

Um reactor nuclear de investigação é uma máquina onde são produzidos neutrões, podendo a respectiva energia cinética estender-se por um vasto domínio - 1 meV a 10 MeV, aproximadamente.

Quando se coloca uma amostra no meio onde os neutrões se difundem – água ou grafite, por exemplo – ocorre geralmente uma diminuição do fluxo de neutrões no local onde se encontra a amostra. Em consequência, verifica-se uma redução do efeito que se pretende induzir através de reacções nucleares com neutrões. Para interpretar adequadamente os resultados da irradiação da amostra, é indispensável conhecer dois parâmetros correctivos:

(1)  $G_{th}$ , respeitante à perturbação do fluxo de neutrões térmicos (baixas energias); (2)  $G_{res}$ , referente à perturbação do fluxo de neutrões epitérmicos (energias intermédias).

O objecto do presente artigo é  $G_{res}$ , parâmetro sobre cujos valores não há qualquer formulação geral. De facto, ao longo de meio século,  $G_{res}$  tem sido obtido por vários autores, experimental ou computacionalmente, mas sempre caso a caso, consoante: (a) o nuclido considerado (cobalto-59, ouro-197, etc.); (b) a geometria da amostra (fio, folha, etc.); e (c) a sua dimensão típica (raio, no caso de fios; espessura, no caso de folhas; etc.).

Imprevistamente, um trabalho realizado no Instituto Tecnológico e Nuclear levou à descoberta de uma curva universal para  $G_{res}$ . Entendida como uma referência, esta curva pode ter aplicações relevantes. Relata-se aqui o processo que conduziu a este inesperado resultado.

EDUARDO MARTINHO

Instituto Tecnológico e Nuclear

Estrada Nacional 10, 2686-953 Sacavém

edmartinho@clix.pt

# UMA INESPERA UNIVERSAL

Um reactor nuclear de investigação é, no essencial, uma máquina que produz um campo intenso de neutrões, utilizados em múltiplas aplicações: fabrico de radioisótopos; produção de fontes radioactivas; análise multielementar por activação com neutrões; alteração de propriedades físicas, químicas ou biológicas de materiais (indução de danos estruturais, mudança de cor, mutações genéticas, etc.); metrologia de neutrões; etc.

Qualquer uma destas utilizações passa pela colocação de uma dada amostra<sup>1</sup> no seio do campo de neutrões, durante um certo intervalo de tempo. Ora, a presença da amostra provoca uma perturbação do próprio campo, da qual decorre uma diminuição local do fluxo de neutrões (em relação ao fluxo não-perturbado reinante na ausência da amostra). Em consequência, torna-se necessário quantificar a perturbação do campo de neutrões para poder interpretar correctamente os resultados obtidos em experiências de irradiação, seja a resposta de um detector, a radioactivação de um alvo, etc.

Uma grandeza indispensável ao conhecimento da perturbação do campo de neutrões é o chamado factor de autoprotecção, que descreve o facto de a absorção de neutrões nas camadas mais externas da amostra ter como consequência uma diminuição progressiva do fluxo de neutrões de fora para dentro da amostra. Por exemplo, imaginando uma pequena esfera de cobalto (<sup>59</sup>Co) imersa num campo de neutrões (para produção de <sup>60</sup>Co), o fluxo de neutrões à superfície da esfera é superior ao fluxo no seu interior, sendo a variação mais ou menos significativa consoante o raio da esfera e o tipo de neutrões que se considere:

1. neutrões lentos ( $E \leq 1$  eV) – onde estão incluídos os neutrões térmicos (assim designados por estarem em equilíbrio térmico com o meio onde se difundem);
2. neutrões intermédios ( $1$  eV  $< E < 100$  keV) – onde se incluem os neutrões epitérmicos (energia compreendida entre cerca de 1 eV e algumas dezenas de keV);

# DA CURVA

3. neutrões rápidos, ou neutrões de cisão ( $E \geq 0,1$  MeV). [Em geral, a perturbação induzida pela amostra num campo de neutrões rápidos é desprezável porque as secções eficazes dos nuclidos<sup>2</sup> para neutrões de alta energia são relativamente baixas.]

O factor de autoprotecção de neutrões térmicos,  $G_{th}$  – referente ao domínio de energia em que a secção eficaz de quase todos os nuclidos varia "em  $1/v$ ", isto é, com o inverso da velocidade dos neutrões (ver Fig. 1) – pode ser obtido facilmente mediante relações gerais válidas para este parâmetro [1].

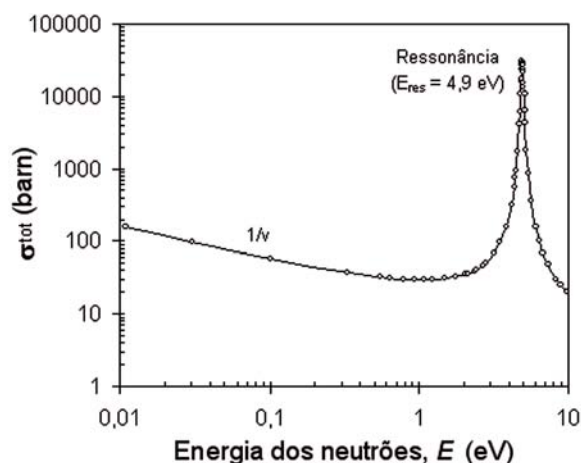


Fig. 1 - Secção eficaz total do ouro ( $^{197}\text{Au}$ )

O mesmo não acontece com o factor de autoprotecção referente a neutrões epitérmicos – correspondente ao domínio de energia em que a secção eficaz dos nuclidos apresenta geralmente ressonâncias (ver Fig. 1), donde a designação de factor de autoprotecção de neutrões de ressonância,  $G_{res}$ . De facto, não existe qualquer relação geral que permita avaliar  $G_{res}$  em diferentes situações. Os escassos valores deste parâmetro encontrados na literatura têm sido obtidos caso a caso, consoante o nuclido, a geometria da amostra e a sua dimensão típica, e são apresen-

tados em tabelas de valores ou sob a forma de gráficos referentes aos casos em estudo [2, por exemplo] - ver Fig. 2.

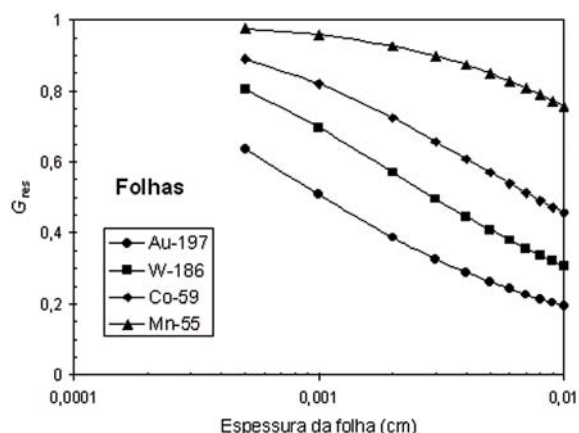


Fig. 2 - Rede de curvas de  $G_{res}$  para folhas de  $^{55}\text{Mn}$ ,  $^{59}\text{Co}$ ,  $^{186}\text{W}$  e  $^{197}\text{Au}$  [2]

Imprevistamente, um trabalho realizado no Instituto Tecnológico e Nuclear (ITN) – cujo objectivo inicial era apenas o estabelecimento de uma metodologia de cálculo de  $G_{res}$  pela técnica de Monte Carlo [3], para poder responder a solicitações de utilizadores do Reactor Português de Investigação (RPI) no tocante ao cálculo previsionial da activação de amostras, nomeadamente para estudos de produção de radiofármacos potenciais – acabou por levar à descoberta de uma curva universal de  $G_{res}$  válida para amostras de qualquer nuclido e para as geometrias mais usuais das amostras (fios, folhas, esferas e cilindros).

No essencial, a "descoberta" consistiu em encontrar uma variável adimensional  $z$ , que engloba as propriedades físicas e geométricas da amostra, tal que todos os valores do factor de autoprotecção convergem num único gráfico de  $G_{res}(z)$ , independentemente do nuclido e da geometria e dimensão da amostra.

Analisado o caminho percorrido, é interessante dar a conhecer – nomeadamente, a professores de Física do ensino secundário e a estudantes de Física – o processo que conduziu à inesperada curva universal de  $G_{res}$ .

## CURVA "QUASE UNIVERSAL"

Na fase de planeamento do trabalho, foram antecipadas algumas questões que era necessário esclarecer:

1. Como caracterizar a fonte de neutrões e a amostra para simular a sua irradiação num campo isotrópico de neutrões epitérmicos?
2. Que relação deve existir entre o comprimento e o raio do cilindro por forma a simular um fio infinito?
3. Que relação deve existir entre o raio de um alvo circular e a sua espessura por forma a simular uma folha infinita?

| Nuclido           | A<br>(g mol <sup>-1</sup> ) | ρ<br>(g cm <sup>-3</sup> ) | θ<br>(%) | E <sub>res</sub><br>(eV) | σ <sub>tot</sub> (E <sub>res</sub> )<br>(barn)* | Γ <sub>γ</sub><br>(eV) | Γ <sub>n</sub><br>(eV) | Γ=Γ <sub>γ</sub> +Γ <sub>n</sub><br>(eV) | Γ <sub>γ</sub> /Γ<br>(%) |
|-------------------|-----------------------------|----------------------------|----------|--------------------------|---|------------------------|------------------------|--|--------------------------|
| <sup>197</sup> Au | 196,97                      | 19,3                       | 100      | 4,91                     | 30770   | 0,1225                 | 0,0152                 | 0,1377                                   | 89,0                     |
| <sup>59</sup> Co  | 58,93                       | 8,9                        | 100      | 132                      | 10370   | 0,47                   | 5,27                   | 5,74                                     | 8,2                      |
| <sup>63</sup> Cu  | 63,55                       | 8,96                       | 69,17    | 579                      | 918   | 0,485                  | 0,59                   | 1,075                                    | 45,1                     |
| <sup>115</sup> In | 114,82                      | 7,31                       | 95,71    | 1,46                     | 31150   | 0,072                  | 0,00304                | 0,07504                                  | 95,9                     |
| <sup>55</sup> Mn  | 54,94                       | 7,32                       | 100      | 337                      | 3290  | 0,31                   | 21,99                  | 22,30                                    | 1,4                      |
| <sup>185</sup> Re | 186,2                       | 21,02                      | 37,40    | 2,16                     | 24550   | 0,0549                 | 0,00283                | 0,05773                                  | 95,1                     |

\* 1 barn = 10<sup>-24</sup> cm<sup>2</sup>.

Quadro 1 - Propriedades físicas dos nuclídeos estudados | [J.K. Tuli, Nuclear wallet cards, NNDC/BNL, 2000; <http://www2.bnl.gov/ton>; <http://t2.lanl.gov/cgi-bin/nuclides/endind>]

4. Dado que  $G_{res}$  é calculado através da razão entre a taxa de reacção por átomo na amostra real e a taxa de reacção por átomo numa amostra de referência – amostra similar não-perturbadora do campo de neutrões ( $G_{res}=1$ ) –, que diluição do nuclídeo na amostra de referência deve ser adoptada?

5. Dado que o fluxo de neutrões epitérmicos de um reactor nuclear varia como  $1/E^{1+\alpha}$ , dependerá  $G_{res}$  de  $\alpha$ ? ( $E$ : energia dos neutrões;  $\alpha$ : parâmetro dependente do dispositivo de irradiação).

Como já se referiu, o objectivo inicial do trabalho consistia simplesmente no estabelecimento de uma metodologia de cálculo de  $G_{res}$ . Com base na técnica de Monte Carlo, procedeu-se ao cálculo de  $G_{res}$  para folhas e fios de ouro (<sup>197</sup>Au), cobalto (<sup>59</sup>Co) e manganésio (<sup>55</sup>Mn) [4]. Estas escolhas foram ditadas por duas ordens de razões: (1) o ouro, o cobalto e o manganésio são elementos constituídos por um só isótopo natural e (2) existem na literatura valores experimentais susceptíveis de validar os resultados do cálculo.

Um segundo trabalho foi dedicado a fios, tendo-se estudado com detalhe o fenómeno de autoprotecção em função da energia dos neutrões, nomeadamente o efeito das colisões de dispersão na zona das ressonâncias. Além disso, procedeu-se ao cálculo de  $G_{res}$  para seis nuclídeos criteriosamente seleccionados (<sup>197</sup>Au, <sup>59</sup>Co, <sup>63</sup>Cu, <sup>115</sup>In, <sup>55</sup>Mn, <sup>185</sup>Re) por terem propriedades físicas distintas (ver Quadro 1), fazendo variar o raio do fio.

Ocorreu então a ideia de averiguar se existiria alguma espécie de correlação entre  $G_{res}$  e o conjunto dos parâmetros envolvidos no cálculo. A ideia foi explorada por tentativas. Por fim, foi identificada uma variável adimensional englobando as propriedades físicas e geométricas das amostras,  $z^*$ , que fazia distribuir os valores de  $G_{res}$  em torno de uma curva única. A curva foi descrita sob a forma de um polinómio do sexto grau em  $\log(z^*)$ , com  $z^*$  dada pela relação:

$$z^* = x \cdot \Sigma_{tot}(E_{res}) \cdot \sqrt{\frac{\Gamma_{\gamma}}{\Gamma}} \quad (1)$$

sendo

$$\Sigma_{tot}(E_{res}) = \frac{\rho}{A} \theta N_A \cdot \sigma_{tot}(E_{res}) \quad (2)$$

e em que os símbolos têm o seguinte significado:

$x$  – dimensão típica correspondente à geometria da amostra; no caso presente,  $x$  é igual ao raio do fio [cm];

$E_{res}$  – energia dos neutrões correspondente ao pico da ressonância;

$\Sigma_{tot}(E_{res})$  – secção eficaz microscópica total do nuclídeo para a energia  $E_{res}$  [cm<sup>2</sup>];

$\Sigma_{\text{tot}}(E_{\text{res}})$  – secção eficaz macroscópica total do nuclido para a energia  $E_{\text{res}}$  [ $\text{cm}^{-1}$ ];

$\Gamma_{\gamma}$  – largura da ressonância referente a reacções de captura radiativa [eV];

$\Gamma_{\text{n}}$  – largura da ressonância referente a reacções de dispersão elástica [eV];

$\Gamma = \Gamma_{\gamma} + \Gamma_{\text{n}}$  = largura total da ressonância [eV];

$\rho$  – massa volúmica do elemento [ $\text{g cm}^{-3}$ ];

$A$  – massa atómica do elemento [ $\text{g mol}^{-1}$ ];

$\theta$  – abundância natural do nuclido no elemento;

$N_A$  – constante de Avogadro [ $\text{mol}^{-1}$ ].

No artigo publicado [5], a curva única a que se chegou ( $G_{\text{res}}$  para fios) foi designada por «a quasi "universal curve"».

Tendo presente a conclusão obtida para fios, foi efectuada um estudo análogo ao anterior mas para as folhas, com a convicção de que se obteria também uma curva única para esta geometria. Assim aconteceu, de facto, apenas com a diferença de se ter, neste caso,  $x$  igual à espessura da folha [6].

O estudo foi depois estendido a esferas, tendo-se chegado naturalmente à conclusão de que existe também uma curva única para esta geometria, sendo agora  $x$  igual ao raio da esfera.

## CURVA UNIVERSAL

Ao efectuar a análise dos resultados obtidos para as três geometrias (fios, folhas e esferas), verificou-se que uma sigmóide descrevia  $G_{\text{res}}(z^*)$  melhor do que um polinómio do 6º grau em  $\log(z^*)$ , além de que permitia ir mais além nas conclusões. A sigmóide é dada pela expressão:

$$G_{\text{res}}(z^*) = \frac{A_1 - A_2}{1 + \left(\frac{z^*}{z_0}\right)^p} + A_2 \quad (3)$$

em que  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $z_0$  e  $p$  são os parâmetros da curva –  $A_1$  é o limite de  $G_{\text{res}}$  quando  $z^*$  tende para zero;  $A_2$  é o limite de  $G_{\text{res}}$  quando  $z^*$  tende para infinito;  $z_0$  é o ponto de inflexão da curva; e  $p$  caracteriza o declive da curva no ponto de inflexão.

Ajustadas as sigmóides aos valores calculados de  $G_{\text{res}}$ , verificou-se que, para as três geometrias estudadas, os parâmetros  $A_1$ ,  $A_2$  e  $p$  eram constantes e apenas  $z_0$  era variável. Na prática, isto tem uma consequência significativa: mediante uma mudança de variável baseada na razão entre valores de  $z_0$ , as três sigmóides podem ser justapostas por translação de duas delas sobre a terceira. Assim, concluiu-se que a nova variável,  $z$ , é dada por:

$$z = y \cdot \Sigma_{\text{tot}}(E_{\text{res}}) \cdot \sqrt{\frac{\Gamma_{\gamma}}{\Gamma}} \quad (4)$$

com

$$\begin{aligned} y &= 2R, \text{ para fios;} \\ y &= 1,5t, \text{ para folhas;} \\ y &= R, \text{ para esferas,} \end{aligned} \quad (5)$$

em que  $R$  designa o raio do fio ou da esfera e  $t$  representa a espessura da folha. Note-se que a translação adoptada leva as sigmóides de fios e folhas a sobreporem-se à sigmóide de esferas.

Desta vez, o gráfico representativo de  $G_{\text{res}}(z)$  para folhas, fios e esferas foi assumido como "universal curve" [7].

Por último, o estudo foi estendido a cilindros, que têm a particularidade de corresponder a uma geometria intermédia entre fios e folhas circulares. De acordo com uma sugestão de Gilat e Gurfinkel [1], adoptou-se para "dimensão" típica de um cilindro a grandeza

$$x = \frac{Rh}{R+h} \quad (6)$$

em que  $R$  e  $h$  designam, respectivamente, o raio e a altura do cilindro. Repare-se que  $x$  tem as dimensões de um comprimento e que, quando  $h$  tende para zero,  $x$  tende para  $h$  (geometria do tipo folha); e, quando  $R$  tende para zero,  $x$  tende para  $R$  (geometria do tipo fio).

Efectuado o ajuste de uma sigmóide aos valores de  $G_{\text{res}}$  e procedendo como indicado anteriormente, concluiu-se que, no caso de cilindros, a sigmóide se sobrepõe às outras três para  $y$  igual a [8]:

$$y = 1,65 \frac{Rh}{R+h} \quad (7)$$

Note-se que faz sentido que o "factor de forma" de cilindros (1,65) tenha um valor intermédio entre o factor de folhas (1,5) e o de fios (2).

## CONCLUSÃO

Partindo de um objectivo preciso, mas com um alcance limitado – estabelecimento de uma metodologia de cálculo de  $G_{\text{res}}$ , para suprir uma necessidade concreta

relacionada com a irradiação de amostras no RPI –, o trabalho efectuado no ITN acabou por evoluir para um resultado inesperado: verificação da existência de uma curva universal de  $G_{res}$  válida para ressonâncias isoladas de quaisquer nuclídeos<sup>3</sup> e para várias geometrias das amostras (fios, folhas, esferas e cilindros).

No Quadro 2, estão resumidas as condições de aplicação da curva universal de  $G_{res}$ .

Na Fig. 3, encontra-se a curva universal e os valores de  $G_{res}(z)$  obtidos pela técnica de Monte Carlo para amostras dos vários nuclídeos estudados (<sup>197</sup>Au, <sup>59</sup>Co, <sup>63</sup>Cu, <sup>115</sup>In, <sup>55</sup>Mn, <sup>185</sup>Re) em cada uma das quatro geometrias consideradas. A concentração dos valores de  $G_{res}$  em torno da curva universal é notória.

Na Fig. 4 procede-se à comparação da curva universal com valores experimentais de  $G_{res}$  obtidos por outros autores para folhas e fios de diversos nuclídeos, alguns dos quais (<sup>65</sup>Cu, <sup>98</sup>Mo, <sup>100</sup>Mo, <sup>94</sup>Zr, <sup>96</sup>Zr) não fazem parte do lote de nuclídeos que serviram de base ao trabalho. O acordo verificado confirma a adequação da curva universal. Não se incluem valores experimentais referentes a esferas e cilindros por não constarem da literatura disponível, mas a expectativa é que, para estas geometrias, se deveria verificar igualmente um acordo satisfatório.

Entendida como curva de referência – para amostras com qualquer das geometrias estudadas (esferas, folhas, fios e

cilindros) –, a curva universal do factor de autoprotecção de neutrões de ressonância pode ser utilizada com diversas finalidades:

1. Determinação expedita de  $G_{res}$  referente a uma ressonância isolada, ou a um grupo de ressonâncias isoladas [9], de um nuclídeo qualquer.
2. Esclarecimento de questões ou formulação de conjecturas, no caso da obtenção por outrem de valores experimentais ou calculados de  $G_{res}$  incompatíveis com a curva universal:
  - Inexactidão do valor experimental?
  - Inadequação do modelo de cálculo?
  - Ressonância mal parametrizada?
3. Averiguação sobre se a quantidade de um nuclídeo presente numa liga - <sup>197</sup>Au em níquel ou <sup>59</sup>Co em alumínio, por exemplo - pode ser considerada como correspondendo à "diluição infinita" (amostra de referência:  $G_{res} \approx 1$ ). Se não for o caso, determinação do factor correctivo a aplicar aos valores experimentais de  $G_{res}$  em que foi utilizada uma amostra de referência inadequada [5, 10].

A terminar, fica uma interrogação: sendo empírica a curva universal, será possível deduzir a sua expressão por via teórica?

| $G_{res}(z) = \frac{A_1 - A_2}{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^p} + A_2$ |                           | $z = y \cdot \Sigma_{tot}(E_{res}) \cdot \sqrt{\frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma}}$ |                         |                       |                       |
|---|---------------------------|---|-------------------------|-----------------------|-----------------------|
| GEOMETRIA   | y<br>(cm)                 | Parâmetros da curva universal   |                         |                       |                       |
|   |                           | A <sub>1</sub>  | A <sub>2</sub>          | z <sub>0</sub>        | p                     |
| <b>FIOS</b><br>(raio = R)   | y = 2R                    | <b>1,000</b><br>± 0,005   | <b>0,060</b><br>± 0,011 | <b>2,70</b><br>± 0,09 | <b>0,82</b><br>± 0,02 |
| <b>CILINDROS</b><br>(raio=R; altura=h;<br>1 ≤ h/R ≤ 3)                  | y = 1,65 $\frac{Rh}{R+h}$ |   |                         |                       |                       |
| <b>FOLHAS</b><br>(espessura = t)  | y = 1,5 t                 |   |                         |                       |                       |
| <b>ESFERAS</b><br>(raio = R)  | y = R                     |   |                         |                       |                       |

Quadro 2 - Condições de aplicação da curva universal.

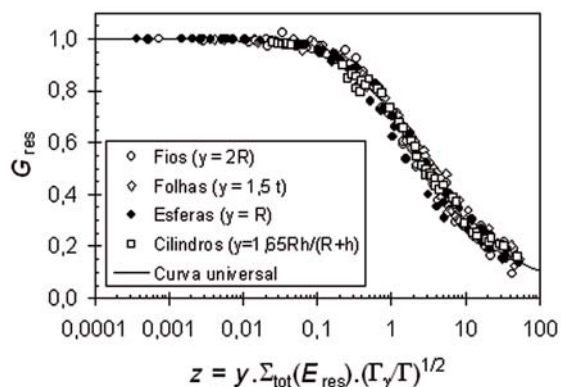


Fig. 3 - Curva universal e valores de  $G_{res}(z)$  obtidos pela técnica de Monte Carlo para amostras dos vários nuclídeos considerados ( $^{197}\text{Au}$ ,  $^{59}\text{Co}$ ,  $^{63}\text{Cu}$ ,  $^{115}\text{In}$ ,  $^{55}\text{Mn}$ ,  $^{185}\text{Re}$ ) em cada uma das quatro geometrias estudadas.

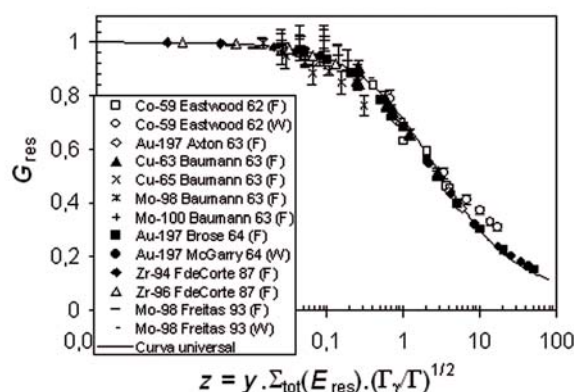


Fig. 4 - Comparação entre a curva universal e valores experimentais de  $G_{res}$  obtidos por outros autores para folhas (F) e fios (W) de diversos nuclídeos.

## REFERÊNCIAS

- [1] J. Gilat, Y. Gurfinkel: *Self-shielding in activation analysis*. Nucleonics 8 (1963) 143.
- [2] M. C. Lopes: *Sensibilidade de colectrões de cobalto a neutrões térmicos e epitérmicos com tratamento multicolisional da absorção atômica*. Tese de doutoramento, Universidade de Coimbra, 1991.
- [3] J. F. Briesmeister (Ed.): *MCNP - A general Monte Carlo n-particle transport code*, Los Alamos National Laboratory, Report LA-13709 - M (2000).
- [4] I. F. Gonçalves, E. Martinho, J. Salgado: *Monte Carlo calculation of resonance self-shielding factors for epithermal neutron spectra*. Radiation Physics and Chemistry 61 (2001) 461.
- [5] I. F. Gonçalves, E. Martinho, J. Salgado: *Monte Carlo calculation of neutron resonance self-shielding factors in wires of different materials*. Applied Radiation and Isotopes 55 (2001) 447.
- [6] I. F. Gonçalves, E. Martinho, J. Salgado: *Monte Carlo calculation of neutron resonance self-shielding factors in foils of different materials*. Applied Radiation and Isotopes 56 (2002) 945.
- [7] E. Martinho, I.F. Gonçalves, J. Salgado: *Universal curve of epithermal neutron resonance self-shielding factors in foils, wires and spheres*. Applied Radiation and Isotopes 58 (2003) 371.

- [8] I. F. Gonçalves, E. Martinho, J. Salgado: *Extension to cylindrical samples of the universal curve of resonance neutron self-shielding factors*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B 213 (2004) 186.
- [9] J. Salgado, E. Martinho, I.F. Gonçalves: *The calculation of neutron self-shielding factors of a group of isolated resonances*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 260 (2) (2004) 317.
- [10] E. D. McGarry: *Measurements of the resonance neutron self-shielding in gold wires*. Transactions of the American Nuclear Society 7 (1964) 86.

## NOTAS

<sup>1</sup> A amostra pode ser um detector de neutrões por activação (disco ou fio de ouro, de cobalto, etc.); um detector de neutrões de corrente contínua (colectrão); um alvo a irradiar com neutrões para efeito de radioactivação, indução de danos estruturais; etc.

<sup>2</sup> A secção eficaz de um nuclídeo para uma dada reacção nuclear é a grandeza que caracteriza a probabilidade de ocorrência dessa reacção. As reacções nucleares com neutrões mais significativas no âmbito do presente estudo são as reacções de captura radiativa e as reacções de dispersão elástica.

<sup>3</sup> A expressão quaisquer nuclídeos traduz a extrapolação decorrente da coerência global dos resultados obtidos respeitantes a todos os nuclídeos envolvidos no estudo.