AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**DESENVOLVIMENTO DE UMA METODOLOGIA PARA CARACTERIZAÇÃO DO
FILTRO CUNO DO REATOR IEA-R1 UTILIZANDO O MÉTODO DE MONTE CARLO**

PRISCILA COSTA

**Dissertação apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Mestre em Ciências na Área de Tecnologia
Nuclear - Aplicações**

**Orientador:
Prof. Dr. Ademir José Potiens Júnior**

**São Paulo
2014**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Autarquia associada à Universidade de São Paulo

**DESENVOLVIMENTO DE UMA METODOLOGIA PARA CARACTERIZAÇÃO DO
FILTRO CUNO DO REATOR IEA-R1 UTILIZANDO O MÉTODO DE MONTE CARLO**

PRISCILA COSTA

**Dissertação apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Mestre em Ciências na Área de Tecnologia
Nuclear - Aplicações**

Orientador:
Prof. Dr. Ademar José Potiens Júnior

Versão Corrigida
Versão Original disponível no IPEN

São Paulo
2014

AGRADECIMENTOS

Agradeço primeiramente a Deus, a minha família, em especial aos meus pais Marcos Antônio Costa e Maria Eunice de Lima Costa. Aos meus sobrinhos: Gustavo Silva Costa, Lucas Silva Costa e Arthur de Barros Costa por me inspirarem;

Agradeço ao Dr. Ademar José Potiens Júnior pela orientação, atenção e dedicação a esse projeto;

Agradeço a toda equipe da GRR. Em especial ao Juscelino e ao Hércio na preparação dos experimentos, ao Robson por toda ajuda com informações e contatos no reator IEA-R1.

Agradeço aos Pesquisadores: Dr. Goro Hiromoto, Dr. Júlio Takehiro Marumo, Dr. José Cláudio Dellamano e Dr. Roberto Vicente.

Agradeço a Hissae, Ricardo, Vera e Marcos;

Aos meus amigos: Ana Paula, Bianca, Ludmila, Ieda e Rafinha, que me apoiaram e foram pacientes comigo;

À USP, ao IPEN e à Gerência de Rejeitos Radioativos pela oportunidade de realização deste trabalho;

A CAPES pela bolsa de estudos concedida;

Enfim, a todos que contribuíram para a realização deste trabalho.

“ Embora ninguém possa voltar atrás e fazer um novo começo,
qualquer um pode começar agora e fazer um novo fim ”

Chico Xavier

DESENVOLVIMENTO DE UMA METODOLOGIA PARA CARACTERIZAÇÃO DO FILTRO CUNO DO REATOR IEA-R1 UTILIZANDO O MÉTODO DE MONTE CARLO

Priscila Costa

RESUMO

O filtro cuno faz parte do circuito de tratamento de água do reator IEA-R1 que, quando saturado, é substituído, se tornando um rejeito radioativo que deve ser gerenciado. Neste trabalho foi realizada a caracterização primária do filtro cuno do reator nuclear IEA-R1 do IPEN utilizando-se espectrometria gama associada ao método de Monte Carlo. A espectrometria gama foi realizada utilizando-se um detector de germânio hiperpuro (HPGe). O cristal de germânio representa o volume ativo de detecção do detector HPGe, que possui uma região denominada camada morta ou camada inativa. Na literatura tem sido reportada uma diferença entre os valores experimentais e teóricos na obtenção da curva de eficiência desses detectores. Neste trabalho foi utilizado o código MCNP-4C para a obtenção da calibração em eficiência do detector para a geometria do filtro cuno, onde foram estudadas as influências da camada morta e do efeito de soma em cascata no detector HPGe. As correções dos valores de camada morta foram realizadas variando-se a espessura e o raio do cristal de germânio. O detector possui $75,83 \text{ cm}^3$ de volume ativo de detecção, segundo informações fornecidas pelo fabricante. Entretanto os resultados encontrados mostraram que o valor de volume ativo real é menor do que o especificado, onde a camada morta representa 16% do volume total do cristal. A análise do filtro cuno por meio da espectrometria gama, permitiu a identificação de picos de energia. Por meio desses picos foram identificados três radionuclídeos no filtro: $^{108\text{m}}\text{Ag}$, $^{110\text{m}}\text{Ag}$ e ^{60}Co . A partir da calibração em eficiência obtida pelo método de Monte Carlo, o valor de atividade estimado para esses radionuclídeos está na ordem de MBq.

DEVELOPMENT OF METHODOLOGY FOR CHARACTERIZATION OF CARTRIDGE FILTERS FROM THE IEA-R1 USING THE MONTE CARLO METHOD

Priscila Costa

ABSTRACT

The Cuno filter is part of the water processing circuit of the IEA-R1 reactor and, when saturated, it is replaced and becomes a radioactive waste, which must be managed. In this work, the primary characterization of the Cuno filter of the IEA-R1 nuclear reactor at IPEN was carried out using gamma spectrometry associated with the Monte Carlo method. The gamma spectrometry was performed using a hyperpure germanium detector (HPGe). The germanium crystal represents the detection active volume of the HPGe detector, which has a region called dead layer or inactive layer. It has been reported in the literature a difference between the theoretical and experimental values when obtaining the efficiency curve of these detectors. In this study we used the MCNP-4C code to obtain the detector calibration efficiency for the geometry of the Cuno filter, and the influence of the dead layer and the effect of sum in cascade at the HPGe detector were studied. The correction of the dead layer values were made by varying the thickness and the radius of the germanium crystal. The detector has 75.83 cm³ of active volume of detection, according to information provided by the manufacturer. Nevertheless, the results showed that the actual value of active volume is less than the one specified, where the dead layer represents 16% of the total volume of the crystal. A Cuno filter analysis by gamma spectrometry has enabled identifying energy peaks. Using these peaks, three radionuclides were identified in the filter: ^{108m}Ag, ^{110m}Ag and ⁶⁰Co. From the calibration efficiency obtained by the Monte Carlo method, the value of activity estimated for these radionuclides is in the order of MBq.

SUMÁRIO

	Página
1. INTRODUÇÃO	1
1.1 Aspectos Gerais	1
2. OBJETIVOS	4
3. FUNDAMENTOS TEÓRICOS	5
3.1 Interação da Radiação Gama com a Matéria	5
3.2 Espectrometria Gama	8
3.2.1 Ângulo Sólido	10
3.2.2 Resolução em Energia	11
3.2.3 Detectores Semicondutores	12
3.2.4 Eficiência	12
3.2.5 Efeito de Soma em Cascata	15
3.3 Monte Carlo	16
3.4 Gerência de Rejeitos Radioativos	18
3.5 Reator IEA-R1	22
4. REVISÃO DA LITERATURA	25
4.1 Espectrometria Gama e o Método de Monte Carlo	25
5. MATERIAIS E MÉTODOS	27
5.1 Materiais	27
5.1.1 Detector	27
5.1.2 Fontes Radioativas	28
5.1.3 Geometria dos Materiais Simulados	28
5.2 Métodos	30
5.2.1 Determinação da Camada Morta do Detector EPGC-15-190-R	31
5.2.2 Calibração em Eficiência do Detector EGPC-15-190-R	32
5.2.3 Caracterização do Filtro Cuno	33
5.2.4 Efeito de Soma em Cascata e Fatores de Correção	34
6. RESULTADOS E DISCUSSÃO	35
6.1 Camada Morta EGPC-15-190-R	35
6.2 Efeito de Soma em Cascata	39

6.3	Filtro Cuno.....	44
6.3.1	Calibração em Eficiência do Detector EGPC-15-190-R	44
6.3.2	Caracterização do Filtro	45
7.	CONCLUSÕES	47
7.1	Detector EGPC-15-190-R	47
7.1.1	Camada Morta do Detector EGPC-15-190-R.....	47
7.2	Efeito de Soma em Cascata.....	47
7.3	Caracterização do Filtro Cuno.....	48
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	50

LISTA DE FIGURAS

	Página
FIGURA 1 - Emissão da radiação gama pelo núcleo	5
FIGURA 2 - Diagrama esquemático do efeito fotoelétrico, com um fóton interagindo com um elétron orbital da camada K de um átomo. Fonte COSTA, 2010.....	6
FIGURA 3 - Representação do efeito Compton	6
FIGURA 4 – Representação da produção de pares.....	7
FIGURA 5 - Possibilidades de interações da radiação gama em função do número atômico (Z) do absorvedor e da energia do fóton incidente. Fonte KNOLL, 2002 ..	7
FIGURA 6 - Diagrama com a fonte isotrópica, detector e um sistema de contagem de pulsos. Fonte TSOULFANIDIS, 1995.....	9
FIGURA 7 -Espectro gama exemplificado obtido por um analisador multicanal relacionando a contagem (C) em função dos canais	9
FIGURA 8 - Calibração em energia do detector EPGC-15-190-R	10
FIGURA 9 – Representação da FWHM no espectro.....	11
FIGURA 10 - Resoluções em energia do detector. Fonte KNOLL, 2002	12
FIGURA 11 – Curva de calibração em eficiência do detector EPGC-15-190-R....	14
FIGURA 12 – Decaimento de isótopos com emissão de múltiplos raios gama	15
FIGURA 13 - Fluxograma das etapas de gerência de rejeitos radioativos.....	18
FIGURA 14 –Fluxograma do sistema de tratamento e retratamento da água do reator nuclear IEA-R1. Fonte TADDEI <i>et al.</i> , 2013a.....	23
FIGURA 15 - Detector EPGC-15-190-R.....	28
FIGURA 16 - Filtro cunho do reator IEA-R1	29
FIGURA 17 – Geometria simulada das fontes de ^{152}Eu e ^{241}Am	29
FIGURA 18 – Dimensões simuladas do detector EPGC-15-190-R.....	30
FIGURA 19 - Diagrama do arranjo frontal.....	31
FIGURA 20 - Diagrama do arranjo lateral	31
FIGURA 22 - Suporte de PVC visão lateral	31
FIGURA 21 - Suporte de PVC visão superior	31
FIGURA 23 – Região da camada morta no cristal de germânio	32

FIGURA 24 -Arranjo experimental do sistema de calibração em eficiência do filtro cunho simulado pelo MCNP.....	33
FIGURA 25 -Espectro experimental da medição frontal da camada morta do detector EGPC-15-190-R para fonte de ^{241}Am	35
FIGURA 26 -Espectro experimental da medição lateral da camada morta do detector EGPC-15-190-R para fonte de ^{241}Am	35
FIGURA 27 -Gráfico da relação entre a eficiência obtida pelo método de Monte Carlo e a eficiência experimental em função da espessura para a energia de 59,54 keV	37
FIGURA 28 -Gráfico da relação entre a eficiência obtida pelo método de Monte Carlo e a eficiência experimental em função do raio para a energia de 59,54 keV	38
FIGURA 29 -Espectro experimental do efeito de soma em cascata para a distância fonte-detector de 7,5 cm	39
FIGURA 30 -Espectro experimental do efeito de soma em cascata para a distância fonte-detector de 10 cm	40
FIGURA 31 -Espectro experimental do efeito de soma em cascata para a distância fonte-detector de 15 cm	40
FIGURA 32 - Espectro experimental do filtro cunho número 15	45

LISTA DE TABELAS

	Página
TABELA 1 - Principais propriedades física, química e radiológica para os rejeitos sólido, líquido e gasoso	19
TABELA 2 - Eficiência experimental da camada morta do detector EGPC-15-190-R.....	36
TABELA 3 - Valores teóricos da eficiência (ϵ_{MCNP}) e seus respectivos erros relativos para a variação da espessura da camada morta, relação entre o valor teórico e o experimental para a energia de 59,54 keV	36
TABELA 4 - Valores teóricos da eficiência (ϵ_{MCNP}) e seus respectivos erros relativos para a variação do raio do cristal de germânio, relação entre o valor teórico e o experimental para a energia de 59,54 keV	38
TABELA 5 - Eficiência experimental do efeito de soma em cascata para a distância fonte-detector 7,5 cm	41
TABELA 6 - Eficiência experimental do efeito de soma em cascata para a distância fonte-detector 10 cm	41
TABELA 7 - Eficiência experimental do efeito de soma em cascata para a distância fonte-detector 15 cm	42
TABELA 8 - Relação entre as eficiências teóricas e experimental para a distância fonte-detector de 7,5 cm no efeito de soma em cascata, assim como a sua incerteza e as energias de interesse do ^{152}Eu	42
TABELA 9 - Relação entre as eficiências teóricas e experimental para a distância fonte-detector de 10 cm no efeito de soma em cascata, assim como a sua incerteza e as energias de interesse do ^{152}Eu	43
TABELA 10 - Relação entre as eficiências teóricas e experimental para a distância fonte-detector de 15 cm no efeito de soma em cascata, assim como a sua incerteza e as energias de interesse do ^{152}Eu	43
TABELA 11 - Eficiência teórica do ^{152}Eu	44
TABELA 12 - Atividade e identificação dos radionuclídeos do filtro 15, assim como suas energias e probabilidades de emissão (I_γ)	46

TABELA 13 - Tempos de meia-vida, a energia gama, a probabilidade de emissão, a reação de formação e a origem dos produtos de ativação	46

1. INTRODUÇÃO

1.1 Aspectos Gerais

O desenvolvimento tecnológico e científico na área nuclear, ocorrido desde o começo do século vinte, levou a uma grande variedade de aplicações em pesquisa, medicina, indústria e geração de energia por fissão nuclear. Em conjunto com certas atividades humanas, essa prática gera rejeitos radioativos que necessitam de um gerenciamento que garanta a proteção da saúde humana e do meio ambiente nos dias de hoje e no futuro, sem impor uma carga indevida às futuras gerações.

A Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA) define rejeito radioativo como (IAEA, 2003) “qualquer material que contenha ou tenha sido contaminado com radionuclídeos em concentrações ou níveis de atividade maiores que os limites de isenção estabelecidos pela autoridade competente”.

A Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) é o órgão no Brasil responsável pelo recebimento, tratamento e armazenamento de rejeitos radioativos e a Gerência de Rejeitos Radioativos (GRR) do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) é a responsável pela gerência de todos os rejeitos radioativos gerados na instituição, bem como daqueles provenientes de hospitais, indústrias, universidades ou outras entidades da região sul do Brasil e do Estado de São Paulo.

Dentre as várias etapas que compreendem a gerência dos rejeitos radioativos, a caracterização primária é a etapa em que são obtidas as informações físicas, químicas e radiológicas dos rejeitos podendo assim definir a forma adequada de tratamento de acordo com os critérios de aceitação para deposição final (CNEN, 2002).

O método de Monte Carlo pode ser utilizado na caracterização de rejeitos radioativos, pois permite simular o transporte de radiação no meio para sistemas complexos de uma forma simplificada utilizando-se números aleatórios

nas amostragens das funções de distribuição de probabilidade (NOVO *et al.*, 2011). O código utilizado neste trabalho para o cálculo do transporte da radiação, baseado no método de Monte Carlo é o *Monte Carlo N-Particle Transport* (MCNP) que possui bibliotecas de secção de choque para nêutrons, fótons e elétrons (BRIESMEISTER, 2000).

No IPEN localizado em São Paulo, opera o reator IEA-R1, que desenvolve pesquisas científicas e produz radioisótopos para utilização na medicina. O reator é do tipo piscina cuja água é desmineralizada por meio de um sistema de tratamento de limpeza (TADDEI, 2013a). O sistema de limpeza da água do reator possui seis cartuchos de filtros, dois leitos de resina mista de troca iônica e dois leitos de carvão ativado (TADDEI *et al.*, 2013b).

Os filtros são substituídos quando os mesmos apresentam baixa vazão, estes então se tornam rejeitos radioativos e são enviados para a GRR.

Esses materiais radioativos precisam ser gerenciados e na primeira etapa são identificados os radionuclídeos e suas atividades. A atividade de alguns dos radionuclídeos pode ser determinada utilizando-se espectrometria gama (TADDEI *et al.*, 2013b; TZIKA *et al.*, 2010).

A determinação da atividade da fonte radioativa faz parte da caracterização primária, para obter-se essa atividade por meio da espectrometria gama é necessário o conhecimento prévio da curva de eficiência para uma dada geometria, que pode ser obtido por meio da calibração em eficiência do detector (VARGAS *et al.*, 2002). Essa calibração em eficiência pode ser realizada utilizando-se fontes padrões com a mesma geometria, densidade e composição química da fonte a ser analisada. Nem sempre é possível satisfazer todas essas condições para a calibração, então com o auxílio do método de Monte Carlo é possível determinar a eficiência do detector para diversos tipos de geometria (VARGAS *et al.*, 2002, KAMBOJ *et al.*, 2003).

As técnicas mais comuns utilizadas para o cálculo da eficiência são a calibração utilizando fontes com atividade conhecida ou por simulação pelo método de Monte Carlo (MC) (ELANIQUE *et al.*, 2012; SIMA *et al.*, 2009).

A calibração do detector é efetuada com fontes padrões nas faixas de energia geralmente de 50 a 1500 keV. Essas fontes podem ser monoenergéticas ou com múltiplas radiações gama em cascata. As fontes com múltiplas radiações

gama em cascata como o ^{152}Eu e o ^{133}Ba apresentam a vantagem de possuírem um espectro de energia amplo e meia-vida mais longa (AGARWAL *et al.*, 2011a).

Devido ao fato das fontes de ^{152}Eu e ^{133}Ba emitirem radiação gama em forma de cascata pode ocorrer o efeito de soma em cascata, influenciando assim a eficiência de detecção. A correção do efeito de soma em cascata pode ser efetuada utilizando-se o método de Monte Carlo (AGARWAL *et al.*, 2011a).

O cristal de germânio representa o volume ativo de detecção do detector HPGe, que possui uma região denominada de camada morta ou camada inativa de germânio na qual a radiação gama não é detectada (HUY, 2010).

Na literatura tem sido reportada uma diferença entre os valores experimentais e teóricos na obtenção da eficiência de detecção. Esse fato é atribuído às informações fornecidas pelo fabricante, variações da temperatura da sala, incerteza em parâmetros físicos do detector como a camada morta, entre outros associados ao cristal de Ge (ELANIQUE *et al.*, 2012; AGARWAL *et al.*, 2011a; HUY, 2010).

Diversos estudos têm sido realizados para solucionar essa discrepância entre os resultados experimentais e teóricos, sendo os teóricos obtidos através de cálculos semi-empíricos ou simulações pelo método de Monte Carlo (ELANIQUE *et al.*, 2012). Na literatura consultada a camada morta é um parâmetro frequentemente associado a essa discrepância para o método de Monte Carlo associado à espectrometria gama com detectores HPGe. O aumento na espessura do cristal de germânio nessa camada acarreta no decréscimo da eficiência de detecção devido a atenuação da radiação gama e a diminuição do volume ativo (AGARWAL *et al.*, 2011a; HUY, 2011).

2. OBJETIVOS

O objetivo geral deste trabalho é desenvolver uma metodologia para a caracterização do filtro cunho do reator IEA-R1 utilizando o método de Monte Carlo.

Os objetivos específicos são:

- Determinar a camada morta do detector de HPGe para diminuir a discrepância entre os valores de eficiência teóricos obtidos pelo método de Monte Carlo e os experimentais;
- Estudo da influência do efeito de soma em cascata na determinação da eficiência de detecção e os efeitos nas análises do filtro cunho;
- Simulação pelo método de Monte Carlo de sistema composto pelo detector de HPGe e filtro cunho.

3. FUNDAMENTOS TEÓRICOS

A radiação gama é uma radiação eletromagnética ionizante, essa radiação pode ser emitida por meio do decaimento radioativo do núcleo, o núcleo decai por emissão de radiação alfa ou beta e para atingir o estado fundamental emite o excedente de energia em forma de radiação gama conforme indica a FIG.1 ou pela emissão de fótons pelo núcleo atômico excitado nas transições entre as camadas eletrônicas (TAUHATA *et al.*, 2003; KNOLL, 2002).

FIGURA 1 - Emissão da radiação gama pelo núcleo

3.1 Interação da Radiação Gama com a Matéria

A interação da radiação gama depende da probabilidade ou seção de choque de interação para cada tipo de evento que pode absorver ou espalhar a radiação incidente (TAUHATA *et al.*, 2003). Os principais processos de interação da radiação gama com a matéria são: o efeito fotoelétrico, o efeito Compton e a produção de pares. Nestas interações parte ou toda energia da radiação do fóton é absorvida pela matéria (KNOLL, 2002).

O efeito fotoelétrico (FIG.2) é um processo no qual toda a energia da radiação incidente é absorvida. A interação ocorre no átomo todo, ou seja, não ocorre com elétrons livres.

FIGURA 2 - Diagrama esquemático do efeito fotoelétrico, com um fóton interagindo com um elétron orbital da camada K de um átomo.
Fonte COSTA, 2010

No espalhamento Compton (FIG.3) apenas parte da energia da radiação incidente é absorvida, parte da energia do fóton se transforma num elétron de recuo e num fóton espalhado ambos defletidos por ângulos diferentes. Este espalhamento está relacionado com a densidade de elétrons no meio, esta densidade é praticamente constante para diferentes materiais, desse modo a probabilidade de interação por efeito Compton é praticamente independente do material absorvedor.

FIGURA 3 - Representação do efeito Compton

Para que ocorra o processo de produção de pares (FIG.4) a energia da radiação incidente deve exceder duas vezes a energia de repouso do elétron ($E_{\text{repouso}} = 0,511 \text{ MeV}$), este processo é originado da interação do fóton com o campo elétrico do núcleo do átomo (COSTA, 2010).

FIGURA 4 – Representação da produção de pares

Na FIG.5 apresenta-se a predominância dos três processos principais de interação da radiação gama com a matéria em função do número atômico (Z) do absorvedor e da energia do fóton incidente.

FIGURA 5 - Possibilidades de interações da radiação gama em função do número atômico (Z) do absorvedor e da energia do fóton incidente. Fonte KNOLL, 2002

Analisando-se a FIG.5 nota-se que: o efeito fotoelétrico é predominante para fótons de baixa energia (< 100 keV) e para os materiais absorvedores com número atômico alto; sendo o efeito Compton é praticamente predominante na região de 0,1 a 10 MeV e a produção de pares um processo predominante para energias altas (KNOLL, 2002).

A probabilidade de ocorrer as principais interações da radiação está relacionada ao coeficiente de atenuação linear (μ) definido na equação 1 (KNOLL, 2002).

$$\mu = \tau + \sigma + \kappa \quad (1)$$

Onde (τ) representa a probabilidade de ocorrer o efeito fotoelétrico, (κ) a probabilidade de ocorrer à produção de pares e (σ) é a probabilidade de ocorrer o efeito Compton.

A intensidade da energia dos fótons transmitidos (I) para um determinado material é dada pela equação 2 (KNOLL, 2002).

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\mu x} \quad (2)$$

Onde I_0 é a intensidade inicial do fóton incidente e x é a espessura do material.

3.2 Espectrometria Gama

A espectrometria gama permite determinar o número de fótons emitidos por uma determinada fonte radioativa. Existem dois tipos de medidas: absolutas e as relativas. Nas medidas absolutas é determinado o número exato de partículas emitidas, já nas relativas apenas uma parte das partículas emitidas é determinada (TSOULFANIDIS, 1995).

A partir da atividade da fonte radioativa é possível obter-se o número exato de partículas emitidas por segundo da fonte conhecendo-se seu esquema de decaimento.

Diversos fatores podem influenciar as análises radiativas como: tamanho e formato da fonte e do detector, distância fonte-detector, eficiência intrínseca do detector, a absorção do material constituinte da fonte e do suporte e o ângulo sólido (TSOULFANIDIS, 1995).

Na FIG.6 exemplifica-se um sistema de detecção formado por uma fonte radioativa isotrópica, um detector e um sistema de contagem de pulsos.

FIGURA 6 - Diagrama com a fonte isotrópica, detector e um sistema de contagem de pulsos. Fonte TSOULFANIDIS, 1995

A fonte isotrópica emite radiação em todas as direções (FIG.6), embora apenas parte dessa energia seja absorvida pelo detector.

O exemplo de um espectro gama obtido por meio do analisador multicanal (MCA) está indicado na FIG.7, este relaciona as contagens dos fótons (C) que foram registrados no detector em função dos canais. Estes canais estão relacionados aos canais de energia do detector.

FIGURA 7 - Espectro gama exemplificado obtido por um analisador multicanal relacionando a contagem (C) em função dos canais

Na FIG.8 está representada a calibração em energia, esta calibração relaciona a energia do fóton em função do canal.

FIGURA 8 - Calibração em energia do detector EPGC-15-190-R

3.2.1 Ângulo Sólido

O ângulo sólido (Ω) é definido pela relação entre o número de partículas emitidas por segundo dentro do espaço definido pelo contorno da fonte e pela abertura do detector (N_p), com o número total de partículas por segundo provenientes da fonte (N_T), expresso na equação 3 (TSOULFANIDIS, 1995).

$$\Omega = \frac{N_p}{N_T} \quad (3)$$

O ângulo sólido está diretamente relacionado com a distância fonte-detector. O cálculo do ângulo sólido para uma fonte puntiforme a uma distância d de um detector de formato cilíndrico de raio a está representado na equação 4 (KNOLL, 2002).

$$\Omega = 2\pi \left(1 - \frac{d}{\sqrt{d^2 + a^2}} \right) \quad (4)$$

3.2.2 Resolução em Energia

A resolução em energia $R(E_0)$ é caracterizada pela distribuição de largura de pulso a meia altura (FWHM) (FIG.9), em função de uma determinada energia (E_0) e pode ser um indicador de qualidade de detecção, pois indica a habilidade do detector de identificar partículas de energias diferentes (TSOULFANIDIS, 1995).

FIGURA 9 – Representação da FWHM no espectro

O cálculo da resolução em energia é dado pela equação 5 (TSOULFANIDIS, 1995).

$$R(E_0) = \frac{FWHM}{E_0} \quad (5)$$

Na FIG.10 está representado o gráfico da diferencial de número de pulsos pela diferença de altura de pulso (dN/dH) em função da altura de pulso (H), nesta figura está indicada a resolução em energia do detector em função da distribuição de energia da radiação incidente exemplificando-se as características da resolução boa e a resolução pobre.

FIGURA 10 - Resoluções em energia do detector. Fonte KNOLL, 2002

3.2.3 Detectores Semicondutores

A espectrometria gama pode ser realizada utilizando-se detectores semicondutores, sendo o cristal de germânio o material mais comum neste tipo de detector devido ao fato do germânio possuir um número atômico elevado. Este cristal de germânio possui uma pureza muito alta e deve ser operado em baixas temperaturas (GILMORE, 1995).

O detector semicondutor apresenta finas camadas de material semicondutor que possuem uma concentração elevada de impureza. As camadas n^+ e p^+ indicam respectivamente superfícies densamente povoadas com impurezas do tipo n e do tipo p (KNOLL, 2010).

O volume ativo do detector de germânio é definido pela região entre os contatos n^+ e p^+ . Nessa região existe uma espessura considerável que pode agir como uma camada morta. Para a radiação gama com energias menores que 200 keV a atenuação da radiação gama pela camada morta é relevante (KNOLL, 2010).

A janela do detector semicondutor pode ser composta de alumínio (1,5 mm) ou Be (0,5 mm). A espessura da camada morta do detector pode ter aproximadamente 700 μm (contato n^+) ou 0,3 μm (contato p^+) (GILMORE, 1995).

3.2.4 Eficiência

A eficiência de detecção gama depende de alguns fatores (TSOULFANIDIS, 1995):

- Tamanho do detector: quanto maior o detector maior a eficiência e a contribuição da radiação de fundo;
- Material e densidade do detector: a probabilidade de interação por unidade de distância é proporcional à densidade do material;
- Energia emitida.

A eficiência pode ser afetada pelo tempo morto, que é definido como o tempo mínimo para a separação de contagem no sistema de detecção. Devido ao fato da natureza aleatória do decaimento radioativo da fonte existe a probabilidade de que um evento verdadeiro seja perdido (KNOLL, 2002).

A eficiência pode ser abordada em duas categorias: eficiência total do detector e a eficiência de pico de energia total. Essas eficiências podem ter variáveis intrínsecas, absolutas ou relativas (GILMORE, 1995).

A eficiência total do detector pode ser do tipo (TSOULFANIDIS, 1995):

- Eficiência intrínseca total do detector: é a probabilidade de que um fóton de uma dada energia, atinja o detector e seja registrado;
- Eficiência absoluta total do detector: é a probabilidade de que um fóton emitido por uma fonte específica seja registrado no detector.

Já a eficiência relativa toma como referência, a eficiência absoluta de pico de energia total de um detector cintilador padrão de iodeto de sódio dopado com tálio (NaI(Tl)) (TSOULFANIDIS, 1995).

A eficiência total de pico (ε_{pt}) leva em conta a área do pico do espectro relacionando as energias dos fótons que foram emitidos pela fonte e a geometria do arranjo fonte-detector (GILMORE, 1995). Essa eficiência é dada pela multiplicação da eficiência total do detector (ε_{td}) pela relação entre as contagens no pico de energia total (C_{pt}) pela contagem total no espectro (C_e) indica na equação 6 (TSOULFANIDIS, 1995).

$$\varepsilon_{pt} = \frac{\varepsilon_{td} \times C_{pt}}{C_e} \quad (6)$$

A eficiência intrínseca relaciona o numero de fótons incidentes com aqueles registrados no detector (GILMORE, 1995). A eficiência intrínseca (ε_{int}) é definida pela relação entre o número de partículas gama registrada no detector (N_d) e o número de partículas incidentes no detector (N_i) representada na equação 7 (KNOLL, 2002).

$$\varepsilon_{int} = \frac{N_d}{N_i} \quad (7)$$

A eficiência intrínseca pode ser obtida por método simples e preciso, no qual uma fonte calibrada é utilizada, a partir da equação 8 na qual S representa as partículas emitidas por segundo pela fonte, r a taxa de contagem por segundo líquida, o ângulo sólido (Ω) e F(E) é o fator de combinação de todos os fatores que podem ser aplicados aos resultados (TSOULFANIDIS, 1995).

$$\varepsilon_{int}(E) = \frac{r}{\Omega \times F(E) \times S} \quad (8)$$

A curva de calibração em eficiência está indicada na FIG.11, esta curva relaciona a eficiência total de pico com a energia do fóton.

FIGURA 11 – Curva de calibração em eficiência do detector EPGC-15-190-R

3.2.5 Efeito de Soma em Cascata

Na análise dos picos obtidos no espectro gama, é possível observar a influência do efeito de soma em cascata para fontes radioativas com decaimentos complexos e para as distâncias próximas ao detector. (GILMORE, 1995).

O efeito de soma em cascata pode ocorrer de duas formas, na primeira fótons adicionais são detectados no mesmo fotopico e na segunda forma apenas parte dos fótons é absorvida no fotopico. Essa situação é comum no decaimento de isótopos com emissão de múltiplos raios gamas conforme ilustra a FIG.12 (KNOLL, 2002).

FIGURA 12 – Decaimento de isótopos com emissão de múltiplos raios gama

Neste efeito, nos picos detectados pode haver um aumento na área de fotopico ou se apenas parte desses fótons é absorvido ocorre uma diminuição na área do fotopico (TOMARCHIO *et al.*, 2011; BRITTON *et al.*, 2014).

A probabilidade do efeito de soma em cascata aumenta: com a eficiência de detecção, cristais com volumes maiores ou para as distâncias fonte-detector menores (TAKEDA, 2001).

Este efeito não tem dependência com a atividade da fonte radioativa, pode ocorrer mesmo para baixíssimas taxas de contagens. Para obter-se uma boa exatidão na atividade, este efeito deve ser levado em consideração (TAKEDA, 2001).

Para a correção do efeito de soma em cascata é necessário o conhecimento das eficiências de detecção, tanto para o pico de absorção total como para o espectro integral, referentes a cada uma das energias gama que sejam detectadas em cascata (TAKEDA, 2001).

3.3 Monte Carlo

O método de Monte Carlo foi desenvolvido durante a segunda guerra mundial e sua invenção é atribuída a Fermi, Von Neuman entre outros. Este método descreve um processo no qual o transporte de partículas é feito simulando cada partícula individualmente e registrando o seu comportamento médio desde a sua criação até a sua eliminação seja por absorção ou escape. O sistema físico é determinado utilizando-se o teorema do limite central das partículas simuladas. O método de Monte Carlo fornece informações do cálculo especificado pelo usuário, é altamente indicado para resolver problemas de geometrias complexas e é utilizado em processos estatísticos como a interação de partículas nucleares com a matéria (BRIESMEISTER, 2000).

O laboratório nacional de Los Alamos, que pertence a Departamento de Energia dos Estados Unidos (DOE), desenvolveu um código para a análise do transporte de nêutrons e radiação gama pelo método de Monte Carlo. A sigla MCNP indica o transporte de partículas neutras pelo método de Monte Carlo. (SHULTIS *et al.* 2010).

O código MCNP pode contempla o transporte de nêutrons, radiação gama, elétrons de fonte primária e secundária resultantes das interações da radiação gama, transporte de radiação gama secundária resultante da interação com nêutrons (SHULTIS *et al.*, 2010).

No MCNP podem ser utilizados vários modos de transporte de partículas como: somente nêutron (n), somente fóton (p); somente elétron (e); para os nêutrons e os prótons (n,p) (BRIESMEISTER, 2000).

O arquivo de entrada utilizado na simulação pelo método de Monte Carlo deve conter três blocos de informação: células, superfície e dados. O bloco das células contém: o material simulado, a densidade do material, superfícies. No bloco das células o material é especificado pelo bloco de dados do material no qual a composição química do mesmo é descrita (SHULTIS *et al.*, 2010).

O bloco da superfície permite descrever geometrias de diversos formatos como: planos, esferas, cones e cilindros (SHULTIS *et al.*, 2010).

No bloco dos dados estão as seguintes informações: tipo de partícula que se deseja medir, especificação da fonte, materiais utilizados, tipo de cálculo e número de histórias. (SHULTIS *et al.*, 2010).

O tipo de cálculo no bloco dos dados é indicado na forma de cartões ou tally, como por exemplo, o tally F8 que permite o cálculo da distribuição de pulsos em uma determinada célula, tendo a sua energia dada em MeV e este tipo de tally pode ser usado no modo p ou p,e. O tally F8 é análogo à física do detector, sendo os bins de energia definidos na simulação comparáveis com a energia depositada no detector num canal específico para cada partícula física (BRIESMEISTER, 2000).

O número de histórias (nps) limita como o MCNP vai rodar estabelecendo um numero máximo de histórias, este parâmetro esta associado à estatística dos resultados obtidos. Para identificar se há um número suficiente de histórias o parâmetro slope é analisado, caso seja zero indica que há pouquíssimas histórias, sendo que o número ideal de histórias é atingido quando o slope é igual a 10 (SHULTIS *et al.*, 2010).

Os dados obtidos no MCNP possuem um erro relativo baixo, porém com pouca acurácia. A estatística do método de Monte Carlo utiliza a técnica na qual o erro relativo deve ter seu valor menor que 5 % para ser considerado significativo e aceitável (SHULTIS *et al.*, 2010).

A figura de mérito (FOM) indica um parâmetro no qual relaciona o tempo que o programa roda e o erro relativo. Este é aceitável quando apresenta um valor aproximadamente constante (SHULTIS *et al.*, 2010).

O método de Monte Carlo simula no computador a emissão e detecção das partículas, que é modelado baseado na geometria fonte-detector utilizando-se a posição da partícula e a sua direção para o cálculo do ângulo sólido (TSOULFANIDIS, 1995).

Para obtermos um espectro teórico mais próximo do experimental basta usar o tally especial no qual se descreve na forma FTn onde n indica o número que mostra o tipo de cálculo que se deseja obter e em seguida basta usar o ajuste gaussiano da energia (GEB - Gaussian Energy Broadening).

O cálculo do GEB relaciona a altura do pulso à meia altura com a energia e é representado pela equação 9 (BRIESMEISTER, 2000).

$$FWHM = a + b\sqrt{E + cE^2} \quad (9)$$

Os parâmetros a , b têm suas unidades em MeV e c em $\text{MeV}^{1/2}$. Esses parâmetros dependem da calibração da FWHM em função da energia do detector que está sendo simulado.

3.4 Gerência de Rejeitos Radioativos

Os rejeitos radioativos são materiais radioativos para os quais não se prevê nenhuma utilização presente ou futura. Estes são provenientes de vários processos, como por exemplo, os materiais contaminados na operação de centrais nucleares; para-raios radioativos fora de uso; fontes de radioterapia exauridas; materiais contaminados em atividades com fontes radioativas abertas; materiais radioativos utilizados para pesquisa e não reutilizáveis; materiais produzidos na indústria de combustíveis nucleares, desde a mineração à produção do elemento combustível (IAEA, 2013).

A gerência de rejeitos radioativos é o conjunto de atividades operacionais e administrativas para o controle dos rejeitos radioativos, visando a proteção da saúde do homem e do meio ambiente, no presente e no futuro de modo a não impor ônus indevidos às gerações futuras. Conforme ilustra o fluxograma da FIG.13 (HIROMOTO *et al.*, 1999).

FIGURA 13 - Fluxograma das etapas de gerência de rejeitos radioativos

A gerência de rejeitos radioativos possui alguns requisitos básicos, nesta etapa tanto o volume quanto a atividade do rejeito devem ser minimizados e esses materiais devem ser segregados de quaisquer outros materiais que são utilizados na instalação (IAEA, 2013).

No processo de segregação deve-se levar em conta o estado físico, a meia-vida do radionuclídeo, se o rejeito gerado é compactável, se é orgânico ou inorgânico, riscos biológicos entre outras características (IAEA, 2013).

Conforme ilustra a FIG.13 a gerência de rejeitos radioativos tem início na geração do rejeito, que deve ser segregado. Este pode ser gerenciado no próprio centro gerador ou enviado para centros de gerência de rejeitos radioativos autorizados pela CNEN.

Após o rejeito ser segregado, este é caracterizado, sendo a caracterização primária a etapa na qual são obtidas as informações físicas, químicas e radiológicas dos rejeitos podendo assim definir a forma adequada de tratamento de acordo com os critérios de aceitação para deposição final (CNEN, 2002).

Na TAB.1 estão representadas as principais propriedades física, química e radiológica para os rejeitos sólido, líquido e gasoso.

TABELA 1 - Principais propriedades física, química e radiológica para os rejeitos sólido, líquido e gasoso

Propriedades	Rejeito Sólido	Rejeito Líquido	Rejeito Gasoso
Física	Forma física Volume	Densidade Viscosidade Condutividade Tensão superficial	Pressão Temperatura Densidade Teor de umidade
Química	Presença: Produtos tóxicos Explosivos Pirofóricos Geradores de gases Materiais biológicos.	Composição química Interferentes pH	Composição química Vapor de água Vapores orgânicos
Radiológica	Radionuclídeos Atividade	Radionuclídeos Atividade	Radionuclídeo Elevada radiotoxicidade.

Fonte - HIROMOTO *et al.*, 1999.

A composição radioisotópica dos rejeitos radioativos é uma informação essencial para sua gestão segura. A finalidade dessa caracterização radiológica dos rejeitos é subsidiar, com informações, os processos de tratamento e as avaliações de segurança, em longo prazo, dos rejeitos nos depósitos finais.

Diversos métodos são empregados para se determinar a composição radioisotópica dos rejeitos. Em primeiro lugar, as análises radioquímicas de amostras retiradas de cada rejeito que, embora forneçam os resultados mais exatos e precisos, são extremamente complexas e custosas (BICKEL *et al.*, 2000). Em segundo lugar, os cálculos baseados em modelos teóricos e semi-empíricos, os fatores de escala (IAEA, 2009b; TOMA *et al.*, 2007), que fornecem resultados com exatidão aceitáveis, a um custo acessível, mas que requerem que se conheça previamente a atividade de alguns radioisótopos chave presentes. Em terceiro, estimativas baseadas na taxa de dose de fótons emitidos pelos rejeitos, desde que se conheçam os fatores de escala. Esse último é o que fornece os resultados menos exatos, mas é, por outro lado, o que permite determinações mais simples e rápidas e que pode ser empregado na rotina da gestão dos rejeitos radioativos, principalmente como método de verificação e controle final. Em última análise, os três métodos se complementam.

Após a caracterização primária é feito o tratamento do rejeito radioativo, nesta etapa ocorre à redução do volume, o condicionamento físico e químico. Em seguida o rejeito pode ser disperso ou imobilizado de acordo com os critérios de isenção da CNEN. Quando o rejeito é imobilizado, o produto final é caracterizado e armazenado num depósito.

Existem três tipos de depósitos para os rejeitos radioativos (IAEA, 2013):

- Depósito inicial: cujo responsável é o gerador;
- Depósito intermediário: cujo responsável é a CNEN, neste depósito os rejeitos ficam armazenados até a sua destinação final;
- Depósito final: cujo responsável é a CNEN, neste depósito ocorre a deposição definitiva.

A CNEN revogou a norma 6.05 que descrevia a gerência de rejeitos radioativos nas instalações, esta foi substituída pela norma 8.01 que aborda a gerência de rejeitos radioativos de baixo e médio níveis de radiação (CNEN, 2014).

Na norma 8.01 da CNEN é apresentada a classificação dos rejeitos radioativos em diversas classes, os limites de dispensa estão especificados na norma (CNEN, 2014):

- Classe 0: Rejeitos Isentos (RI); nesta classe estão os rejeitos que possuem o valor de atividade, em massa ou volume, inferiores aos respectivos níveis de dispensas que são apresentados na norma;
- Classe 1: Rejeitos de Meia-Vida Muito Curta (RVMC); os rejeitos desta classe possuem a meia-vida inferior ou da ordem de 100 dias, apresentam o valor de atividade superior aos níveis de dispensa;
- Classe 2: Rejeitos de Baixos e Médios Níveis de Radiação (RBMN); nesta classe estão os rejeitos com meia-vida superior aos da classe 1, esta classe possui algumas subdivisões:
  - Classe 2.1: Meia-Vida Curta (RBMN-VC); nesta classe estão os rejeitos de baixo e médio níveis de radiação que contêm emissores do tipo beta ou gama, com meia-vida inferior ou da ordem de 30 anos. Inclui a concentração de radionuclídeos emissores alfa de meia-vida longa, estes são limitados em 3700 kBq/kg em volumes individuais e com um valor médio de 370 kBq/kg para o conjunto de volumes;
  - Classe 2.2: Rejeitos Contendo Radionuclídeos Naturais (RBMN-RN); esta classe inclui os rejeitos de extração e exploração de petróleo que contêm os radionuclídeos das séries do urânio e tório nas concentrações de atividade ou atividades acima dos níveis de dispensa estabelecidos;
  - Classe 2.3: Rejeitos contendo Radionuclídeos Naturais (RBMN-RN); esta classe possui os rejeitos que contêm as matérias primas minerais, naturais ou industrializadas, como os radionuclídeos das séries do urânio e do tório em concentrações de atividade ou atividades acima dos níveis de dispensa estabelecidos;

- Classe 2.4: Rejeitos de Meia-Vida Longa (RBMN-VL): os rejeitos que não foram enquadrados nas Classes 2.2 e 2.3 e nas concentrações de radionuclídeos de meia-vida longa que excedem as limitações para a classificação de rejeitos de meia-vida curta.
- Classe 3: Rejeitos de Alto Nível de Radiação (RAN): esta classe inclui rejeitos de potência térmica superior a 2kW/m^3 e cujas concentrações de radionuclídeos de meia-vida longa excedam as limitações para classificação como rejeitos de meia-vida curta.

3.5 Reator IEA-R1

O reator IEA-R1 é o primeiro reator de pesquisa brasileiro e foi instalado no antigo Instituto de Energia Atômica (IEA) conhecido hoje como IPEN, teve sua criticidade inicial no dia 16 de setembro de 1957 (TERREMOTO, 2004).

O reator tem sido utilizado na produção de radioisótopos, na análise de materiais por ativação, em experimentos científicos e no treinamento de pessoal (TERREMOTO, 2004).

O IEA-R1 é do tipo piscina aberta, utiliza o combustível do tipo MTR (*Materials Testing Reactor*), heterogêneo e o combustível nuclear é formado por placas agrupadas em elementos combustíveis revestidos de alumínio (TERREMOTO, 2004).

O material do combustível é feito de U_3O_8 ou U_3Si_2 dispersos numa matriz de alumínio, sendo o grau de enriquecimento em ^{235}U tendo no máximo 93% ou no mínimo 20% (TERREMOTO, 2004).

O cerne do reator possui refletores compostos de blocos de grafite revestidos com alumínio ou blocos de berílio. As barras de controle do reator são constituídas por uma liga de Ag - In - Cd na proporção de 80% - 15% - 5% respectivamente, revestida por uma fina camada de Ni (TERREMOTO, 2004).

A água da piscina do reator é desmineralizada, esta possui as seguintes funções: moderar e refletir os nêutrons, refrigerante para o cerne do reator e blindagem biológica para os operadores (TERREMOTO, 2004).

O sistema de desmineralização da água da unidade de retratamento possui a finalidade de manter a qualidade da água da piscina do reator IEA-R1

dentro dos limites especificados, de maneira que a concentração de impurezas permaneça em torno de 2 ppm de substâncias solúveis.

O fluxograma da FIG.14 representa os sistemas de tratamento e retratamento da água do reator nuclear IEA-R1.

FIGURA 14 – Fluxograma do sistema de tratamento e retratamento da água do reator nuclear IEA-R1. Fonte TADDEI *et al.*, 2013a

No fluxograma da FIG.14 observam-se dois sistemas de tratamento da água. No sistema de tratamento o circuito não é radioativo e este é responsável pelo abastecimento da piscina quando o nível estiver abaixo do limite. Recebe água proveniente da rede de abastecimento da Cidade Universitária (GERALDO, 2012).

O sistema de retratamento é um circuito radioativo constituído por duas unidades, com capacidade, cada uma, de retratar 75 L.min^{-1} . Este sistema é constituído sequencialmente por filtros cunus, dois leitos de carvão ativado e dois leitos de resinas mistas de troca iônica. O filtro cuno retém as partículas sólidas em suspensão com dimensões maiores que $25 \mu\text{m}$ (GERALDO, 2012).

Nos sistemas de tratamento da água quando a condutividade elétrica estiver fora dos limites especificados, é feita a regeneração. Porém se isso não for mais possível, efetua-se a substituição dos filtros cunus, dos leitos de resina de troca iônica e dos leitos de carvão ativado. A resina, o carvão e os filtros saturados tornam-se, então, rejeitos radioativos (GERALDO, 2012).

As trocas dos filtros cunus têm sido feitas de acordo com a sua baixa vazão. Essas trocas dependem de diversos fatores como obras no reator e o funcionamento do reator. A troca mais recente foi efetuada no dia 16 de dezembro de 2013.

Esses rejeitos oriundos do reator IEA-R1 são encaminhados à GRR. Desde 1983 a GRR tem tratado os filtros cunus por meio da compactação por se tratar de um rejeito sólido compactável.

4. REVISÃO DA LITERATURA

4.1 Espectrometria Gama e o Método de Monte Carlo

A espectrometria gama com detectores de germânio é uma técnica não destrutiva (VARGAS *et al.*, 2002). Essa técnica tem sido aplicada na determinação da concentração de atividade de alguns dos radionuclídeos (VARGAS *et al.*, 2002, TZIKA *et al.*, 2010, TADDEI *et al.*, 2013b).

Apesar da atividade da fonte radioativa para cada radionuclídeo ser sempre a mesma, na espectrometria gama a curva de calibração em eficiência varia com a eficiência do pico de energia para uma dada geometria, que pode ser obtido por meio da calibração em eficiência (VARGAS *et al.*, 2002), a calibração pode ser obtida com o auxílio do método de Monte Carlo para diversos tipos de geometria (VARGAS *et al.*, 2002, KAMBOJ *et al.*, 2003).

O método de Monte Carlo simula procedimentos de calibração em eficiência do detector utilizando-se as dimensões do detector e da fonte. As dimensões do detector influenciam na precisão dos valores de eficiência teórica que podem estar associados à exatidão dos parâmetros geométricos fornecidos (VARGAS *et al.*, 2002).

Na espectrometria gama geralmente são utilizadas as fontes de ^{152}Eu e ^{133}Ba para a calibração do detector. Essas fontes emitem radiação gama em forma de cascata e quando próximas ao detector provocam o efeito de soma em cascata. Este efeito acarreta no aumento da incerteza da eficiência de detecção (ARGAWAL *et al.*, 2011a).

Para a correção do efeito de soma em cascata, diversas técnicas têm sido reportadas utilizando-se o método de Monte Carlo. Técnicas que permitem o cálculo de fatores de correção do efeito de soma em cascata e a comparação entre espectros teóricos e experimentais (BRITTON *et al.*, 2014, ARGAWAL *et al.*, 2011b, RÓDENAS *et al.*, 2007).

Na literatura tem sido reportada uma discrepância entre os valores de eficiência experimentais e teóricos, sendo esses valores para as eficiências obtidas utilizando-se o método de Monte Carlo tipicamente 10-20% maiores que as experimentais (BOSON *et al.*, 2008). Esse fato é atribuído às informações fornecidas pelo fabricante, variações da temperatura da sala, incerteza em parâmetros físicos do detector como a camada morta, entre outros associados ao cristal de Ge (ELANIQUE, 2012, ARGAWAL *et al.*, 2011a, BONSON *et al.*, 2008).

Para diminuir essa discrepância algumas técnicas têm sido reportadas, como por exemplo, cálculos semi-empíricos ou simulações pelo método de Monte Carlo (ELANIQUE, 2012). Nestes trabalhos a camada morta é um parâmetro importante, pois o aumento na espessura dessa camada acarreta no decréscimo da eficiência de detecção tanto devido à atenuação dos raios gama quanto à diminuição do volume ativo (ARGAWAL *et al.*, 2011a).

5. MATERIAIS E MÉTODOS

Neste trabalho foram utilizados dois métodos: análise por espectrometria gama e simulação pelo método de Monte Carlo utilizando o código MCNP-4C.

A espectrometria gama foi utilizada na determinação da camada morta, na medição da atividade estimada do filtro cunho e no estudo do efeito de soma em cascata.

O método de Monte Carlo foi utilizado para a calibração do detector em eficiência, para a determinação da camada morta do cristal de germânio e para o estudo do efeito de soma em cascata.

5.1 Materiais

5.1.1 Detector

Neste trabalho foi utilizado o detector de germânio hiperpuro EGPC-15-190-R fabricado pela *Eurisys*.

O detector EGPC-15-190-R é coaxial do tipo-P com eficiência intrínseca de 15%, utiliza um sistema de aquisição de dados gerenciado pelo *software* Genie 2000 (CANBERRA, 2001). A eletrônica associada consiste de um módulo Multiport II marca Canberra e os ajustes são feitos por *software*. O detector está acoplado ao colimador de chumbo e posicionado sobre um carrinho com rodas conforme ilustra a FIG.15.

FIGURA 15 - Detector EGPC-15-190-R

5.1.2 Fontes Radioativas

Neste trabalho foram utilizadas duas fontes radioativas puntiformes com certificados de calibração fornecidos pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD – RJ): ^{241}Am (Nº C/104/A10) e ^{152}Eu (Nº C/108/A10).

A fonte padrão de ^{241}Am possui valor de atividade igual a $48,8 \pm 0,6$ kBq, esta fonte foi utilizada na determinação da camada morta do cristal de germânio do detector EPGC-15-190-R.

A fonte de ^{152}Eu com atividade de $8,5 \pm 0,1$ kBq, foi utilizada para o estudo do efeito de soma em cascata no detector EGPC-15-190-R.

5.1.3 Geometria dos Materiais Simulados

Foram simulados os seguintes materiais: o filtro cuno, as duas fontes radioativas, o detector EPGC-15-190-R e o colimador.

O material do filtro cuno é o polipropileno, com porosidade de $10\ \mu\text{m}$, densidade de $0,95\ \text{g.cm}^{-3}$ e formato cilíndrico, cujas dimensões estão indicadas na FIG.16.

FIGURA 16 - Filtro cuno do reator IEA-R1

Na FIG.17 estão representadas respectivamente as geometrias das fontes radioativas de ^{241}Am e a de ^{152}Eu .

FIGURA 17 – Geometria simulada das fontes de ^{152}Eu e ^{241}Am

As dimensões simuladas do detector EPGC-15-190-R estão indicadas na FIG.18.

FIGURA 18 – Dimensões simuladas do detector EPGC-15-190-R

5.2 Métodos

A simulação pelo método de Monte Carlo foi efetuada utilizando-se o tally F8 e o tally especial *Gaussian Energy Broadening* (GEB), que permitiu o ajuste dos picos conforme uma gaussiana. Os valores dos parâmetros do GEB foram obtidos a partir das informações de calibração em energia do detector, relacionando a largura de pulso à meia altura (FWHM) em função da energia dada pela equação 9 (BRIESMEISTER, 2000).

Os parâmetros a, b e c para o detector EPGC-15-190-R a partir da calibração da FWHM são dados em função da energia em keV na equação 10.

$$FWHM = 2,73 - 8,81 \times 10^{-3} E^{1/2} \quad (10)$$

A partir da equação 10 foi possível definir os parâmetros dados em MeV que são: $a = 2,73 \times 10^{-03}$, $b = - 8,81 \times 10^{-06}$ e $c = 0$.

5.2.1 Determinação da Camada Morta do Detector EPGC-15-190-R

Para determinar a camada morta do cristal de germânio os valores experimentais obtidos por meio da espectrometria gama foram comparados com os teóricos.

Os diagramas experimentais para os arranjos frontal e lateral estão representadas respectivamente nas FIG.19 e 20. Nos arranjos experimentais foi utilizada a fonte de ^{241}Am posicionada a uma distância fonte-detector fixa de 10 cm com o auxílio de um suporte de PVC indicado nas FIG.21 e 22.

FIGURA 19 - Diagrama do arranjo frontal

FIGURA 20 - Diagrama do arranjo lateral

FIGURA 21 - Suporte de PVC visão lateral

FIGURA 22 - Suporte de PVC visão superior

A literatura consultada sugere variar a espessura da camada morta entre os valores 0 e 7,5 μm (ELANIQUE, 2012). Os valores de raio do cristal de HPGe foram variados de modo a simular regiões da camada morta. Na FIG.23 está indicada a região da camada morta do cristal de germânio.

FIGURA 23 – Região da camada morta no cristal de germânio

5.2.2 Calibração em Eficiência do Detector EGPC-15-190-R

A calibração em eficiência foi efetuada utilizando-se o método de Monte Carlo devido à dificuldade de se obter uma fonte padrão com a mesma geometria do filtro cunco.

A simulação pelo método de Monte Carlo foi realizada com a distância fonte-detector de 55 cm, a geometria simulada da fonte foi a mesma do filtro cunco, e foi simulado como se estivesse preenchido como radionuclídeo ^{152}Eu .

Na simulação foram utilizados o tally F8 e o número de histórias de 10^9 . O tally F8 efetuou o cálculo da distribuição da altura de pulso, no modo p que indica o transporte de fótons (SHULTIS *et al.*, 2010). As energias de interesse simuladas foram: 122, 245, 344, 779, 964, 1086, 1112 e 1408 keV. Para essas energias de interesse deve se levar em conta as proporções de cada uma que estão relacionadas com as probabilidades de emissão de energia de modo que a soma de todas as proporções deve ser igual a um.

Os valores teóricos da eficiência obtidos na simulação foram inseridos no *software* Genie 2000 com a finalidade de obter-se a calibração em eficiência para a geometria do filtro cunco (CANBERRA, 2001).

Na FIG.24 está representado o arranjo experimental do sistema de calibração em eficiência do filtro cuno simulado pelo MCNP visto lateralmente.

FIGURA 24 - Arranjo experimental do sistema de calibração em eficiência do filtro cuno simulado pelo MCNP

5.2.3 Caracterização do Filtro Cuno

O filtro cuno utilizado neste trabalho foi o identificado pelo número 15, que está armazenado no galpão de rejeitos não tratados (G3) da GRR.

A caracterização primária do filtro cuno foi efetuada por meio da identificação dos radionuclídeos e seus respectivos valores estimados de atividade utilizando-se a calibração em eficiência obtida pelo método de Monte Carlo.

O arranjo experimental utilizado consiste no filtro cuno posicionado a uma distância fonte-detector de 55 cm, esta análise foi realizada com o colimador de chumbo.

A identificação dos radionuclídeos foi feita utilizando-se o *Laboratoire National Henri Becquerel* (LNHB), o banco de dados do *National Nuclear Data Center* (NNDC) e o *software* de análise Genie 2000 o qual forneceu as energias

dos fotopicos. Por meio destes dados foram identificados os radionuclídeos presentes no filtro cunho.

A partir dos valores das energias dos radionuclídeos identificados e utilizando-se a curva de calibração em eficiência obtida pelo método de Monte Carlo, a atividade de cada pico de energia foi determinada utilizando-se a equação 11.

$$A = \frac{A_p}{I_\gamma \cdot \varepsilon_{mcnp} \cdot T} \quad (11)$$

Onde A é a atividade dada em Bq, A_p representa a contagem da área líquida do pico, I_γ a probabilidade de emissão do raio gama, ε_{MCNP} é a eficiência teórica e T é o tempo de contagem.

A área do pico deve ser corrigida, subtraindo-se a radiação de fundo da sala efetuando-se as devidas correções do tempo de contagem. Essas correções são efetuadas pelo *software* Genie 2000.

5.2.4 Efeito de Soma em Cascata e Fatores de Correção

O efeito de soma em cascata foi estudado por meio da comparação entre os resultados teóricos simulados pelo método de Monte Carlo e as análises por espectrometria gama.

A fonte puntiforme de ^{152}Eu foi fixada no suporte de PVC (FIG.22), o suporte foi posicionado a diferentes distâncias do detector EGPC-15-190-R utilizando-se o arranjo experimental da FIG.19.

As simulações foram realizadas levando-se em conta o volume ativo real do cristal de germânio e as diferentes distâncias fonte-detector.

A partir da comparação entre a eficiência teórica obtida pelo método de Monte Carlo (ε_{MCNP}) e a eficiência experimental (ε_{exp}) é possível verificar a influência do efeito de soma em cascata no espectro e determinar o fator de correção (κ_{TCS}) por meio da equação 12 (ARGAWAL, 2011b).

$$\kappa_{TCS} = \frac{\varepsilon_{MCNP}}{\varepsilon_{exp}} \quad (12)$$

6. RESULTADOS E DISCUSSÃO

6.1 Camada Morta EGPC-15-190-R

As FIG.25 e 26 indicam respectivamente os espectros experimentais obtidos nas medições frontal e lateral.

FIGURA 25 -Espectro experimental da medição frontal da camada morta do detector EGPC-15-190-R para fonte de ^{241}Am

FIGURA 26 -Espectro experimental da medição lateral da camada morta do detector EGPC-15-190-R para fonte de ^{241}Am

Na simulação pelo método de MC, foram utilizados o cartão F8, modo p, com um número de histórias de modo que o erro relativo na eficiência fosse menor que 5%. A energia utilizada na simulação para a fonte de ^{241}Am foi de 59,54 keV.

As análises por espectrometria gama foram efetuadas utilizando-se o tempo de contagem 600 segundos. A eficiência experimental foi obtida utilizando-se o *software* GENIE 2000, por meio do certificado de calibração da fonte puntiforme de ^{241}Am .

A TAB.2 indica os valores das eficiências experimentais (ϵ_{exp}) e suas respectivas incertezas para o arranjo frontal e lateral em função da energia da fonte para o tempo de 600 s para a energia de 59,54 keV.

TABELA 2 - Eficiência experimental da camada morta do detector EGPC-15-190-R

Medida Frontal		Medida Lateral	
$\epsilon_{\text{exp}} (\times 10^{-3})$	Incerteza (%)	$\epsilon_{\text{exp}} (\times 10^{-4})$	Incerteza (%)
1,60	1,40	8,40	1,40

Na TAB.3 estão representados os valores teóricos (ϵ_{MCNP}) e seus respectivos erros relativos para a variação da espessura da camada morta, assim como a relação entre o valor teórico e o experimental para a energia de 59,54 keV.

TABELA 3 - Valores teóricos da eficiência (ϵ_{MCNP}) e seus respectivos erros relativos para a variação da espessura da camada morta, relação entre o valor teórico e o experimental para a energia de 59,54 keV

Espessura (mm)	$\epsilon_{\text{MCNP}} (\times 10^{-02})$	Erro relativo (%)	$\epsilon_{\text{MCNP}}/\epsilon_{\text{exp}}$
0,00000	1,2102	0,90	7,4245
1,00000	0,4225	1,50	2,5920
1,50000	0,2446	2,00	1,5006
1,75000	0,1893	2,30	1,1613
1,87500	0,1640	2,30	1,0061
1,88281	0,1638	2,50	1,0049
1,88672	0,1632	2,50	1,0012
1,88818	0,1631	2,50	1,0006

Espessura (mm)	$\epsilon_{\text{MCNP}} (\times 10^{-02})$	Erro relativo (%)	$\epsilon_{\text{MCNP}}/\epsilon_{\text{exp}}$
1,88820	0,1630	2,50	1,0000
1,88843	0,1629	2,50	0,9994
1,88867	0,1628	2,50	0,9988
1,89063	0,1626	2,50	0,9975
1,90625	0,1599	2,50	0,9810
1,93750	0,1550	2,50	0,9509
2,00000	0,1451	2,60	0,8902

A partir da TAB.3 foi obtida a FIG.27 na qual as relações entre a eficiência obtida pelo método de Monte Carlo e a eficiência experimental em função da espessura estão representadas.

FIGURA 27 - Gráfico da relação entre a eficiência obtida pelo método de Monte Carlo e a eficiência experimental em função da espessura para a energia de 59,54 keV

Na TAB.4 estão representados os valores teóricos (ϵ_{MCNP}) e seus respectivos erros relativos para a variação do raio do cristal de germânio, assim como a relação entre o valor teórico e o experimental para a energia de 59,54 keV.

TABELA 4 - Valores teóricos da eficiência (ϵ_{MCNP}) e seus respectivos erros relativos para a variação do raio do cristal de germânio, relação entre o valor teórico e o experimental para a energia de 59,54 keV

Raio (cm)	$\epsilon_{\text{MCNP}} (\times 10^{-3})$	Erro relativo	$\epsilon_{\text{MCNP}}/\epsilon_{\text{exp}}$
2,590	6,960	1,20	8,2343
2,490	1,750	2,40	2,0757
2,440	0,950	3,20	1,1243
2,434	0,874	3,40	1,0343
2,432	0,848	3,40	1,0036
2,431	0,845	3,40	1,0000
2,431	0,841	3,40	0,9953
2,428	0,830	3,50	0,9822
2,415	0,726	3,70	0,8592
2,390	0,513	4,40	0,6071

Na FIG.28 estão indicadas as relações entre a eficiência obtida pelo método de Monte Carlo e a eficiência experimental em função do raio do cristal de germânio.

FIGURA 28 - Gráfico da relação entre a eficiência obtida pelo método de Monte Carlo e a eficiência experimental em função do raio para a energia de 59,54 keV

Observando-se as FIG.27 e 28 nota-se que a relação entre a eficiência teórica e a experimental decresce com o aumento da espessura da camada morta e com a diminuição do raio do cristal de germânio.

Considerando as dimensões do cristal de germânio fornecidas pelo fabricante do detector EGPC-15-190-R, como tendo 3,6 cm de altura e 2,59 cm de raio. A partir da análise das TAB.3 e 4, foram escolhidos os valores de espessura de camada morta e raio do cristal cuja comparação entre as eficiências teórica e a experimental fosse iguais a um, pois indica que as eficiências teóricas e experimentais possuem o mesmo valor, ou seja, a geometria simulada se aproxima do volume ativo de detecção. Os melhores valores para a camada morta são de 1,882 mm na espessura e 2,4314 cm de raio. A partir do valor de camada morta determinado tem-se que o volume ativo corrigido do detector é de $63,32 \text{ cm}^3$.

6.2 Efeito de Soma em Cascata

Os espectros experimentais para as distâncias fonte-detector de: 7,5 10 e 15 cm estão representados nas FIG.29, 30 e 31.

FIGURA 29 - Espectro experimental do efeito de soma em cascata para a distância fonte-detector de 7,5 cm

FIGURA 30 -Espectro experimental do efeito de soma em cascata para a distância fonte-detector de 10 cm

FIGURA 31 -Espectro experimental do efeito de soma em cascata para a distância fonte-detector de 15 cm

As análises por espectrometria gama foram efetuadas utilizando-se o tempo de contagem 1200 segundos. A eficiência experimental foi obtida utilizando-se o *software* GENIE 2000, por meio do certificado de calibração da fonte puntiforme de ^{152}Eu .

Nas TAB.5, 6 e 7 estão indicadas respectivamente as eficiências experimentais e suas respectivas incertezas para as distâncias de 7,5 , 10 e 15 cm.

TABELA 5 - Eficiência experimental do efeito de soma em cascata para a distância fonte-detector 7,5 cm

Energia (keV)	$\epsilon_{\text{exp}} (x 10^{-02})$	Incerteza (%)
121,80	1,10	3,20
244,70	1,00	3,10
344,30	0,40	2,70
778,90	0,20	3,50
867,30	0,20	5,00
964,10	0,10	3,70
1085,80	0,10	4,70
1112,10	0,10	4,00
1408,00	0,10	4,10

TABELA 6 - Eficiência experimental do efeito de soma em cascata para a distância fonte-detector 10 cm

Energia (keV)	$\epsilon_{\text{exp}} (x 10^{-03})$	Incerteza (%)
121,80	8,30	3,20
244,70	7,90	3,20
344,30	2,70	2,70
778,90	1,20	3,70
867,30	1,60	5,40
964,10	0,90	4,00
1085,80	0,80	5,00
1112,10	0,70	4,30
1408,00	0,50	4,40

TABELA 7 - Eficiência experimental do efeito de soma em cascata para a distância fonte-detector 15 cm

Energia (keV)	ϵ_{exp} ($\times 10^{-3}$)	Incerteza (%)
121,80	4,80	3,30
244,70	5,90	3,30
344,30	1,60	2,90
778,90	0,60	4,30
867,30	1,00	6,20
964,10	0,50	4,80
1085,80	0,50	5,60
1112,10	0,40	5,30
1408,00	0,20	5,40

Os valores obtidos nas TAB. 5, 6 e 7 foram comparados com os valores teóricos conforme a equação 12.

O espectro teórico obtido a partir dos valores da eficiência teórica obtidos pelo método de Monte Carlo, foi analisado no *software* GENIE 2000 utilizando o certificado de calibração da fonte puntiforme de ^{152}Eu .

Nas TAB.8, 9 e 10 estão indicados os valores da eficiência teórica e suas respectivas incertezas, as relações entre os valores de eficiência teórico e experimental respectivamente para as distâncias fonte-detector de: 7,5 10 e 15 cm.

TABELA 8 -Relação entre as eficiências teóricas e experimental para a distância fonte-detector de 7,5 cm no efeito de soma em cascata, assim como a sua incerteza e as energias de interesse do ^{152}Eu

Energia (keV)	ϵ_{MCNP} ($\times 10^{-3}$)	Incerteza (%)	$\epsilon_{\text{MCNP}}/\epsilon_{\text{exp}}$
121,80	1,20	3,20	1,06
244,70	0,80	3,20	0,84
344,30	0,60	2,60	1,43
778,90	0,30	3,30	1,43
867,30	0,30	4,80	1,36
964,10	0,20	3,40	1,56
1085,80	0,20	4,30	1,64
1112,10	0,20	3,70	1,46
1408,00	0,10	3,70	1,71

TABELA 9 - Relação entre as eficiências teóricas e experimental para a distância fonte-detector de 10 cm no efeito de soma em cascata, assim como a sua incerteza e as energias de interesse do ^{152}Eu

Energia (keV)	$\epsilon_{\text{MCNP}} (\times 10^{-3})$	Incerteza (%)	$\epsilon_{\text{MCNP}}/\epsilon_{\text{exp}}$
121,80	7,20	3,30	0,87
244,70	5,40	3,30	0,69
344,30	3,50	2,70	1,29
778,90	1,60	3,50	1,33
867,30	1,70	5,40	1,07
964,10	1,30	3,70	1,44
1085,80	1,20	4,60	1,48
1112,10	1,10	4,00	1,46
1408,00	0,80	3,90	1,63

TABELA 10 - Relação entre as eficiências teóricas e experimental para a distância fonte-detector de 15 cm no efeito de soma em cascata, assim como a sua incerteza e as energias de interesse do ^{152}Eu

Energia (keV)	$\epsilon_{\text{MCNP}} (\times 10^{-3})$	Incerteza (%)	$\epsilon_{\text{MCNP}}/\epsilon_{\text{exp}}$
121,80	3,50	3,30	0,73
244,70	2,70	3,70	0,45
344,30	1,70	2,90	1,11
778,90	0,80	4,10	1,28
867,30	0,80	6,50	0,88
964,10	0,70	4,30	1,42
1085,80	0,60	5,30	1,28
1112,10	0,50	4,80	1,38
1408,00	0,40	4,60	1,70

Analisando-se as TAB.8, 9 e 10, nota-se que os valores de fator de correção para as energias: 121,8, 244,7, 344,3, 867,3 e 1085,8 keV, diminuíram com o aumento da distância fonte-detector. Essas energias apresentaram respectivamente um desvio relativo do fator de correção de 31%, 46%, 23%, 35% e 22%.

Para as energias de 121,8 e 867,3 keV o fator de correção sofreu uma variação na qual para a distância de 15 cm foi menor que um e para a distância de 7,5 cm esse fator foi maior que um. Já para as energias de 244,7, 344,3 e

1085,8 keV houve uma diminuição do fator de correção, apesar disso o fator de correção permaneceu maior que um.

Para as outras energias de interesse do ^{152}Eu não houve uma variação significativa em função da variação das distâncias o que indica que nestes picos não há influência do efeito de soma em cascata.

Os valores do fator de correção observados nas TAB.8, 9 e 10, apresentam um valor diferente de um, quando este valor é superior a um indica que houve um decréscimo na área do pico experimental e para valores inferiores indica um aumento na área do pico experimental.

6.3 Filtro Cuno

6.3.1 Calibração em Eficiência do Detector EGPC-15-190-R

A simulação para a calibração em eficiência pelo método de Monte Carlo foi realizada utilizando-se o volume ativo corrigido do detector EGPC-15-190-R, para a distância fonte-detector de 55 cm para as energias da fonte puntiforme de ^{152}Eu .

A TAB.11 expressa os valores teóricos da eficiência e seus erros relativos obtidos na simulação pelo método de Monte Carlo, suas respectivas probabilidades de emissão (I_γ) e as energias de interesse do ^{152}Eu .

TABELA 11 - Eficiência teórica do ^{152}Eu			
Energias (keV) ¹	$I_\gamma(\%)$ ¹	$\epsilon(E) \times (10^{-05})$	Erro relativo (%)
121,80	28,40(13)	3,20	0,60
244,70	7,60(04)	0,60	1,30
344,30	26,60 (12)	1,80	0,80
778,90	13,00(06)	0,40	1,50
964,10	14,50(6)	0,40	1,50
1085,80	10,10(06)	0,30	1,90
1112,10	13,40(06)	0,40	1,70
1408,00	20,80(08)	0,40	1,50

Fonte¹ http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Eu-152_tables.pdf

Os valores obtidos na TAB.11 foram inseridos no *software* Genie 2000 para a obtenção da curva de calibração em eficiência em função da energia para a distância de 55 cm indicada na equação 13.

$$\ln(\varepsilon) = -11,84 + 3,397 \times \ln\left(\frac{764,9}{E}\right) - 0,1025 \times \left(\ln\left(\frac{764,9}{E}\right)\right)^2 - 5,712 \times \left(\ln\left(\frac{764,9}{E}\right)\right)^3 + 2,722 \times \left(\ln\left(\frac{764,9}{E}\right)\right)^4 \quad (13)$$

Os valores de eficiências teóricas obtidos (TAB.11) apresentam um erro relativo menor que 2%, sendo considerados aceitáveis (BRIESMEISTER, 2000).

6.3.2 Caracterização do Filtro

O espectro experimental (FIG.32) foi obtido com um tempo de contagem de 1200 s. A TAB.12 apresenta as atividades e a identificação dos radionuclídeos do filtro 15, assim como suas energias e probabilidades de emissão.

FIGURA 32 - Espectro experimental do filtro cunho número 15

TABELA 12 -Atividade e identificação dos radionuclídeos do filtro 15, assim como suas energias e probabilidades de emissão (I_γ)

E (keV)	I_γ (%) ¹	Radionuclídeo	A (MBq)
657,8	94,40(08)	^{110m} Ag	1,05 ± 0,01
722,9	90,80(16)	^{108m} Ag	0,72 ± 0,02
1332,5	99,983(1)	⁶⁰ Co	2,20 ± 0,02

Fonte¹ http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm

Observando-se a TAB.12 nota-se a presença dos seguintes radionuclídeos: ^{108m}Ag, ^{110m}Ag e ⁶⁰Co. Os radionuclídeos identificados apresentam a atividade na ordem de grandeza de MBq.

Esses radionuclídeos são produtos de ativação; cujas origens, meia-vida ($T_{1/2}$), energia gama (E), a probabilidade de emissão (I_γ) e a suas respectivas reações de formação estão indicadas na TAB.13.

TABELA 13 -Tempos de meia-vida, a energia gama, a probabilidade de emissão, a reação de formação e a origem dos produtos de ativação

Produto de ativação	$T_{1/2}$ (anos)	E_γ (keV)	I_γ (%)	Reação de formação	Origem
^{108m} Ag	418	722,9	90,8	¹⁰⁷ Ag(n, γ) ^{108m} Ag	Barra de controle
^{110m} Ag	0,68	657,8	94,4	¹⁰⁹ Ag(n, γ) ^{110m} Ag	Barra de controle
⁶⁰ Co	5,27	1332,5	99,983	⁶³ Cu(n, α) ⁶⁰ Co	Ligas de Al

Fonte TADDEI, 2013a.

Analisando-se a TAB.13, nota-se que os radionuclídeos identificados no filtro cunho podem ser originados da barra de controle do reator e das ligas de alumínio. O aço inoxidável é utilizado no revestimento interno da piscina e nos antigos racks de estocagem de combustíveis nucleares gastos. As ligas de alumínio são utilizadas nos atuais racks para a estocagem de combustíveis nucleares gastos, nas estruturas do suporte do cerne, no revestimento dos refletores de grafite e no revestimento dos combustíveis nucleares (TADDEI, 2013a).

7. CONCLUSÕES

7.1 Detector EGPC-15-190-R

7.1.1 Camada Morta do Detector EGPC-15-190-R

- Na determinação da camada morta do detector EGPC-15-190-R, segundo as informações do fabricante o volume ativo do detector é $75,82 \text{ cm}^3$, porém com os parâmetros determinados pelo método de Monte Carlo do raio e da espessura do cristal de germânio foi obtido um volume ativo real de $63,32 \text{ cm}^3$;
- O volume real ativo representa 84% do volume de cristal de germânio;
- Como na região da camada morta os fótons podem ser atenuados, além do fato de não serem detectados, estabelecer as dimensões, essa região permite que nas simulações pelo método de Monte Carlo a geometria simulada do detector se aproxime mais da medida real do cristal de germânio;
- Esse novo valor de volume ativo permitiu diminuir a discrepância entre os valores de eficiências experimentais e teóricas.

7.2 Efeito de Soma em Cascata

- No estudo da influência do efeito de soma em cascata, observou-se uma diferença entre as eficiências teóricas e experimentais, pois, os fatores de correção apresentaram um valor diferente de um, quando não há a influência do efeito de soma em cascata esta relação deve ser igual;
- Neste trabalho os fatores de correção que foram determinadas sofrem uma diminuição conforme houve o aumento da distância fonte-detector;
- As energias da fonte puntiforme de ^{152}Eu : 121,8, 244,7, 344,3, 867,3 e 1085,8 keV sofrem uma influência do efeito de soma em cascata;
- Sendo as energias de: 121,8, 244,7 e 867,3 keV as que apresentaram os maiores desvios relativos de fator de correção;

- Os fatores de correção para as energias de: 121,8 e 867,3 keV apresentaram valores tanto maiores quanto menores que zero, isso indica que para a distância de 7,5 cm houve um decréscimo na área do pico experimental, e para a distância fonte-detector de 15 cm houve um aumento na área do pico experimental;
- Para as energias de 244,3, 344,3 e 1085,8 keV, houve uma diminuição do fator de correção, apesar disso o fator de correção permaneceu maior que um e para essas energias houve um aumento na área do pico experimental;
- Desse modo por meio do método de Monte Carlo foi possível verificar a influência do efeito de soma em cascata e determinar fatores de correção para as energias do ^{152}Eu .

7.3 Caracterização do Filtro Cuno

- A GRR tem tratado os filtros cunos por meio da compactação por se tratar de um rejeito sólido compactável;
- A caracterização primária neste trabalho analisou as propriedades físicas e radiológicas do filtro cuno;
- Para determinar as principais propriedades radiológicas (atividade, radionuclídeos) se fez necessária a calibração em eficiência utilizando o método de Monte Carlo, pois esta permitiu a obtenção da curva de calibração em eficiência para o detector EGPC-15-190-R na geometria do filtro cuno;
- Na simulação pelo método de Monte Carlo da curva de calibração, o filtro cuno foi simulado como sendo uma fonte padrão extensa de ^{152}Eu posicionada na mesma distância da medida experimental do filtro cuno, pois deste modo foi possível obter o valor de atividade estimado do filtro;
- A espectrometria gama auxiliou na identificação dos radionuclídeos do filtro cuno: $^{108\text{m}}\text{Ag}$, $^{110\text{m}}\text{Ag}$ e ^{60}Co ;
- Os radionuclídeos presentes no filtro cuno são produtos de ativação do reator IEA-R1;
- A partir da calibração em eficiência obtida pelo método de Monte Carlo os valores de atividade estimados estão na ordem de MBq;
- A gerência de rejeitos radioativos engloba diversas etapas, para escolha do melhor tratamento para o filtro cuno ainda se faz necessário analisar outras

propriedades , tais como, as propriedades químicas do filtro cuno e verificar se há presença de radionuclídeos emissores de alfa ou beta;

- Este trabalho representa uma contribuição importante na caracterização primária do filtro cuno, pois a metodologia descrita é de fácil aplicação e permite identificar radionuclídeos e estimar a atividade do filtro cuno.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

AGARWAL, C.; CHAUDHURY, S.; GOSWAMI, A.; GATHIBANDHE, M. Full energy peak efficiency calibration of HPGe detector for point and extend sources using Monte Carlo code. **J Radioanal Nucl Chem**, v. 287, p. 701-708, 2011a.

AGARWAL, C.; CHUDHURY, S.; GOSWAMI, A.; GATHIBANDHE, M. True coincidence summing corrections in point and extended sources. **J Radional Nucl Chem**, v. 289, p. 773-780, 2011b.

BICKEL, M.; HOLMES, L.; JANSON, C.; KOULOURIS, G.; PILVIO, R.; SLOWISKOWSKI B.; HILL, C. Radiochemistry: inconvenient but indispensable. **Applied Radiation Isotopes**, v. 53, p. 5-11, 2000.

BOSON, J.; AGREN, G.; JOHANSSON, L. A detailed investigation of detector response for improved Monte Carlo efficiency calculations. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A**, v. 587, p. 304-314, 2008.

BRIESMEISTER, J. F. MCNP^{TM} – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, version 4c, LA-13709-M, Los Alamos National Laboratory, New Mexico, December 2000.

BRITTON, R.; BURNETT, J. L.; DAVIES, A. V.; REGAN, P. H. Characterization of cascade summing effects in gamma spectrometry using Monte Carlo simulations. **J Radional Nucl Chem**, v. 299, p. 447-452, 2014.

CANBERRA INDUSTRIES INC. **GENIE^{TM} 2000 Spectroscopy Software – Customization Tools Manual**. Meriden CT, 2001.

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR - CNEN. **Gerência de Rejeitos Radioativos de baixo e médio níveis de radiação**. CNEN-NE-8.01. Rio de Janeiro, 2014.

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR – CNEN. **Critérios de Aceitação para Deposição de Rejeitos Radioativos de Baixo e Médio Níveis de Radiação**. CNEN-NN-6.09. Rio de Janeiro, 2002.

COSTA, P.R. **INTERAÇÃO DA RADIAÇÃO γ COM A MATÉRIA**. Apostila da Disciplina de Laboratório de Física Moderna da Graduação. Instituto de Física (IF/USP), São Paulo, 2010.

Disponível: <http://web.if.usp.br/ifusp/files/Apostila_interacao_da_radiacao_com_a_materia_L.pdf>. Acesso em: 04 fev. 2015.

ELANIQUE, A.; MARZOCCHI, O.; LEONE, D.; HEGENBART, B.; BREUSTEDT, B.; OUFNI, L. Dead layer thickness characterization of an HPGe detector by measurements and Monte Carlo. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 70, p. 538-542, 2012.

GERALDO, B. **UTILIZAÇÃO DE MÉTODOS RADIOANALÍTICOS PARA A DETERMINAÇÃO DE ISÓTOPOS DE URÂNIO, NETÚNIO, PLUTÔNIO, AMERÍCIO E CÚRIO EM REJEITOS RADIOATIVOS**. 2012. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP, São Paulo. Acesso em: 07 abr. 2014.

GILMORE, G.; HEMINGAY, J. D. **Practical gamma-Ray spectrometry**. 1 ed. JOHN WILEY & SONS, 1995.

HIROMOTO, G.; DELLAMANO, J. C.; MARUMO, J. T.; ENDO, L. S.; VICENTE, R.; HIRAYAMA, T. **Introdução à gerência de rejeitos radioativos**. São Paulo: **Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares**. Departamento de Rejeitos Radioativos, Rio de Janeiro, RJ, Brasil, 1999.

HUY, N. Q. The influence of dead layer thickness increase on efficiency decrease for a coaxial HPGe p-type detector. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A**, v. 621, p. 390-394, 2010.

HUY, N.Q. Dead-Layer thickness effect for gamma spectra measured in an HPGe p-type detector. **Nuclear Instrument and Methods in physics Research A**, v. 641, p. 101-104, 2011.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY – IAEA. **The Principles of Radioactive Waste Management**. IAEA Nuclear Safety Series No. 111-F. Vienna, 1995.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY - IAEA. **Radioactive waste management glossary**, Vienna, 2003.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY – IAEA. **Classification of Radioactive Waste**, IAEA Nuclear Safety Series No GSG-1. Vienna, 2009a.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY – IAEA. **Determination and use of scaling factors for waste characterization in nuclear power plants**. IAEA Nuclear Energy Series No. NW-T-1.18. Vienna, 2009b.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY – IAEA. **Capítulo 8: Gerência de Rejeitos Radioativos**. Internacional Nuclear Information System – INIS, v. 45, p-262-270, 2013. Disponível em: www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/45/073/45073473.pdf Acesso em: 03 dez. 2014.

KAMBOJ, S.; KAHN, B. Use of Monte Carlo simulation to examine gamma-ray interactions in germanium detectors. **Radiation Measurements**, v. 37, p. 1-8, 2003.

KNOLL, G. F. **Radiation Detection and Measurement**. 3 ed. JOHN WILEY & SONS, 2002.

NOVO, J. B. M.; DIAS, L. C. Simulação Monte Carlo de mecanismo de transferência de energia de excitação eletrônica: modelo de Perrin para a supressão estática da luminescência. **Química Nova**, v. 34, p. 707-709, 2011.

RÓDENAS, J.; GALLARDO, S.; ORTIZ, J. Comparison of a laboratory spectrum of Eu-152 with results of simulation using the MCNP code. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A**, v. 580, p. 303-305, 2007.

SHULTIS, J. K; FAW, R. E. **AN MCNP PRIMER**, Dept. of Mechanical and Nuclear Engineering Kansas State University Manhattan, KS 66506, 2010.

SIMA, O.; ARNOLD, D. On the Monte Carlo simulation of HPGe gamma-spectrometry systems. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 67, p. 701-705, 2009.

TADDEI, M. H. T. **Determinação de fatores de escala para estimativa do inventário de radionuclídeos em rejeitos de média e baixa atividade do reator IEA-R1**. 2013a. Tese (Doutoramento) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP, São Paulo. Acesso em : 16 jan 2014.

TADDEI, M. H. T.; VICENTE, R.; MARUMO, J. T.; SAKATA, S. K.; TERREMOTO, L. A. A. Determination of long-lived radionuclides in radioactive wastes from the IEA-R1 nuclear research reactor. **J Radioanal Nucl Chem**, v. 295, n. 2, p. 951-957, 2013b.

TAUHATA, L.; SALATI, I. P. A.; PRINZIO, R. D.; PRINZIO, A. R.D. **DOSIMETRIA RADIOPROTEÇÃO E DOSIMETRIA FUNDAMENTOS**. Apostila. Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD- CNEN/RJ), Rio de Janeiro, 2003.

TAKEDA, M. N. **DETERMINAÇÃO DA CORREÇÃO PARA O EFEITO DE SOMA EM CASCATA PARA ESPECTRÔMETROS DE HPGe PELO MÉTODO DE MONTE CARLO**. 2001 Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP, São Paulo.

TERREMOTO, L.A.A. **Fundamentos de Tecnologia Nuclear – Reatores**. Apostila da Disciplina de Pós-Graduação - TNR5764. Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN/CNEN-SP), São Paulo, 2004.

TZICA, F.; KONTOGEORGAKOS, D.; VASILOPOULOU, T.; STAMATELATOS, I. E. Application of the Monte Carlo method for the calibration of an in situ gamma spectrometer. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 68, p. 1441-1444, 2010.

TOMA, M.; DINESCU, L.; SIMA, O. Detector characterization for efficiency calibration in different measurement geometries. **Romanian Repots in Physics**, v. 57, p. 329-333, 2005.

TOMA, M.; SIMA, O.; OLTEANU, C. Experimental and simulated studies for the calibration of a radioactive waste assay system. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A**, v. 580, p. 391-395, 2007.

TSOULFANIDIS, N. **Measurement and Detection of Radiation**. 2 ed. Taylor & Francis, 1995.

VARGAS, M. J.; TIMÓN, A. F.; DÍAZ, N. C.; SÁNCHEZ, D. P. Influence of the geometrical characteristics of an HPGe detector on its efficiency. **J Radional Nucl Chem**, v. 253, p. 439-443, 2002.