção 4.2.3, a irradiação dos alvos de  $\text{KNO}_3$  com o objetivo de se medir a integral de ressonância da reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  foi realizada em duas etapas. Para determinar o valor da integral de ressonância foi necessário calcular a parte da atividade provocada por nêutrons do fluxo térmico. Como descrito na seção 4.2.3, embora o monitor de fluxo irradiado na primeira etapa da irradiação tenha sido perdido, foi possível calcular o fluxo térmico dessa etapa considerando que a atividade,  $A_S$ , de  $^{42}\text{K}$  na amostra é devida a ativação pelo fluxo térmico e epitérmico na primeira etapa da irradiação e somente epitérmica na segunda etapa. O fluxo térmico pode ser calculado por meio de relação:

$$G_{th}\Phi_{th}(1 + rs) = \frac{\frac{A_S}{N} - \frac{I(\alpha)}{\Xi} G_{epi} [\Phi_{epi1} (1 - e^{-\lambda t_1}) e^{-\lambda t_e + t_2} + \Phi_{epi2} (1 - e^{-\lambda t_2})]}{\sigma (1 - e^{-\lambda t_1}) e^{-\lambda t_e + t_2}} \quad (6.8)$$

onde  $\Xi = \frac{1}{\alpha} \left( \frac{1}{E_{Cd}^\alpha} - \frac{1}{E_2^\alpha} \right)$ . A equação 6.8 é resultado da manipulação algébrica das equações 2.11, 2.25 e 2.31. A integral de ressonância da reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  foi calculada a partir da diferença entre a atividade total de  $^{43}\text{K}$ ,  $A_T$ , e a atividade de  $^{43}\text{K}$  devida a absorção de nêutrons térmicos,  $A'_S$ , (calculada pela equação 6.6). Substituindo  $\sigma_2$  por  $I(\alpha)$ ,  $\Phi_{th}$  por  $\Phi_{epi}$  na equação 6.6 e considerando a correção para o decaimento da atividade entre as duas etapas de irradiação, a integral de ressonância foi calculada por meio de:

$$I(\alpha) = \frac{A'_S \Xi}{N_2 \left[ \Phi_1 \Upsilon(t_1) \frac{e^{-\lambda_2 t_e + t_2}}{(1 - e^{-\lambda_2 t_1})} + \Phi_2 \Upsilon(t_2) \frac{1}{(1 - e^{-\lambda_2 t_2})} \right]} \quad (6.9)$$

onde  $\Upsilon(t)$  é dado por:

$$\Upsilon(t) = (\lambda_3 + \lambda_2 e^{-\lambda_3 t}) - (\lambda_2 + \lambda_3 e^{-\lambda_2 t}) \quad (6.10)$$

Os cálculos para a integral de ressonância,  $I$ , para a reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  foram realizados a partir dos resultados de 1 única irradiação. Foi possível calcular 2 valores de integral de ressonância combinando, conforme a equação 6.9, o valor médio da atividade de  $^{42}\text{K}$  a partir da área do 1524,6(3) keV aos valores médios de atividade de  $^{43}\text{K}$  calculados a partir das áreas do 372,60(25) e 617,490(6) keV. Os resultados obtidos são mostrados na tabela 6.9.

**Tabela 6.9:** Valores de integral de ressonância,  $I$ , para a reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  obtidas a partir das áreas de pico observadas.

| Área usada<br>para o cálculo | $I$ $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ (b) |
|------------------------------|---|
| $S_{373}$                    | 1696(110)                                       |
| $S_{617}$                    | 1582(103)                                       |

Os valores obtidos para a seção de choque térmica e integral de ressonância para a reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ , assim como a matriz de covariâncias com a seção de choque térmica e integral de ressonância da reação de interesse, são apresentados na tabela 6.10. A incerteza obtida para a seção de choque térmica provém das incertezas dos parâmetros iniciais, onde os que têm maiores parcelas são: áreas dos picos 617,490(6) keV (50 %) e 372,760(7) keV (22 %) e parâmetros da curva de eficiência de detecção (10 %). Para a integral de ressonância as maiores contribuições são: tempos de irradiação (68 %), integral de ressonância da reação  $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$  (8 %), constante de decaimentos do  $^{43}\text{K}$  (5 %), parâmetros da curva de eficiência de detecção (3 %), áreas dos picos do  $^{198}\text{Au}$  (3 %) e seção de choque térmica da reação  $^{41}\text{K}(n, \gamma)^{41}\text{K}$  (2 %).

Todos os valores obtidos na literatura a partir da mesma reação de referência estão estatisticamente correlacionados entre si. Considerando os valores de correlação entre as seções de choque e integrais de ressonância das reações  $^{41}\text{K}(n, \gamma)^{42}\text{K}$  e  $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ ,

**Tabela 6.10:** Resultados obtidos para a seção de choque térmica e integral de ressonância da reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ .

| $\sigma_0$ (b) | $I$ (b)  |
|----------------|----------|
| 44,8(9)        | 1635(75) |

obtidas no trabalho anterior [32], e as correlações geradas pelos cálculos realizados neste trabalho, foi determinada a matriz de correlação entre resultados obtidos e os valores de referência, que é mostrada na tabela 6.11.

**Tabela 6.11:** Matriz de correlações entre os resultados obtidos e os valores de referência das seções de choque das reações  $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$  [57] e  $^{41}\text{K}(n, \gamma)^{42}\text{K}$  [32].

| Nuclídeo          | Grandeza   | Matriz de correlações |        |        |        |        |        |       |       |  |
|-------------------|------------|-----------------------|--------|--------|--------|--------|--------|-------|-------|--|
| $^{42}\text{K}$   | $\sigma_0$ | 1,000                 |        |        |        |        |        |       |       |  |
|                   | $I$        | 0,309                 | 1,000  |        |        |        |        |       |       |  |
| $^{34}\text{S}$   | $\sigma_0$ | 0,006                 | 0,003  | 1,000  |        |        |        |       |       |  |
|                   | $I$        | 0,013                 | 0,121  | 0,171  | 1,000  |        |        |       |       |  |
| $^{197}\text{Au}$ | $\sigma_0$ | -0,001                | 0,121  | -0,001 | 0,000  | 1,000  |        |       |       |  |
|                   | $I$        | 0,000                 | -0,110 | 0,000  | -0,243 | 0,000  | 1,000  |       |       |  |
| $^{41}\text{K}$   | $\sigma_0$ | 0,023                 | 0,088  | 0,015  | 0,179  | -0,040 | 0,000  | 1,000 |       |  |
|                   | $I$        | 0,009                 | 0,237  | 0,006  | 0,458  | 0,000  | -0,530 | 0,390 | 1,000 |  |

A correlação entre a seção de choque e integral de ressonância do  $^{197}\text{Au}$  foi adotada como nula por ter sido medida independentemente por uma série de pesquisadores usando técnicas distintas [122]. A correlação entre os resultados para o  $^{42}\text{K}$  e para o  $^{34}\text{S}$ , apesar do uso de técnicas distintas para a determinação da atividade dos alvos irradiados, provém do uso da seção de choque e integral de ressonância do  $^{197}\text{Au}$  como referência. O uso comum da curva de eficiência para determinar a atividade  $\gamma$  dos monitores de fluxo e dos alvos de  $\text{KNO}_3$  também colabora para a correlação dos dados entre si. Nota-se que não há nenhuma dependência estatística muito grande entre as grandezas consideradas.

### 6.2.3 Seções de choque em função da energia

A determinação da dependência em energia da seção de choque de captura de nêutrons por meio de cálculos teóricos requer informações experimentais além das fornecidas pela seção de choque térmica e integral de ressonância. Para núcleos muito leves as energias das primeiras ressonâncias podem ser obtidas considerando a sequência de níveis para as energias de ligação dos nêutrons usando o modelo da partícula única, permitindo uma boa descrição

da seção de choque acima de algumas centenas de keV de energia cinética [123, 124].

Nos casos do  $^{42}\text{K}$  e do  $^{34}\text{S}$  é conveniente descrever a seção de choque como uma combinação de dois modelos: para energias baixas, desde a região térmica até alguns keV, utilizou-se o modelo de captura ressonante e, para energias mais altas, um modelo estatístico associado ao modelo ótico.

Para energias próximas da primeira ressonância podemos descrever a seção de choque por meio da fórmula de captura ressonante de Breit-Wigner, dada pela equação 6.15. A largura parcial de nível excitado para emissão de nêutron,  $\Gamma_n$ , foi calculada pela equação 6.14. Os espaçamentos médios de níveis,  $\langle D \rangle$ , foram estimados a partir de isótopos vizinhos com mesmo número de nêutrons:  $\langle D \rangle_S = 23$  keV para o  $^{35}\text{S}$  (considerando o  $^{35}\text{Cl}$ ) e  $\langle D \rangle_K = 25$  keV para o  $^{43}\text{K}$  (considerando o  $^{44}\text{Ca}$ ).

Os coeficientes de transmissão  $T_0$  (para  $\ell = 0$ ) foram calculados empregando o modelo óptico com parâmetros de potencial de Bersillon–Cindro [125] por meio do código SCAT2000 [126].

A largura parcial do canal  $\gamma$  de emissão foi calculada com a fórmula de Mughabghab [57]:

$$\Gamma_\gamma = 5,2A^{2/3}b^4 (1 + 2bU^{-1/2}) \left( U^2 - \frac{10b}{3}U^{2/3} + 5b^2U - \frac{35b^3}{9}U^{1/2} + \frac{35b^4}{27} \right) \quad (6.11)$$

onde  $\Gamma_\gamma$  é dado em meV,  $A$  é o número atômico do núcleo e  $U$  é a energia de excitação efetiva, que para nêutrons na região de energia térmica é dada por:

$$U = S_n - \Delta \quad (6.12)$$

onde  $S_n$  é a energia de separação do nêutron do núcleo composto e  $\Delta$  é a energia de empareamento no núcleo composto, que é dada em função da paridade de números de prótons e nêutrons da seguinte forma:

$$\begin{aligned}
\Delta &= \delta_p + \delta_n && \text{se par-par} \\
&= \delta_p && \text{se par-ímpar} \\
&= \delta_n && \text{se ímpar-par} \\
&= 0 && \text{se ímpar-ímpar}
\end{aligned} \tag{6.13}$$

onde  $\delta_p$  e  $\delta_n$  são as energias de pareamento do próton e do nêutron, e foram obtidas de [127]. O parâmetro  $b$  na equação 6.11 é dado por:

$$b = \frac{5,97}{(\langle J_n \rangle + \langle J_p \rangle + 1)^{1/2} A^{1/3}} \tag{6.14}$$

onde  $\langle J_n \rangle$  e  $\langle J_p \rangle$  são os momentos angulares médios de nêutrons e prótons, respectivamente, na energia de Fermi. Os valores para os momentos angulares foram obtidos a partir dos valores destas magnitudes no correspondente nível de Fermi dos espectros de partícula única de nêutrons e prótons calculados com o código Barrier [128], que calcula alturas de barreiras potenciais de fissão e tem como sub-produto o calculo dos momentos angulares usando o modelo da partícula única.

Para definir a posição da ressonância foi empregado um método iterativo que permitisse calcular os parâmetros da mesma com  $E_r$  como único parâmetro livre. Para isso é fixado o valor da seção de choque térmica experimental e resolvida a equação transcendente que se deriva da equação 6.15:

$$\sigma_0 = \pi \Lambda^2 z(I, J) \frac{\Gamma_n(E_r) \Gamma_\gamma(E_r)}{(E_0 - E_r)^2 + (\frac{1}{2} \Gamma(E_r))^2} \tag{6.15}$$

Considerando que o spin do nêutron é 1/2 e o momento angular do  $^{34}\text{S}$  e do  $^{42}\text{K}$  são, respectivamente 0 [72] e 2 [77], os momentos angulares dos núcleos compostos resultados das reações são 1/2 e 5/2, respectivamente. Logo, as probabilidades de acoplamento resultam em:  $z(0, 1/2) = 1$  e  $z(2, 5/2) = 3/5$ .

Para energias acima da primeira ressonância foi usado o modelo estatístico. A seção de choque de absorção de nêutrons pelo modelo estatístico,  $\sigma_{Stat}$ , é descrita por:

$$\sigma_{Stat} = \frac{\Gamma_\gamma(E)}{\Gamma_\gamma(E) + \Gamma_n(E)} \sigma_R \tag{6.16}$$

onde  $\sigma_R$  é a seção de choque de reação obtida empregando o cálculo via modelo óptico, também implementado no código SCAT2000 [126] com parâmetros de Bersillon–Cindro [125].

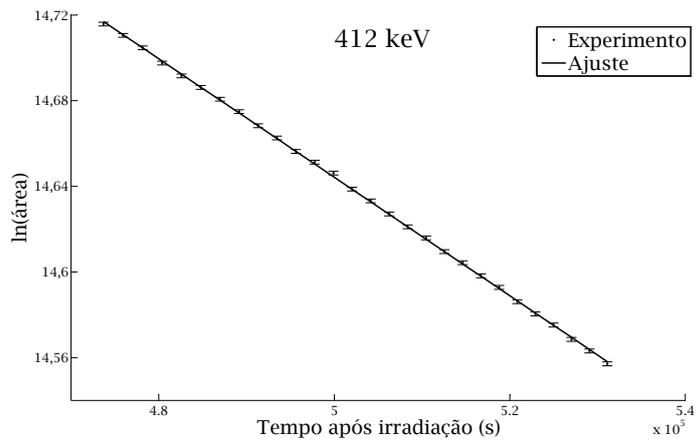
Para o cálculo da integral de ressonância usada a equação 2.30, separando a integral em duas partes:

$$I = \int_{0,5 \text{ eV}}^{E_{bor da}} \frac{\sigma(E)}{E} dE + \int_{E_{bor da}}^{1,2 \text{ MeV}} \frac{\sigma_{Stat}(E)}{E} dE \quad (6.17)$$

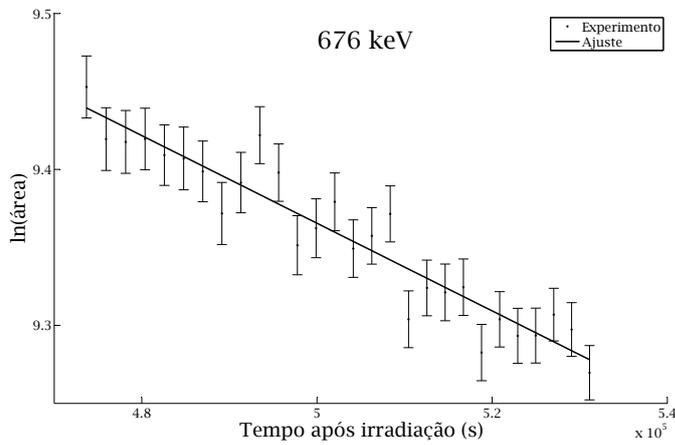
onde  $E_{bor da}$  separa as regiões de aplicabilidade da fórmula de ressonância e do modelo estatístico.

A curva obtida para a reação  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$  a partir desses valores é apresentada na figura 6.6. As curvas obtidas a partir das avaliações teóricas da EAF (*The European Activation File*) [29], da TENDL (*TALYS-based evaluated nuclear data library*) [30] e da ENDF (*Evaluated Nuclear Data Files*) [129] também são apresentadas na figura 6.6 para comparação.

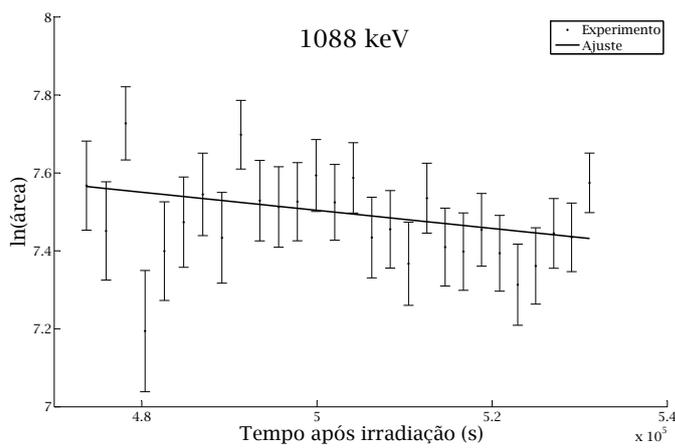
A seção de choque térmica e integral de ressonância da reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  são de até 3 ordens de grandeza maiores que os valores estimados teoricamente pela EAF (*The European Activation File*) [29] e pela TENDL (*TALYS-based evaluated nuclear data library*) [30], que são da ordem de 1 b, como é apresentado na figura 6.7.



(a)

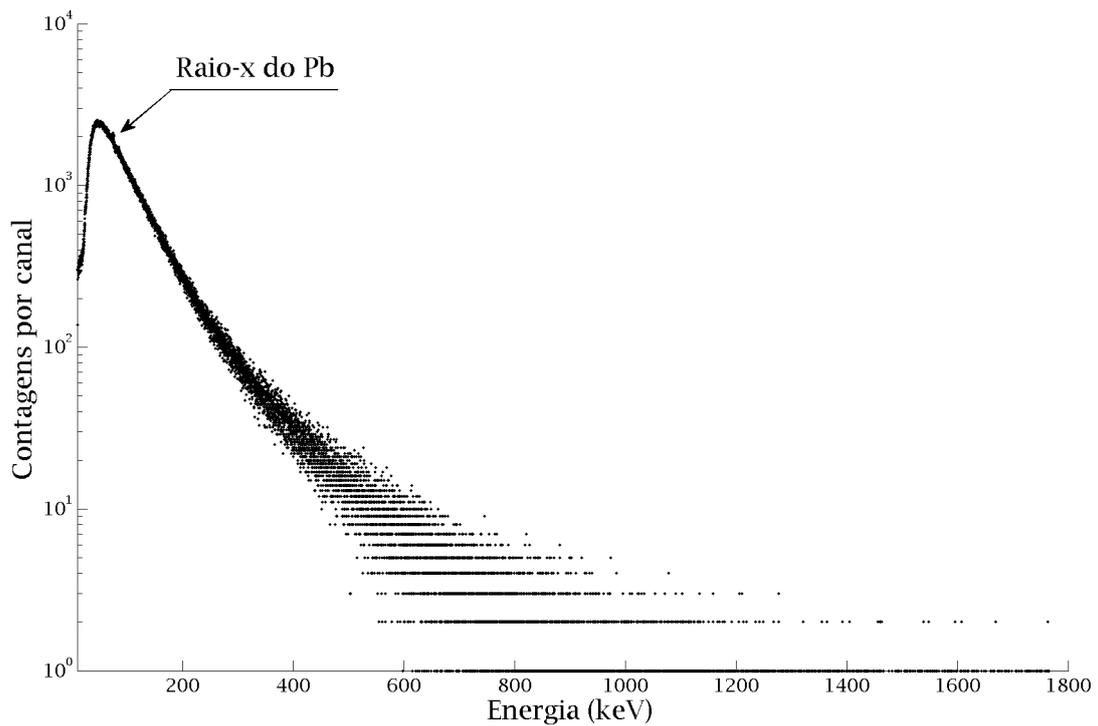


(b)

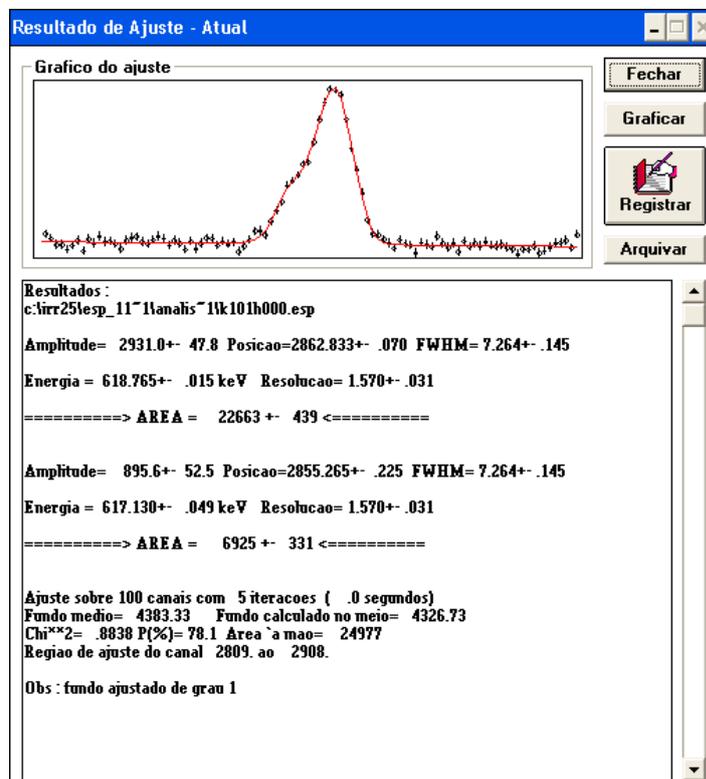


(c)

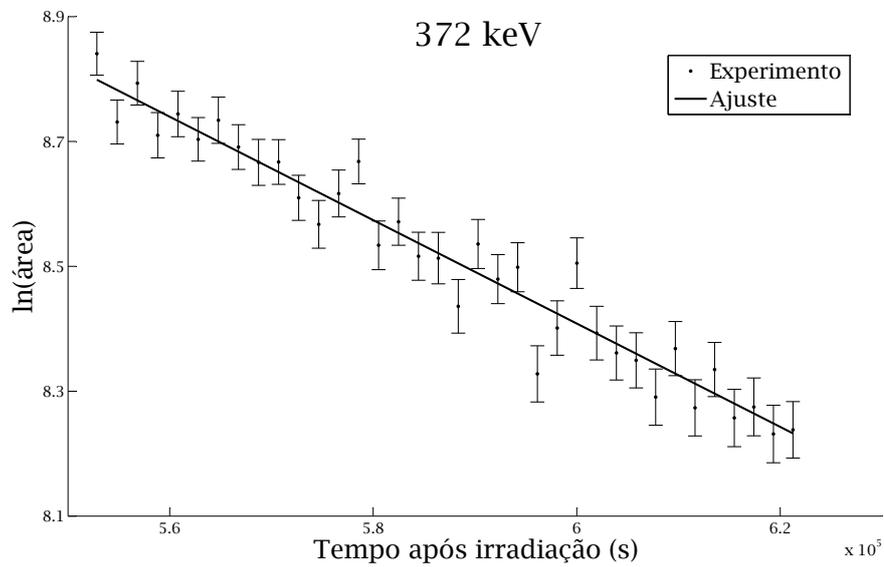
**Figura 6.2:** Ajuste sobre os valores experimentais do logaritmo natural das áreas do pico correspondente aos gamas de (a) 411 keV, (b) 676 keV e (c) 1088 keV.



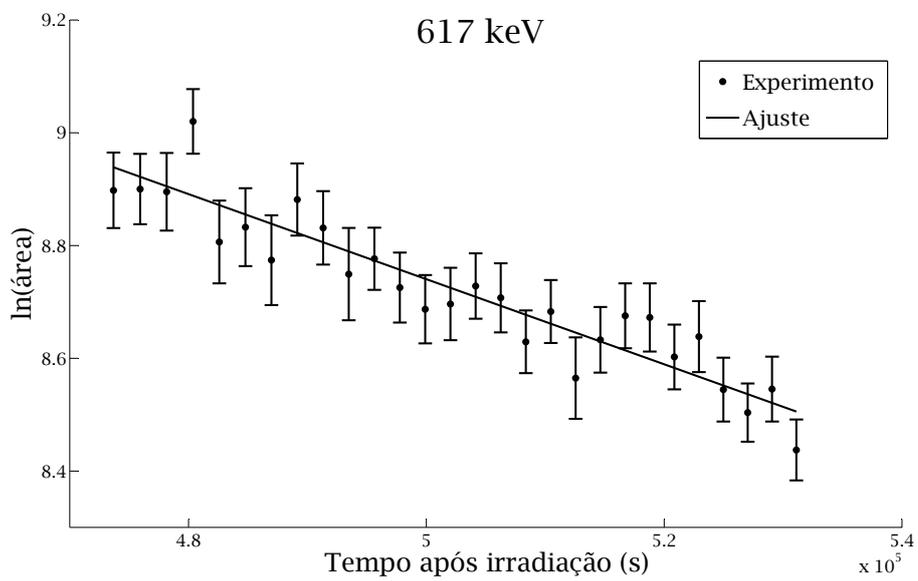
**Figura 6.3:** Espectro de 30 minutos obtido com detector HPGe de um alvo de enxofre irradiado por 10 horas, a 17 cm de distância fonte-detetor (subtraído o espectro de fundo).



**Figura 6.4:** Interface do IDF from WINDOWS mostrando os resultados de um dos ajustes sobre os picos de 617,490(6) keV e 619,106(4) keV.

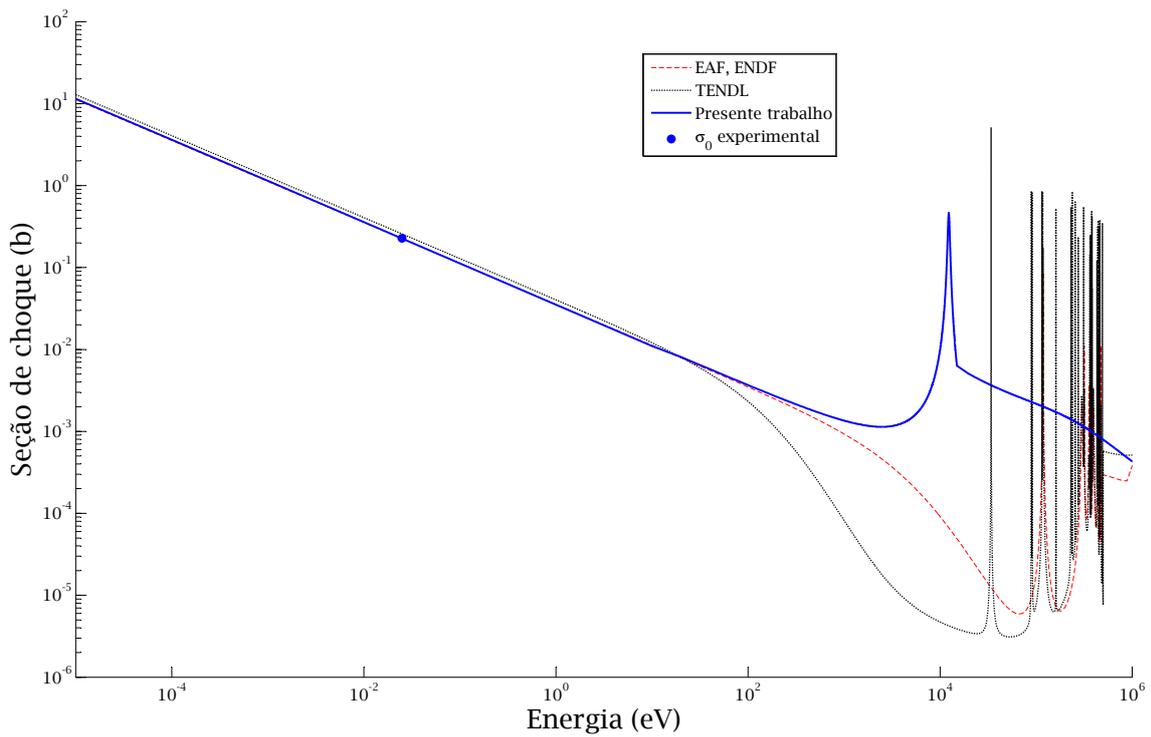


(a)

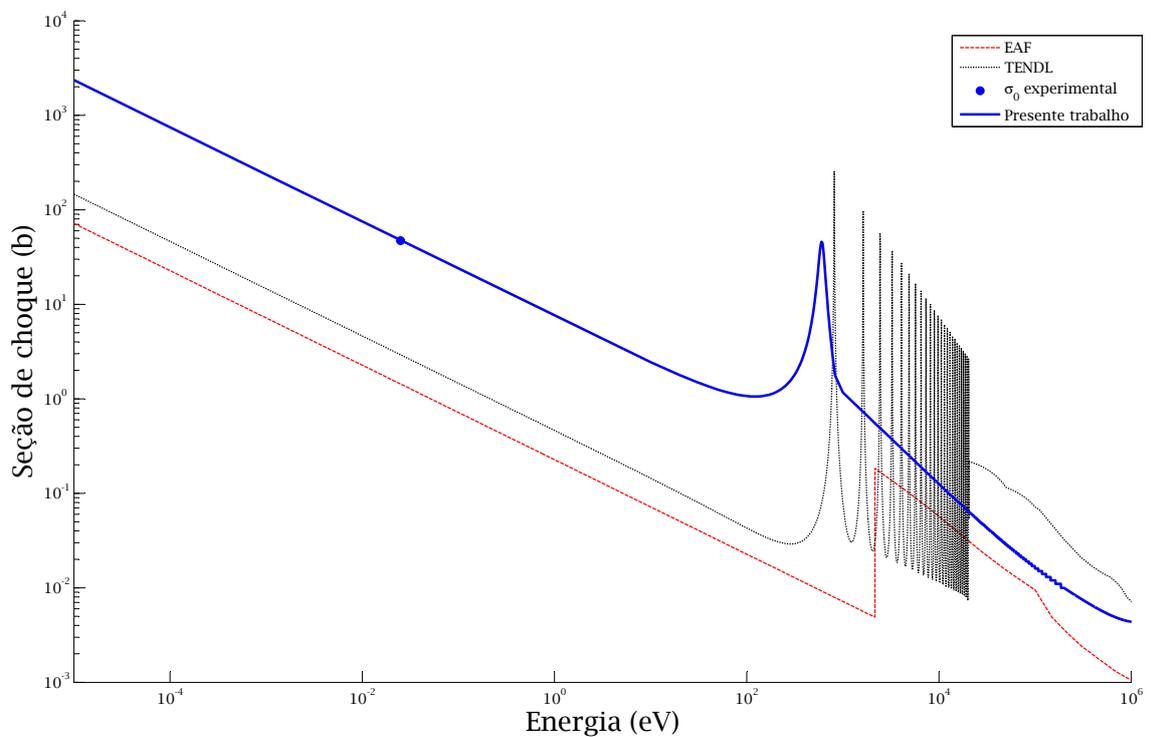


(b)

**Figura 6.5:** Ajustes sobre os dados obtidos para os picos provenientes do decaimento do  $^{43}\text{K}$ .



**Figura 6.6:** Curvas de seção de choque para a reação  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$  obtidas a partir de avaliações de dados [129, 29, 30] comparadas com a curva obtida no presente trabalho.



**Figura 6.7:** Curvas de seção de choque para a reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  obtidas a partir de avaliações de dados [29, 30] comparadas com a curva obtida no presente trabalho.

## Capítulo 7

### Conclusões

Esta tese apresentou a medida das seções de choque térmicas e integrais de ressonância das reações  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  e  $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$ , que, com exceção do  $\sigma_0$  para o  $^{34}\text{S}$ , eram desconhecidas.

A integral de ressonância do  $^{34}\text{S}$  apresentou valor menor que a seção de choque, o que explica a ausência do valor nos trabalhos anteriores, já que para ativar os alvos de enxofre foram necessárias irradiações longas e para observar a atividade da fonte no presente trabalho foi usado um sistema de detecção com eficiência superior aos usados nos trabalhos anteriores.

Os modelos de captura ressonante e potencial óptico usados foram bem sucedidos tanto no caso do  $^{43}\text{K}$  quanto no caso do  $^{35}\text{S}$ . A posição e largura da primeira ressonância foi bem determinada e tanto a seção de choque térmica quanto a integral de ressonância são reproduzidas usando uma ressonância única. Os resultados obtidos são válidos para energias de nêutron incidente de até 1 MeV, para nêutrons com maior energia (que são pouco prováveis na posição de irradiação usada por estar distante dos elementos combustível) seria necessário calcular outros coeficientes de transmissão  $T_\ell$  para  $\ell > 0$ .

Foram realizados cálculos de seção de choque e integral de ressonância para a reação  $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$  usando as áreas do foto-pico correspondente ao 312,60(25) keV do  $^{42}\text{K}$ . Os resultados obtidos, porém, foram descartados por apresentarem valores sistematicamente menores que para as áreas do 1524,6(3) keV e incerteza relativa da intensidade  $\gamma$  maior. Também foi notado que a avaliação de dados nucleares adotada como referência [77] se baseia em medidas experimentais antigas [130] e possivelmente ultrapassadas. Portanto se faz interessantes novas medidas de intensidade  $\gamma$  do 312,60(25) keV emitido durante o decai-

mento do  $^{42}\text{K}$ .

A curva de extrapolação de eficiência no sistema  $4\pi\beta-\gamma$  obtida com o PENELOPE é mais confiável que a curva obtida com o ESQUEMA, porque a geometria adotada é mais detalhada e o transporte de elétrons e fótons que são emitidos pela fonte foram transportados com o uso de modelos mais sofisticados.

# Lista de Figuras

|      |  |    |
|------|--|----|
| 2.1  | Feixe de nêutrons incidindo sobre um núcleo atômico, dividido em cilindros de raio $\ell\Lambda = \Lambda, 2\Lambda$ e $3\Lambda$ [41]. . . . .  | 11 |
| 2.2  | Seção de choque de captura de nêutrons em função da energia incidente do nêutron para a reação $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ [44, 45]. . . . .   | 14 |
| 2.3  | Seção de choque de captura de nêutrons em função da energia incidente do nêutron para a reação $^{113}\text{Cd}(n, \gamma)^{114}\text{Cd}$ [44, 45]. . . . .   | 14 |
| 3.1  | Valores do parâmetro $K$ para diferentes espessuras calculados por [47] e interpolação por spline. Os segmentos de reta tracejados paralelos aos eixos indicam o valor usado no presente trabalho. . . . .   | 23 |
| 3.2  | Reação $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ e esquema de decaimento do $^{198}\text{Au}$ [58]. . . . .  | 25 |
| 3.3  | Reação $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ e esquema de decaimento do $^{43}\text{K}$ [60]. . . . .  | 25 |
| 3.4  | Reação $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$ e esquema de decaimento do $^{35}\text{S}$ [61]. . . . .  | 26 |
| 3.5  | Esquema simplificado da desintegração do $^{60}\text{Co}$ [65]. . . . .  | 30 |
| 4.1  | Fotos (a) da folha e (b) do fio, ambos de Au-Al, usados como monitores de fluxo. A escala de referência é parte de uma régua em cm. . . . .  | 38 |
| 4.2  | Fragmentos de enxofre como os usados nas irradiações. Régua de referência em cm. . . . .   | 40 |
| 4.3  | (a) Esquema de peças e montagem do pastilhador. (b) Foto do pastilhador de aço inox. (c) Foto da pastilha de $\text{KNO}_3$ . As régua de referência estão em cm. . . . .  | 41 |
| 4.4  | Fotografia de uma ampola de quartzo contendo $\text{KNO}_3$ fundido, indicado pela seta. A escala de referência é parte de uma régua em cm. . . . .  | 42 |
| 4.5  | (a) Esquema da posição dos alvos no dispositivo de irradiação e (b) foto de um cilindro de alumínio (coelho) e uma haste de alumínio com os alvos fixados (régua de referência em cm). . . . .   | 43 |
| 4.6  | Esquema simplificado da configuração do núcleo do reator IEA-R1. . . . .   | 44 |
| 4.7  | Fotografia de um anel com colóidio metalizado. Se observa o círculo onde foi depositada a alíquota de solução radioativa contendo $^{60}\text{Co}$ e $^{35}\text{S}$ . Régua de referência em cm. . . . .  | 46 |
| 4.8  | Fotografia do sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$ . . . . .  | 49 |
| 4.9  | Partes simétricas (a) superior e (b) inferior do contador proporcional do LMN [79]. . . . .  | 50 |
| 4.10 | Diagrama do arranjo eletrônico convencional utilizado no sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$ [79]. . . . .   | 52 |
| 4.11 | Espectros (a) $\beta$ e (b) $\gamma$ , resultantes de medidas de 1000 s de uma fonte de $^{60}\text{Co} + ^{35}\text{S}$ . As linhas verticais tracejadas indicam os limites de aceitação da janela de coincidência. No espectro $\gamma$ é possível observar, próximo ao canal 1000, o pico formado pela soma dos fótons provenientes do $^{60}\text{Co}$ . . . . . | 57 |

|      |  |    |
|------|--|----|
| 4.12 | Espectro de diferenças de tempo de uma medida de 3000 s de uma fonte de $^{60}\text{Co} + ^{35}\text{S}$ . As setas e linhas verticais tracejadas indicam a origem das contagens em cada região do espectro. . . . .   | 58 |
| 4.13 | Fotografias do detector HPGe com esquema explicativo. . . . .  | 58 |
| 4.14 | Esquema do sistema para medida da radiação gama com detector HPGe. . . . .   | 59 |
| 4.15 | Telas do programa <i>IDEFIX from WINDOWS</i> mostrando um ajuste de função às contagens do pico de absorção total. . . . .   | 59 |
| 4.16 | Reta ajustada aos resultados experimentais da eficiência de detecção para fontes de $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ e $^{152}\text{Eu}$ , a 10 cm de distância fonte-detector. . . . .  | 60 |
| 4.17 | Espectro da atividade $\gamma$ induzida em uma pastilha de $\text{KNO}_3$ irradiada por 12 horas. Tempo de medida de 1 hora e 10 cm de distância fonte-detector com resolução de 0,16 keV/canal, com absorvedor de Al de 520 mg/cm <sup>2</sup> . . . . .  | 60 |
| 4.18 | Regiões <b>3</b> , em (a), e <b>7</b> , em (b), do espectro $\gamma$ apresentado na figura 4.17 contendo os picos de interesse do $^{43}\text{K}$ . . . . .  | 61 |
| 5.1  | Fluxo de nêutrons calculado para simular as irradiações realizadas. . . . .  | 65 |
| 5.2  | Imagens ilustrativas das geometrias usadas para simular as irradiações, fora de escala. Envolvidos pelas fontes volumétrica de nêutrons (em cinza) estão os alvos: (a) esfera de enxofre (em amarelo); (b) pastilha de $\text{KNO}_3$ (em vermelho) e (c) depósito de $\text{KNO}_3$ (em vermelho) dentro da ampola de quartzo (em amarelo claro). Nas figuras (d), (e) e (f) estão reproduzidas as mesmas geometrias que em (a), (b) e (c), mas os alvos não são preenchidos com materiais (a falta de material é representada pela cor branca, que não pode ser visualizada por estar atrás das fontes volumétricas de nêutrons em cinza). . . . . | 66 |
| 5.3  | Imagem da cápsula do detector de NaI obtida com raios-x. Os anéis de borracha estão dentro da cápsula na parte frontal, adicionando 0,93 cm de distância fonte-detector que não é observada a olho nu. . . . .   | 70 |
| 5.4  | Parte da geometria que corresponde aos cristais de NaI (em laranja) envoltos de uma capsula de alumínio (em azul), parte de fotomultiplicadora (em amarelo e vermelho) e suporte de latão (em roxo). (a) Geometria seccionada em um ângulo de 80° no plano XY; (b) sistema visto de fora. . . . .  | 70 |
| 5.5  | Parte da geometria que corresponde a estrutura de latão (em roxo) e o gás (em verde) do contador proporcional. (a) Geometria seccionada em um ângulo de 80° no plano XY; (b) sistema visto de fora. . . . .  | 71 |
| 5.6  | Geometria completa com os detectores dentro de uma blindagem de chumbo (em azul claro). (a) Geometria seccionada em um ângulo de 120° no plano XY; (b) sistema visto de fora. . . . .  | 72 |
| 5.7  | Espectro $\beta$ simulado do $^{60}\text{Co}$ comparado ao espectro experimental. . . . .  | 73 |
| 5.8  | Espectro $\gamma$ simulado no detector de NaI(Tl) dos dois fótons do $^{60}\text{Co}$ comparado ao espectro experimental. O espectro simulado foi normalizado pela área total do espectro experimental. . . . .  | 74 |
| 5.9  | Resultados do programa PENELOPE (modificado) comparados com os resultados obtidos com o programa ESQUEMA. As incertezas nos pontos simulados são menores que o tamanho dos pontos. . . . .   | 75 |
| 5.10 | Resultados do programa PENELOPE (modificado) ajustados a resultados experimentais obtidos, para o mesmo sistema, em outro trabalho [79] e no presente trabalho. As incertezas nos pontos simulados são menores que o tamanho dos pontos. . . . .   | 76 |

|     |   |    |
|-----|---|----|
| 6.1 | Espectro da atividade $\gamma$ induzida em uma folha de Au-Al irradiada por 12 horas; com as origens dos picos mais pronunciados. . . . .   | 83 |
| 6.2 | Ajuste sobre os valores experimentais do logaritmo natural das áreas do pico correspondente aos gamas de (a) 411 keV, (b) 676 keV e (c) 1088 keV. . . . .   | 95 |
| 6.3 | Espectro de 30 minutos obtido com detector HPGe de um alvo de enxofre irradiado por 10 horas, a 17 cm de distância fonte-detetor (subtraído o espectro de fundo). . . . .                         | 96 |
| 6.4 | Interface do <i>IDF from WINDOWS</i> mostrando os resultados de um dos ajustes sobre os picos de 617,490(6) keV e 619,106(4) keV. . . . .   | 96 |
| 6.5 | Ajustes sobre os dados obtidos para os picos provenientes do decaimento do $^{43}\text{K}$ . . . . .  | 97 |
| 6.6 | Curvas de seção de choque para a reação $^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$ obtidas a partir de avaliações de dados [129, 29, 30] comparadas com a curva obtida no presente trabalho. . . . . | 98 |
| 6.7 | Curvas de seção de choque para a reação $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ obtidas a partir de avaliações de dados [29, 30] comparadas com a curva obtida no presente trabalho. . . . .      | 98 |



# Lista de Tabelas

|      |   |    |
|------|---|----|
| 4.1  | Radionuclídeos usados como fonte padrão [65, 85, 86]. . . . .   | 55 |
| 4.2  | Energia, intensidade gama e procedência dos foto-picos enumerados na figura 4.17. Na última coluna, ES e ED explicitam que o pico foi formado a partir do escape simples ou duplo dos fótons de aniquilação, $\gamma^\pm$ . . . . .   | 56 |
| 5.1  | Fatores de correção dos efeitos de auto-blindagem e depressão de fluxo nos monitores de fluxo. . . . .  | 67 |
| 5.2  | Fatores de correção dos efeitos de auto-blindagem e depressão de fluxo nos alvos irradiados. . . . .  | 68 |
| 5.3  | Valores de eficiência de intrínseca de pico no detector NaI(Tl) para raios $\gamma$ de referência. . . . .  | 72 |
| 5.4  | Eficiência de pico de absorção total de energia para os fótons provenientes das fontes de calibração a 17,3 cm de distância fonte-detector. Os valores entre parênteses correspondem às incertezas em unidades dos últimos algarismos. . . . .                                      | 78 |
| 5.5  | Comparação de valores simulados e experimentais para a razão entre as eficiências dos picos de interesse obtidas para duas posições distintas da ampola de quartzo contendo $\text{KNO}_3$ . Os valores entre parênteses correspondem às incertezas nos últimos algarismos. . . . . | 79 |
| 5.6  | Fatores de correção para as eficiências de pico dos raios $\gamma$ do $^{42}\text{K}$ e do $^{43}\text{K}$ . Os valores entre parenteses correspondem à incerteza nos últimos algarismos. . . . .   | 79 |
| 6.1  | Valores de meia-vida, energia e intensidade relativa para os contaminantes encontrados nas folhas de Au-Al. . . . .   | 84 |
| 6.2  | Comparação entre os valores obtidos apresentados na bibliografia pra a meia-vida, energias dos fótons, e intensidades relativas do decaimento do $^{198}\text{Au}$ . . . . .  | 84 |
| 6.3  | Valores de meia-vida, energia e intensidade relativa para os contaminantes e concorrentes encontrados nas pastilhas de $\text{KNO}_3$ . . . . .   | 85 |
| 6.4  | Valores de meia-vida para o $^{43}\text{K}$ , e energia e intensidade relativa para os raios $\gamma$ provenientes de seu decaimento [77]. . . . .  | 85 |
| 6.5  | Valores obtidos a partir das atividades dos monitores de fluxo. . . . .   | 87 |
| 6.6  | Valores para secção de choque térmica, $\sigma_0$ , e integral de ressonância, $I$ , já publicados em comparação com os resultados obtidos no presente trabalho. . . . .  | 87 |
| 6.7  | Fluxos térmicos nas irradiações realizadas para medir $\sigma_0$ da reação $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ . . . . .  | 89 |
| 6.8  | Valores de seção de choque térmica, $\sigma_0$ , para a reação $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ obtidas a partir das áreas observadas devidas aos gamas 373 e 617 keV do $^{43}\text{K}$ e 1525 keV do $^{42}\text{K}$ . . . . .   | 89 |
| 6.9  | Valores de integral de ressonância, $I$ , para a reação $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ obtidas a partir das áreas de pico observadas. . . . .  | 90 |
| 6.10 | Resultados obtidos para a seção de choque térmica e integral de ressonância da reação $^{42}\text{K}(n, \gamma)^{43}\text{K}$ . . . . .   | 91 |

6.11 Matriz de correlações entre os resultados obtidos e os valores de referência das seções de choque das reações  $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$  [57] e  $^{41}\text{K}(n,\gamma)^{42}\text{K}$  [32]. . . . . 91

## Referências Bibliográficas

- [1] Beckurtz, K.H. e Wirtz, K.: *Neutron physics*. Springer, New York, N.Y., 1964.
- [2] Fermi, E., Amaldi, E., D'Agostino, O., Rasetti, F. e Segrè, E.: *Artificial Radioactivity Produced by Neutron Bombardment*. Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character, 146(857):483–500, 1934.
- [3] Amaldi, E., D'Agostino, O., Fermi, E., Pontecorvo, B., Rasetti, F. e Segrè, E.: *Artificial Radioactivity Produced by Neutron Bombardment. II*. Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences, 149(868):522–558, 1935.
- [4] Breit, G. e Wigner, E.: *Capture of Slow Neutrons*. Physical Review, 49:519 – 531, 1936.
- [5] Suhonen, J. e Civitarese, O.: *Weak-interaction and nuclear-structure aspects of nuclear double beta decay*. Physics Reports, 300(3–4):123 – 214, 1998.
- [6] Zhi, Q., Langanke, K., Martínez-Pinedo, G., Nowacki, F. e Sieja, K.: *The  $^{76}\text{Se}$  Gamow–Teller strength distribution and its importance for stellar electron capture rates*. Nuclear Physics A, 859(1):172 – 184, 2011.
- [7] Igashira, M. e Ohsaki, T.: *Neutron capture nucleosynthesis in the universe*. Science and Technology of Advanced Materials, 5(5–6):567 – 573, 2004.
- [8] Baker, C. A., Doyle, D. D., Geltenbort, P., Green, K., Grinten, M. G. D. van der, Harris, P. G., Iaydjiev, P., Ivanov, S. N., May, D. J. R., Pendlebury, J. M., Richardson, J. D., Shiers, D. e Smith, K. F.: *Improved Experimental Limit on the Electric Dipole Moment of the Neutron*. Physical Review Letters, 97:131801, 2006.
- [9] Timofeyuk, N.K.: *Do multineutrons exist?* Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics, 29(2):L9, 2003.
- [10] Spyrou, A., Kohley, Z., Baumann, T., Bazin, D., Brown, B. A., Christian, G., DeYoung, P. A., Finck, J. E., Frank, N., Lunderberg, E., Mosby, S., Peters, W. A., Schiller, A., Smith, J. K., Snyder, J., Strongman, M. J., Thoennessen, M. e Volya, A.: *First Observation of Ground State Dineutron Decay:  $^{16}\text{Be}$* . Physical Review Letters, 108:102501, 2012.
- [11] Bhattacharyya, S.: *Measurement of neutron star parameters: A review of methods for low-mass X-ray binaries*. Advances in Space Research, 45(8):949 – 978, 2010.
- [12] Landsberger, S. e Kapsimalis, R.: *Comparison of neutron activation analysis techniques for the determination of uranium concentrations in geological and environmental materials*. Journal of Environmental Radioactivity, (0), 2011.

- [13] Charbucinski, J., Duran, O., Freraut, R., Heresi, N. e Pineyro, I.: *The application of PGNAA borehole logging for copper grade estimation at Chuquicamata mine*. Applied Radiation and Isotopes, 60(5):771 – 777, 2004.
- [14] Yasui, L., Kroc, T., Gladden, S., Andorf, C., Bux, S. e Hosmane, N.: *Boron neutron capture in prostate cancer cells*. Applied Radiation and Isotopes, 70(1):6 – 12, 2012.
- [15] Bouwman, W.G., Plomp, J., Haan, V.O., Kraan, W.H., Well, A.A., Habicht, K., Keller, T. e Rekvelde, M.T.: *Real-space neutron scattering methods*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 586(1):9 – 14, 2008.
- [16] Bartmann, R., Behr, N., Hilger, A. e Krist, T.: *New solid state lens for reflective neutron focusing*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 634(1, Supplement):S104 – S107, 2011.
- [17] Vera, J., Mounzer, O., Ruiz-Sánchez, M.C., Abrisqueta, I., Tapia, L.M. e Abrisqueta, J.M.: *Soil water balance trial involving capacitance and neutron probe measurements*. Agricultural Water Management, 96(6):905 – 911, 2009.
- [18] Eisenbud, M. e Gesell, T.F.: *Environmental Radioactivity from Natural, Industrial & Military Sources: From Natural, Industrial and Military Sources*. Elsevier Science, 1997.
- [19] Yeong, C.H., Blackshaw, P.E., Ng, K.H., Abdullah, B.J.J., Blaauw, M., Dansereau, R.J. e Perkins, A.C.: *Reproducibility of neutron activated Sm-153 oral dose formulations intended for human administration*. Applied Radiation and Isotopes, 69(9):1181 – 1184, 2011.
- [20] Kappeler, F.: *S-Process nucleosynthesis and the interior of Red Giants*. Nuclear Physics A, 752:500 – 509, 2005. Proceedings of the 22nd International Nuclear Physics Conference (Part 2).
- [21] Maidana, N.L.: *Medida de seções de choque para reações de captura de nêutrons no  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{241}\text{Am}$  considerando a formação de estados isoméricos*. Tese de Doutorado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, 2000.
- [22] Maidana, N.L., Mesa, J., Vanin, V.R., Castro, R.M., Dias, M.S. e Koskinas, M.F.:  $^{57}\text{Co}(n, \gamma)^{58}\text{Co}$  reaction cross section: thermal and resonance integral measurements and energy dependence. Physical Review C, 70:014602, 2004.
- [23] Seren, L., Friedlander, H.N. e Turkel, S.H.: *Thermal Neutron Activation Cross Sections*. Phys. Rev., 72:888–901, 1947.
- [24] Durham, R.W. e Girardi, F.: *Effective neutron activation cross-sections of some chlorine and sulphur reactions in NRX*. Il Nuovo Cimento, 19:4–17, 1961.
- [25] Kappe, D.S.: *A Self-consistent Set of Thermal Neutron Activation Cross Sections*. Pennsylvania State University., 1965.
- [26] Ishikawa, H.: *Measurements of neutron reaction cross sections using a liquid scintillation spectrometer*. Nuclear Instruments and Methods, 109(3):493 – 501, 1973.

- [27] Raman, S., Carlton, R.F., Wells, J.C., Journey, E.T. e Lynn, J.E.: *Thermal neutron capture gamma rays from sulfur isotopes: Experiment and theory*. Phys. Rev. C, 32:18 – 69, 1985.
- [28] Beer, H., Coceva, C., Hofinger, R., Mohr, P., Oberhummer, H., Sedyshev, P.V. e Popov, Y.P.: *Measurement of direct neutron capture by neutron-rich sulfur isotopes*. Nuclear Physics A, 621(1–2):235 – 238, 1997.
- [29] Sublet, J.Ch., Packer, L.W., Kopecky, J., Forrest, R.A., Koning, A.J. e Rochman, D.A.: *The European Activation File: EAF-2010 neutron-induced cross section library*. Relatório Técnico, Nuclear Energy Agency, 2010.
- [30] Koning, A. e Rochman, D.: *TENDL-2011: TALYS-based evaluated nuclear data library*. Relatório Técnico, Nuclear Energy Agency, 2011.
- [31] Ferreira, F.A.Jr.: *Medida da secção de choque térmica e da integral de ressonância da reação  $^{41}\text{K}(n, \gamma)^{42}\text{K}$* . Tese de Mestrado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, 2008.
- [32] Ferreira, F.A.Jr., Maidana, N.L., Vanin, V.R., Dias, M.S. e Koskinas, M.F.:  *$^{41}\text{K}(n, \gamma)^{42}\text{K}$  thermal and resonance integral cross-section measurements*. <http://www.oldenbourg-link.com/doi/abs/10.1524/ract.2012.1985>, 2012.
- [33] Yao, W.M. et al.: *Review of Particle Physics*. Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics, 33(1):1, 2006.
- [34] *Comunicação pessoal com os técnicos do reator*.
- [35] Moteff, J. (Ed): *Neutron fluence measurements*. Relatório Técnico, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1970. Technical report series 107.
- [36] Watt, B.E.: *Energy spectrum of neutrons from thermal fission U-235*. Physical Review, 87(6):1037–1041, 1952.
- [37] Dung, H. e Sasajima, F.: *Determination of  $\alpha$  and  $f$  for  $k_0$ -NAA in irradiation sites with high thermalized neutrons*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 257:509 – 512, 2003.
- [38] Kaplan, I.: *Nuclear physics*. Addison-Wesley series in nuclear science and engineering. Addison-Wesley Pub. Co., 1955.
- [39] Blatt, J.M. e Weisskopf, V.F.: *Theoretical nuclear physics*. Willey, New York, N. Y., 1952.
- [40] Hodgson, P.E., Gadioli, E. e Erba, E.G.: *Introductory nuclear physics*. Oxford science publications. Clarendon Press, 1997.
- [41] Evans, R.D.: *The atomic nucleus*. McGraw-Hill, New York, N. Y., 1955.
- [42] Sakurai, J.J.: *Modern quantum mechanics*. Addison-Wesley, New York, N. Y., 1994.
- [43] Bohr, A. e Mottelson, B.R.: *Single-particle motion*. Nuclear Structure. World Scientific, 1998.

- [44] Chadwick, M.B., Oblozinsky, P. e Herman, M. et al.: *ENDF/B-VII.0: Next generation evaluated nuclear data library for nuclear science and technology*. Nuclear Data Sheets, 107:2931–3060, 2006.
- [45] Cullen, D.E.: *PREPRO 2007: 2007 ENDF/B Pre-processing codes*. Relatório Técnico, IAEA-NDS-39, 2007.
- [46] Hughes, J.D.: *Neutron cross sections*. Upton, New York, N. Y., 1952.
- [47] Westcott, C.H., Walker, W.H. e Alexander, T.K.: *Effective cross sections and cadmium ratios for the neutron spectra of the thermal reactors*. Chalk River, 1958.
- [48] Westcott, C.H.: *Effective cross sections values for well-moderated thermal reactor spectra*. Chalk River, 1960.
- [49] Walker, W.H., Westcott, C.H. e Alexander, T.K.: *Measurement of radiative capture resonance integrals in a thermal reactor spectrum and thermal cross section of pu-241*. Canadian journal of physics, 38, 1960.
- [50] Benjelloun, M. e Paulus, J.M.:  $\alpha$ -determination in the  $E^{-(1+\alpha)}$  epithermal neutron-spectrum of the CRN reactor (Strasbourg). Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry – Articles, 109(2):393–401, 1987.
- [51] De Corte, F. e Simonits, A.S.: *Recommended nuclear data for use in the  $k_0$  standardization of neutron activation analysis*. Atomic Data and Nuclear Data Tables, 85(1):47–67, 2003.
- [52] Onega, R.J.: *Radioactivity Calculations*. American Journal of Physics, 37(10):1019, 1969.
- [53] Press, W.H., Teukolsky, S.A., Vetterling, W.T. e Flannery, B.P.: *Numerical Recipes 3rd Edition: The Art of Scientific Computing*. Cambridge University Press, 2007.
- [54] Axton, E.J.: *Absolute measurement of the neutron flux density in the A.E.R.E. reactor 'gleep'*. Reactor Science and Technology (Journal of nuclear energy parts A/B), 17:125–135, 1963.
- [55] Ryves, T.B.: *Activation measurements of thermal neutron capture cross-sections and resonance integrals*. Journal of Nuclear Energy, 24(1):35 – 42, 1970.
- [56] Nguyen, V.D., Pham, D.K., Kim, T.T., Kim, G., Lee, M., Kim, K.S., Kang, H.S., Cho, M.H., Ko, I.S. e Namkung, W.: *Measurement of thermal neutron cross-section and resonance integral for the  $^{165}\text{Ho}(n,\gamma)^{166g}\text{Ho}$  reaction using electron linac-based neutron source*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 269(2):159 – 166, 2011.
- [57] Mughabghab, S.F.: *Atlas of neutron resonances. Resonance parameters and thermal cross sections  $Z = 1-100$* . Elsevier Science & Technology, 2006.
- [58] Xiaolong, H.: *Nuclear data sheets for  $A = 198$* . Nuclear Data Sheets, 110:2533, 2009.
- [59] Firestone, R.B., V.S., Shirley, C.M., Baglin, S.Y.F., Chu e J., Zipkin: *Table of isotopes*. John Wiley & Sons, 1996.

- [60] Cameron, J.A. e Singh, B.: *Nuclear data sheets for  $A=40$* . Nuclear Data Sheets, 92:783, 2001.
- [61] Chen, J., Cameron, J.A. e Singh, B.: *Nuclear data sheets for  $A = 35$* . Nuclear Data Sheets, 112:2715, 2011.
- [62] Baerg, A.P.: *Absolute Measurement of Radioactivity*. Metrologia, 3(4):105–&, 1967.
- [63] Baerg, A.P.: *Efficiency Extrapolation Method in Coincidence Counting*. Nuclear Instruments & Methods, 112(1-2):143–150, 1973.
- [64] Baerg, A.P.: *Measurement of radioactivity desintegration rate by the coincidence method*. Metrologia, 2(1):23–32, 1966.
- [65] Tuli, J.K.: *Nuclear data sheets for  $A = 60$* . Nuclear Data Sheets, 100:347, 2003.
- [66] Fan, C.Y.: *Beta-spectra and internal conversion coefficients for  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{198}\text{Au}$ , and  $^{181}\text{Hf}$* . Physical Review, 87:252–262, 1952. <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.87.252>.
- [67] Knoll, G.F.: *Radiation Detection and Measurement*. John Willey & Sons, New York, N.Y., 2ª edição, 1989.
- [68] Debertin, K. e Helmer, R.G.: *Gamma- And X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*. North-Holland, 1988.
- [69] Helene, O. e Vanin, V.R.: *Tratamento estatístico de dados em física experimental*. Edgar Blucher LTDA, São Paulo, 1981.
- [70] Vanin, V.R. e Gouffon, P.: *Tópicos avançados em tratamento estatístico de dados*. IFUSP/LAL, São Paulo, 1996.
- [71] Helene, O.: *Método dos mínimos quadrados com formalismo matricial: guia do usuário*. Livraria da Física, São Paulo, 2006.
- [72] Nica, N., Cameron, J. e Singh, B.: *Nuclear Data Sheets for  $A = 36$* . Nuclear Data Sheets, 113(1):1 – 155, 2012.
- [73] Cameron, J., Chen, J., Singh, B. e Nica, N.: *Nuclear Data Sheets for  $A = 37$* . Nuclear Data Sheets, 113(2):365 – 514, 2012.
- [74] Coursey, J.S., Schwab, D.J. e Dragoset, R.A.: *Atomic Weights and Isotopic Compositions*. 2005. <http://physics.nist.gov/Comp>.
- [75] Tilley, D.R., Weller, H.R. e Cheves, C.M.: *Energy levels of light nuclei  $A = 16-17$* . Nuclear Physics A, 564(1):1–183, 1993.
- [76] Tilley, D.R., Weller, H.R., Cheves, C.M. e Chasteler, R.M.: *Energy levels of light nuclei  $A = 18-19$* . Nuclear Physics A, 595(1):1 – 170, 1995.
- [77] Singh, B. e Cameron, J.A.: *Nuclear Data Sheets for  $A = 42$* . Nuclear Data Sheets, 92(1):1 – 145, 2001.
- [78] Ney, W.R.: *Particle Counting in Radioactivity Measurement (Report 52)*. Relatório Técnico, International Commission on Radiation Units & Measurements, Bethesda, USA, 1994.

- [79] Takeda, M.N.: *Aplicação do Método de Monte Carlo no estudo da padronização de radionuclídeos com esquema de desintegração complexos em sistemas de coincidências  $4\pi\beta - \gamma$* . Tese de Doutorado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN/CNEN-SP, 2006.
- [80] Dias, M.S., Takeda, M.N. e Koskinas, M.F.: *Application of Monte Carlo simulation to prediction of extrapolation curves in the coincidence technique*. Applied Radiation and Isotopes, 64:1186 – 1192, 2006.
- [81] Dias, M.S.: *CONTAC: a code for activity calculation based on TAC measurements*. Relatório Técnico, IPEN-CNEN/SP, 2001.
- [82] Baccarelli, A.M., Dias, M.S., Koskinas, M.F. e Brancaccio, F.: *Standardization of  $^{18}\text{F}$  by means of  $4\pi(\text{PS})\beta - \gamma$  plastic scintillator coincidence system*. IEEE Transactions on Nuclear Science, 55(3):1767–1773, 2008.
- [83] Vo, D.T. e Russo, P.A.: *Comparison of the portable digital spectrometer systems*. Relatório Técnico LA 13895-MS, Los Alamos National Laboratory, 2002.
- [84] Castro, R.M.: *Transformando o  $^{152}\text{Eu}$  em um padrão de calibração de eficiência para detecção de gamas*. Tese de Doutorado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, 2003.
- [85] Browne, J.K. e Tuli, J.K.: *Nuclear data sheets for  $A = 137$* . Nuclear Data Sheets, 108:2173, 2007.
- [86] Artna-Cohen, A.: *Nuclear data sheets for  $A = 152$* . Nuclear Data Sheets, 79:1, 1996.
- [87] Gouffon, P.: *Manual do Programa IDEFIX*, 1983.
- [88] Guimarães, Z.O.: *IDEFIX from Windows*. Comunicação privada, 1999.
- [89] Sobol, I.M.: *The Monte Carlo Method*. University of Chicago Press, 1975.
- [90] Pino, N.L.: *Bremsstrahlung de elétrons no microtron do IFUSP: medidas, simulação e proposta de aplicação ao estudo da ressonância fluorescente nuclear*. Tese de Doutorado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, 2011.
- [91] Briemester, J.F.: *MCNP a general Monte Carlo N-Particle transport code*. Los Alamos, USA, 5ª edição, 2001.
- [92] Carter, L.L. e Schwarz, R.A.: *MCNP Visual Editor Computer Code Manual*, 2003. [www.mcnpvised.com](http://www.mcnpvised.com).
- [93] Salvat, F., Fernandez-Varea, J.M. e Sempau, J.R.: *PENELOPE-2008: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport*. OECD Nuclear Energy Agency, Issy-les-Moulineaux, France, 2009.
- [94] Jahnke, V.: *Medida das seções de choque de ionização da camada K de Au e Bi por impacto de elétrons*. Tese de Mestrado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, 2012.

- [95] Maidana, N.L., Tridapalli, D.B., Rizzutto, M.A., Pascholati, P.R., Martins, M.N. e Vanin, V.R.: *Search for the triple-escape peak in HPGe detectors*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 580(1):106 – 109, 2007.
- [96] Dias, M.S., Cardoso, V., Koskinas, M.F. e Yamazaki, I.M.: *Determination of the neutron spectrum shape parameter  $\alpha$  in  $k_0$  NAA methodology using covariance analysis*. Applied Radiation and Isotopes, 68(4–5):592 – 595, 2010.
- [97] Dias, M.S., Cardoso, V., Koskinas, M.F., Yamazaki, I.M., Semmler, R., Morales, M., Zahn, G.S., Genezini, F.A., Menezes, M.O. e Figueiredo, A.M.G.: *Measurements of  $k_0$  and  $Q_0$  values for  $^{64}\text{Zn}(n, \gamma)^{65}\text{Zn}$  and  $^{68}\text{Zn}(n, \gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$  reactions with covariance analysis*. Applied Radiation and Isotopes, 69(7):960 – 964, 2011.
- [98] Bell, G.I. e Glasstone, S.: *Nuclear reactor theory*. Van Nostrand Reinhold Co., 1970.
- [99] Lewis, E.E. e Miller, W.F.: *Computational methods of neutron transport*. Wiley, 1984.
- [100] Baumann, N.P. e Stroud, M.B.: *Self-shielding of detector foils in reactor fluxes*. Nuclear Science and Engineering, 23:98–100, 1965.
- [101] Martinho, E., Gonçalves, I.F. e Salgado, J.: *Universal curve of epithermal neutron resonance self-shielding factors in foils, wires and spheres*. Applied Radiation and Isotopes, 58(3):371–375, 2003.
- [102] Maidana, N.L., Brualla, L., Vanin, V.R., Oliveira, J.R.B., Rizzutto, M.A., Nascimento, E. do e Fernández-Varea, J.M.: *Triple- and quadruple-escape peaks in HPGe detectors: Experimental observation and Monte Carlo simulation*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 615(3):285 – 294, 2010.
- [103] Sempau, J., Badal, A. e Brualla, L.: *A PENELOPE-based system for the automated Monte Carlo simulation of clinacs and voxelized geometries—application to far-from-axis fields*. Medical Physics, 38(11):5887–5895, 2011.
- [104] Green, R.M. e Finn, R.J.: *Photopeak Efficiencies of NaI(Tl) Crystals*. Nuclear Instruments and Methods, 34:72–76, 1964.
- [105] Kondev, F.G.: *Nuclear Data Sheets for  $A = 203$* . Nuclear Data Sheets, 105(1):1 – 108, 2005.
- [106] Basu, S.K., Mukherjee, G. e Sonzogni, A.A.: *Nuclear Data Sheets for  $A = 95$* . Nuclear Data Sheets, 111(10–11):2555 – 2737, 2010.
- [107] Junde, H. e Su, H.: *Nuclear Data Sheets for  $A = 54$* . Nuclear Data Sheets, 107(6):1393 – 1530, 2006.
- [108] Firestone, R.B.: *Nuclear Data Sheets for  $A = 22$* . Nuclear Data Sheets, 106(1):1 – 88, 2005.
- [109] García-Toraño, E. e Grau, A.: *Effy, a program to calculate the counting efficiency of beta particles in liquid scintillators*. Computer Physics Communications, 23(4):385 – 391, 1981.

- [110] García-Toraño, E., A., Grau e J.M., Los Arcos: *EBEGA — the counting efficiency of a beta-gamma emitter in liquid scintillators*. Computer Physics Communications, 50(3):313 – 319, 1988.
- [111] Boson, J., Ågren, G. e Johansson, L.: *A detailed investigation of HPGe detector response for improved Monte Carlo efficiency calculations*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 587(2–3):304 – 314, 2008.
- [112] Maidana, N.L., Vanin, V.R., Horii, C.L., F.A.Jr., Ferreira e Rajput, M.U.: *Absolute determination of soluble potassium in tea infusion by gamma-ray spectroscopy*. Food Chemistry, 116(2):555 – 560, 2009.
- [113] Huy, N.Q., Binh, D.Q. e An, V.X.: *Study on the increase of inactive germanium layer in a high-purity germanium detector after a long time operation applying MCNP code*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 573(3):384 – 388, 2007.
- [114] Sood, A., Forster, R.A., Adams, B.J. e White, M.C.: *Verification of the pulse height tally in MCNP 5*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 213(0):167 – 171, 2004.
- [115] Reus, U. e Westmeier, W.: *Catalog of Gamma Rays from Radioactive Decay*. Número v. 1 em *Atomic data and nuclear data tables*. Academic Press, 1983.
- [116] Keller, J.M.: *Nuclide Identification Package*. Software.
- [117] Katakura, J. e Wu, Z.D.: *Nuclear Data Sheets for  $A = 124$* . Nuclear Data Sheets, 109(7):1655 – 1877, 2008.
- [118] Tamura, T.: *Nuclear Data Sheets for  $A = 122$* . Nuclear Data Sheets, 108(3):455 – 632, 2007.
- [119] Firestone, R.B.: *Nuclear Data Sheets for  $A = 24$* . Nuclear Data Sheets, 108(11):2319 – 2392, 2007.
- [120] Tuli, J.K.: *Nuclear Data Sheets for  $A = 82$* . Nuclear Data Sheets, 98(2):209 – 334, 2003.
- [121] Singh, B.: *Nuclear Data Sheets for  $A = 86$* . Nuclear Data Sheets, 94(1):1 – 130, 2001.
- [122] Pronyaev, V.: *Meeting on validation of ENDF/B-VII beta2*. Brookhaven National Laboratory, 2006.
- [123] Meissner, J., Schatz, H., Görres, J., Herndl, H., Wiescher, M., Beer, H. e Käppeler, F.: *Neutron capture cross section of  $^{18}\text{O}$  and its astrophysical implications*. Physical Review C, 53:459 – 468, 1996.
- [124] Meissner, J., Schatz, H., Herndl, H., Wiescher, M., Beer, H. e Käppeler, F.: *Neutron capture cross section of  $^{15}\text{N}$  at stellar energies*. Physical Review C, 53:977 – 981, 1996.
- [125] *Proc. ICTP Workshop on Computation and Analysis of Nuclear Data Relevant to Nuclear Energy and Safety*, Trieste, Italy, 1992.

- [126] Capote, R., Herman, M., Obložinský, P., Young, P.G., Goriely, S., Belgya, T., Ignatyuk, A.V., Koning, A.J., Hilaire, S., Plujko, V.A., Avrigeanu, M., Bersillon, O., Chadwick, M.B., Fukahori, T., Ge, Zhigang, Han, Yinlu, Kailas, S., Kopecky, J., Maslov, V.M., Reffo, G., Sin, M., Soukhovitskii, E.Sh. e Talou, P.: *RIPL – Reference Input Parameter Library for Calculation of Nuclear Reactions and Nuclear Data Evaluations*. Nuclear Data Sheets, 110(12):3107 – 3214, 2009.
- [127] Nemirovsky, P.E. e Adamchuk, Yu.V.: *Neutron and proton pair interaction energy*. Nuclear Physics, 39(0):551 – 562, 1962.
- [128] Garcia, F., Rodriguez, O., Mesa, J., Arruda-Neto, J.D.T., Likhachev, V.P., Garrote, E., Capote, R. e Guzmán, F.: *BARRIER code: Calculation of fission barriers*. Computer Physics Communications, 120(1):57 – 70, 1999.
- [129] Chadwick, M.B., Herman, M. e Obložinský, P. et al.: *ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data*. Nuclear Data Sheets, 112(12):2887 – 2996, 2011.
- [130] Asplund, I. e Wiedling, T.: *Zero-Spin Excited State in Ca<sup>42</sup>*. Physical Review, 116:741 – 743, 1959.