

# ESPECTROSCOPIA GAMA ESTIMULADA POR NÊUTRONS RÁPIDOS DE UMA FONTE AM-BE NA ESTIMATIVA DA CONCENTRAÇÃO DE METAIS USANDO MCNP5

*Gamma spectroscopy stimulated by fast neutron from Am-Be source to estimate the concentration of metals using MCNP5*

Adimir dos Santos<sup>1</sup>, Felipe Belonsi de Cintra<sup>2</sup>, Hélio Yoriyaz<sup>3</sup>, Rodrigo Sartorelo Salemi Viana<sup>4\*</sup>  
<sup>1,2,3,4</sup>Centro de Engenharia Nuclear – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – USP

\* Autor correspondente: rodrigossiviana@gmail.com

## Resumo

Utilizando o código de transporte de radiação MCNP5 foi simulado o espectro de emissão gama de amostras metálicas de proporção isotrópica natural de Fe, Al, Ni e Cu por reações (n,n') estimuladas por nêutrons rápidos de uma fonte de Am-Be com o objetivo de estimar tanto a presença como a concentração dos metais irradiados. As amostras foram simuladas como cilindros concêntricos sólidos. Para o Fe também foi modelado um objeto simulador cilíndrico de água com volume de  $3,4 \times 10^3 \text{ cm}^3$ , o metal estava uniformemente diluído na solução aquosa em diferentes concentrações. Também foram modelados a fonte de Am-Be e os detectores HPGe. Os espectros obtidos mostraram picos de emissão característicos de todos os metais irradiados e as concentrações foram estimadas com sucesso pela relação direta com a contagem dentro da margem de erro estatístico.

## Abstract

Using the code MCNP5 it was simulated the gamma spectrum of Fe, Al, Ni and Cu stimulated by (n,n') reactions from Am-Be neutron source. The main objective was estimate both the presence as concentrations of metals dispersed in aqueous solution. The sample was modeled in two ways. The first one the four metals were concentric cylindrical solids. The second one only the iron was diluted at different concentrations in a water phantom with  $3.4 \times 10^3 \text{ cm}^3$  volume. It was modeled too the HPGe detector and the Am-Be source. The results showed that respective emission pikes were all found for each material and the relationship between counts in the detectors channels and concentration was successfully matched considering the statistical error.

## 1. Introdução

A caracterização de materiais em amostras pode ser feita por uma infinidade de técnicas desde químicas até físicas, mais ou menos invasivas. No presente trabalho é apresentada a aplicação de uma técnica bastante recente e que vem ganhando destaque principalmente na área de diagnóstico clínico por se tratar de uma técnica que a princípio pode ser efetuada *in vivo*. A emissão de raios gama de materiais irradiados por nêutrons rápidos por meio de reações de espalhamento inelástico já esta sendo empregada em um novo tipo de tomografia, a NSECT (*Neutron Stimulated Emission Computed Tomography*, traduzindo, Tomografia Computadorizada de Emissão Estimulada por Nêutrons)[1,2,3].

Neste processo nêutrons rápidos são gerados por uma fonte que pode ser tanto o *Bin Hole* de um reator nuclear, uma fonte de Amerício-Berílio ou um acelerador provocando reações do tipo  $^2\text{H}(d,n)^3\text{He}$  para excitar o alvo por meio de reações de espalhamento inelástico (n,n') de forma que o relaxamento dos átomos na amostra produzem raios gama com energia correspondente as transições dos níveis nucleares de cada elemento presente evolvido na reação.

A excitação dos níveis nucleares requer que o nêutron tenha uma energia mínima que varia de material para material e que pode chegar até alguns MeVs como por exemplo no carbono, oxigênio e no nitrogênio. Portanto “encontrar” certo elemento esta diretamente associada tanto a energia como a probabilidade (ou seção de choque) do nêutron reagir com o material por espalhamento inelástico. Conseqüentemente a técnica limita-se a materiais com seção de choque para reações (n,n') considerável ou as contagens no detector provenientes da amostra se confundirão com o ruído eletrônico e radiação de fundo.

O espectro gerado pelos processos de decaimento são característicos de cada elemento e podem portanto ser empregados para obter informações

como composição da amostra uma vez identificado o pico de emissão no canal do detector.

## 2. Materiais e Métodos

### 2.1 MCNP5

Um dos códigos de transporte de radiação mais empregados pela comunidade científica o MCNP (Monte Carlo n-particle) está na versão 5.1.5, foi desenvolvido inicialmente na década de 50 pelo Laboratório Nacional de Los Alamos nos EUA para projetar núcleos de reatores nucleares. Inicialmente o código simulava apenas nêutrons e fótons por se tratar da radiação mais importante neste tipo de aplicação. Atualmente o MCNP também conta com o transporte de elétrons tornando-se um código multi-propósito, com trabalhos crescentes em medicina nuclear por exemplo[4,5,6].

Uma das características mais importantes do MCNP é sua abordagem estocástica para simular a fenomenologia de origem, transporte e interação da radiação com a matéria. Através de sucessivas amostragens de funções densidade de probabilidade por meio de série de números aleatórios é feito uma média dos parâmetros relevantes pedidos pelo usuário. Deste modo a equação de transporte de Boltzmann não é explicitamente resolvida para as partículas no meio, ao invés disso os eventos são explicitamente reproduzidos e histogramados. Por ser um método de solução numérico e iterativo as simulações requerem um grande poder de processamento computacional, mas por outro lado permitem modelagens extremamente complexas com condições de contorno inviáveis por métodos analíticos.

Neste trabalho foram empregados o transporte acoplado de nêutrons fótons e elétrons, os estimadores utilizados, ou *tallys*, foram o \*F8 para cálculo de deposição de energia e F4 para cálculo de fluxo num dado volume[7].

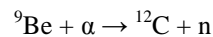
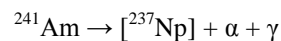
O *tally* \*F8 basicamente calcula num dado volume de interesse o número e energia das partículas que entraram e que saíram fazendo um balanço energético de quanta energia efetivamente ficou no meio, inicialmente é feito um histograma da distribuição energética criada (informação fornecida pelo *tally* F8, sem aspas) que em seguida é integrada resultando na energia total devido a todas as partículas que interagiram no meio (esta é a função da aspas no *tally* F8, a integração para todas as energias).

O *tally* F4 associado com o cartão E registra o número de partículas por canal energia por  $\text{cm}^2$  ou fluxo no volume de interesse, neste caso mais especificamente foi empregado o cartão F4:p pois o objetivo era obter o espectro gama no detector devido a excitação da amostra.

A biblioteca de seções de choque dos materiais envolvidos na simulação foram a ENDF/B IV, ENDF VI para eventos relacionados a nêutrons e ENDF/B VI para interação de fótons. O número de histórias simuladas foi de  $5 \times 10^7$  (veja em anexo um exemplo de input usado pelo MCNP5 para simular no caso o espectro da solução com ferro).

### 2.2 Fonte de Amerício-Berílio

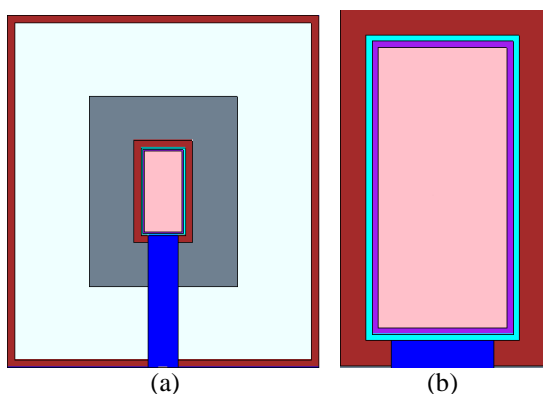
Fontes de Am-Be funcionam da seguinte forma: o amerício está presente em forma de óxido e o isótopo 241 é instável de meia vida de cerca de 432,2 anos, emitindo partículas alfa principalmente de cerca de 5,486keV (85,2%) e 13,9keV(12,8%) que reagem com a camada externa de Berílio metálico produzindo nêutrons rápidos ( $E_0 > 1\text{MeV}$ ), a reação nuclear induzida é:



Este tipo de fonte é muito utilizado na partida de reatores nucleares na sensibilização dos canais de partida.

A fonte de nêutrons empregada na simulação era constituída de uma capsula cilíndrica de raio 1,26cm e altura de 5,5cm contendo pó de amerício de densidade de  $13,67\text{g}/\text{cm}^3$  envolta por 0,12cm de berílio de densidade de  $1,848\text{g}/\text{cm}^3$  protegido por uma camada de alumínio de 0,12cm de densidade de  $2,699\text{g}/\text{cm}^3$ . A blindagem era contituida por uma camada de 0,5cm de chumbo de densidade de  $11,35\text{g}/\text{cm}^3$ , depois uma blindagem de parafina de 3cm e densidade de  $0,93\text{g}/\text{cm}^3$ , em seguida uma camada de cádmio de 5cm e densidade de  $8,65\text{g}/\text{cm}^3$  e por último uma camada final de chumbo de 0,5cm.

Tantas camadas de diferentes materiais são necessários devido à grande complexidade do espectro de emissão deste tipo de fonte, a blindagem de nêutrons também se constitui um problema devido a processos de moderação e ativação que emitem gamas não desejáveis. Em uma das faces do cilindro no eixo de simetria havia uma saída também cilíndrica de 1cm de raio. Veja Figura 1 para desenho esquemático da fonte.



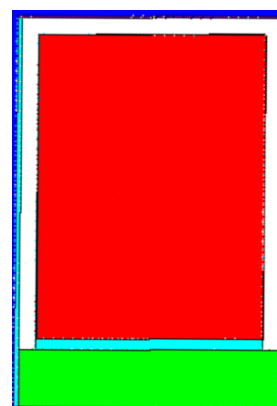
**Figura 1 - (a)** Desenho esquemático da fonte de Amerício-Berílio, A simetria é cilíndrica. (b) Detalhe expandido da parte interna da fonte até a primeira camada de chumbo (representado pela cor magenta).

Nas simulações a fonte emitia nêutrons de forma isotrópica e colimados na forma de um feixe cilíndrico pela blindagem, a saída da fonte foi disposta praticamente encostada às amostras.

### 2.3 Detectores de Germânio Hiperpuro (HPGe)

Talvez o detector mais comumente empregado na detecção de fótons, os detectores a base de cristais de germânio hiperpuro modelados nas simulações foram os GMX-40210 produzidos pela Ortec.

Todo o detector tem simetria cilíndrica, o cristal de germânio hiperpuro tinha raio de 2,945cm e altura de 7,9cm com densidade de 5,32g/cm<sup>3</sup> revestido por uma camada de alumínio de 0,01cm, a base era mais espessa com 0,28cm e densidade de 2,699g/cm<sup>3</sup>. O cristal e a carapaça interna de alumínio era apoiada em uma base de cobre de raio 3,375cm e altura de 1,5cm, a densidade usada foi de 8,96g/cm<sup>3</sup>. Uma camada adicional externa de alumínio de 0,13cm e mesma densidade envolve a lateral do detector, a frente é composta por uma janela de berílio de 0,05cm que é responsável por reduzir fótons de baixa energia (espectro de *Bremstrahlung*). Veja Figura 2 para observar o desenho esquemático.



**Figura 2** – Desenho esquemático de um dos detectores de germânio hiperpuro, o cristal em si está representado pela cor vermelha e a entrada do detector (janela de berílio) é a parte superior da figura.

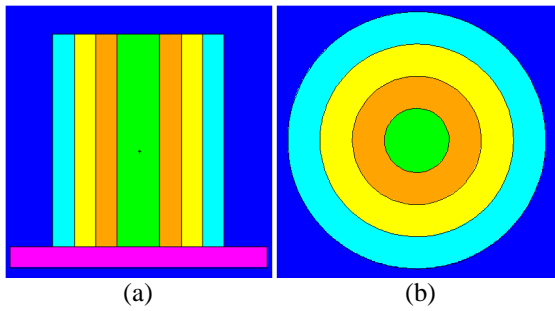
### 2.4 Amostras metálicas e objeto simulador

Os espectros foram obtidos para duas configurações diferentes. Na primeira, uma série de cinco metais na forma de sólidos compactos em formato de cilindros concêntricos de 1cm de espessura e 30cm de altura cada foram dispostos a cerca de 3cm da saída da fonte de Am-Be, veja figura 3. As densidades usadas foram estão na tabela 1

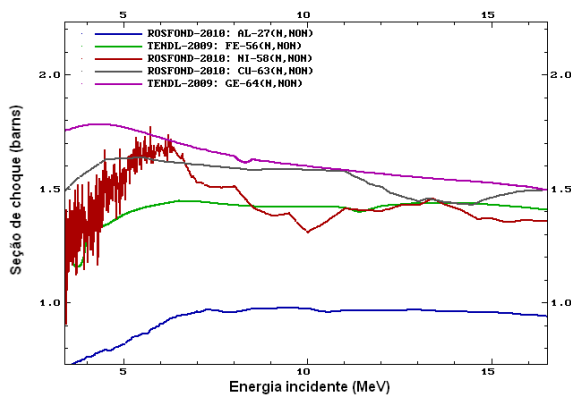
	Cu	Ni	Fe	Al
Densidade (g/cm <sup>3</sup> )	8,960	8,902	7,874	2,699

**Tabela 1** – Densidades usadas na simulação da amostra do cilindro composto por metais em estado sólido e compacto nas concentrações naturais[8].

A ordem dos materiais foi escolhida usando como critério as seções de choque para espalhamento inelástico. A Figura 4 ilustra a seção de choque dos metais usados, assim como a do germânio usado no detector. Materiais com seções de choque maiores ficaram no interior onde o fluxo de partículas é menor, à medida que se aproxima da periferia onde o fluxo é maior estão situados materiais com seção de choque menor de forma a compensar o fenômeno de atenuação exponencial com a taxa de reação resultando em diferenças entre a amplitude dos picos minimizada. Esse artifício geométrico permite leituras mais simplificadas à medida que picos inicialmente menores têm mais contagens e picos já muito bem definidos tem uma pequena redução sem prejuízo para a análise do espectro.



**Figura 3** - (a) Corte de visada XZ pelo eixo de simetria das amostras metálicas apoiadas por um suporte de lucite, a ordem dos metais do centro para a periferia é respectivamente: Cu, Ni, Fe, Al. (b) Corte de visada XY das amostras metálicas.



**Figura 4** – Seções de Choque para reações de espalhamento inelástico,  $(n,n')$ , para faixa energética rápida[9].

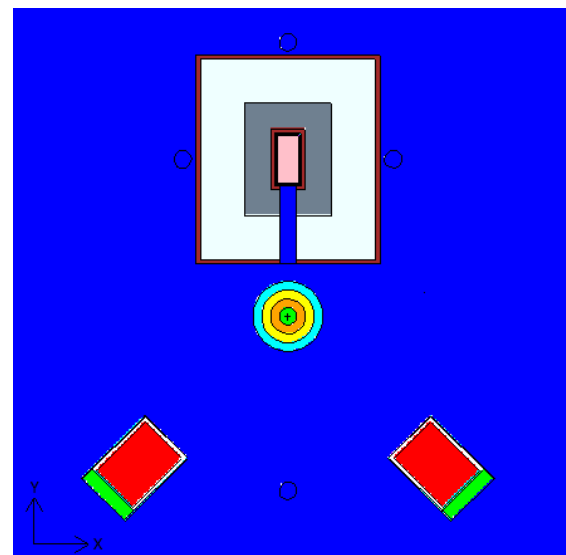
A segunda amostra irradiada era um cilindro de água de raio 6cm e altura de 30cm, totalizando um volume de  $3,39 \times 10^3 \text{cm}^3$  situado na mesma posição da amostra composta só de metais. Neste objeto simulador de água havia ferro uniformemente diluído em uma concentração de referência de  $1,01 \times 10^{-2} \text{g/ml}$  e em seguida com uma concentração de  $2,04 \times 10^{-2} \text{g/ml}$ , ou seja, um aumento de cerca de 2,02 vezes. Espera-se observar a influência da concentração nas contagens obtidas pelos detectores desde que mantida a mesma configuração geométrica e da fonte.

## 2.5 Aparato experimental

Definidos as dimensões e composições da fonte, detectores e amostras tanto metálicas como as soluções a serem irradiadas foi montado no MCNP5 a configuração ilustrada na figura 5. Dois detectores foram usados dispostos a formar um ângulo de  $45^\circ$  entre o eixo de simetria do feixe proveniente da fonte a cerca de 15,52cm. Os detectores foram dispostos desta maneira de forma

a evitar a incidência direta de partículas da fonte, tanto de nêutrons como de fótons, especialmente os de 59,5keV (35,9%) e 13,9keV (42,7%).

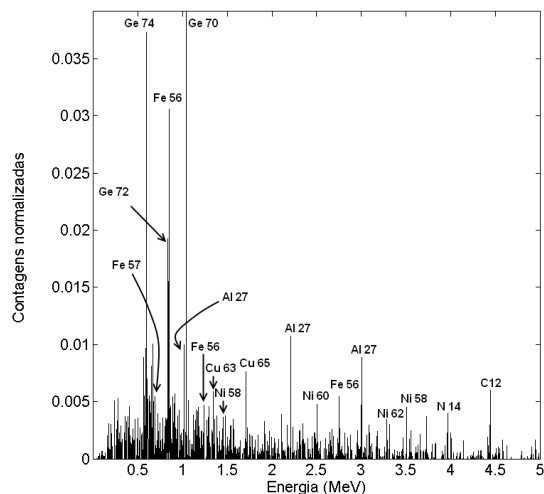
O cálculo de energia depositada foi efetuado em seis esferas de 1cm de raio de ar com mesma composição e densidade do meio, quatro esferas foram posicionadas equidistantes nas laterais, duas centradas no plano XY e duas centradas no plano XZ, uma esfera foi colocada atrás da fonte centrada no eixo Y e uma ultima esfera foi posicionada entre os detectores. Um anel de 1cm de espessura, 1cm de altura e raio interno de 100cm foi posicionado centrado na amostra no plano XZ.



**Figura 5** - Posição relativa da fonte, detectores, amostras metálicas e volumes para detecção da energia depositada (esferas azuis), conjunto imerso em ar (cor azul) de densidade  $1,205 \times 10^{-3} \text{g/cm}^3$ , plano de visada XY.

## 3. Resultados e Discussão

A Figura 6 apresenta o espectro de emissão gama das amostras metálicas obtidos com 2500 canais de energia igualmente distribuídos entre 0 e 5MeV. Todos os quatro metais foram identificados por pelo menos dois picos de emissão, a Tabela 2 agrupa as energias associadas aos isótopos de cada metal.

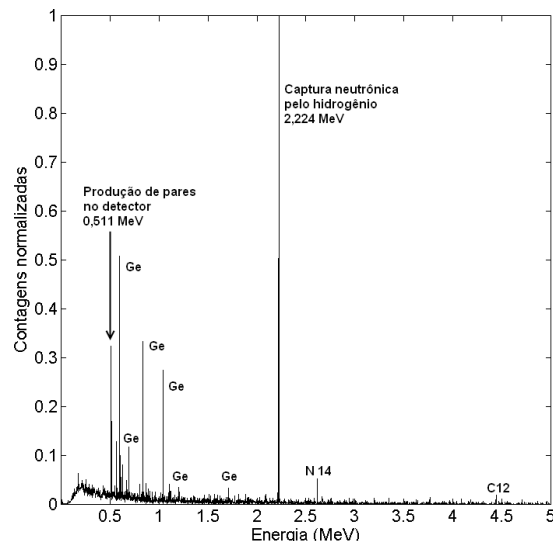


**Figura 6** – Espectro de emissão gama induzido por reações (n,n') por nêutrons rápidos da fonte Am-Be no cilindro metálico.

Isótopos	E (keV)
C 12	4438
N 14	3947
Ge 70	1039
Ge 72	834
Ge 74	595
Cu 63	1341
Cu 65	1724
Ni 58	1454/3530
Ni 60	2505
Ni 62	3270
Fe 56	846/1238/2753
Fe 57	692
Al 27	1014/2211/3004

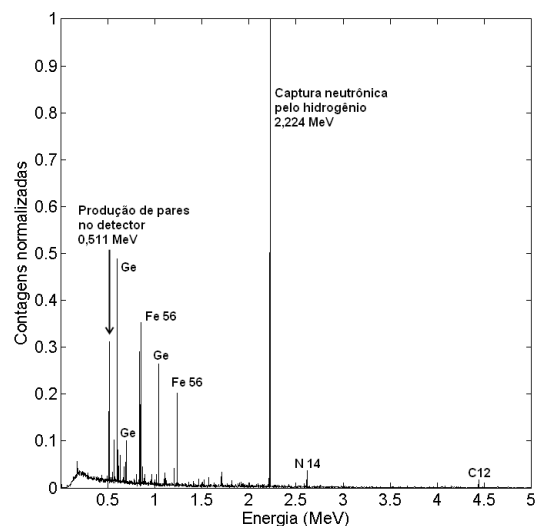
**Tabela 2** – Energias associadas a cada isótopo identificado a partir do espectro da Figura 6.

Além de registrar os picos de emissão dos metais a figura 6 também apresenta contagens em canais correspondentes a níveis energéticos do germânio presente nos detectores, do carbono presente na base de lucite e do nitrogênio do ar. Isso indica o grau de sensibilidade da técnica, visto que permitiu caracterizar também o meio onde a amostra estava. Em seguida foi simulada a irradiação dos objetos simuladores a fim de obter uma relação entre contagens e concentração. Inicialmente foi obtido o espectro de fundo ou *background* (BG) do objeto simulador sem ferro, na Figura 7 é possível reconhecer picos associados somente à captura de nêutrons pelo hidrogênio (2224keV) e da produção de pares no HPGe (511keV), além dos picos associados a interação com o ar e a lucite.



**Figura 7** – Espectro de emissão do objeto simulador sem a presença de ferro diluído, dados normalizados pelas contagens do pico do hidrogênio.

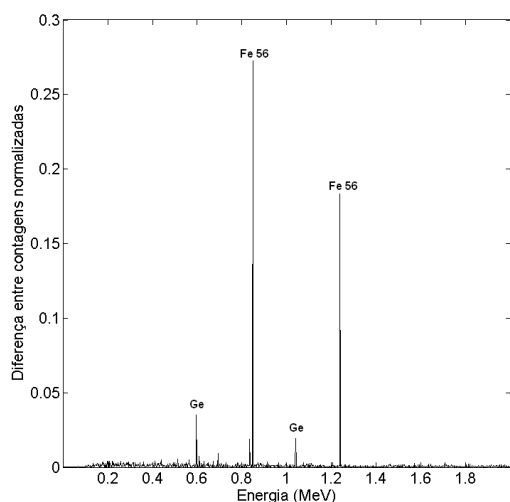
Com o espectro de fundo é possível subtraí-lo do espectro das soluções com ferro para evidenciar contagens correspondentes apenas a inserção do ferro na simulação, a Figura 8 mostra o espectro sem a remoção do BG.



**Figura 8** – Espectro de emissão do objeto simulador com ferro diluído na solução de referência, concentração de  $1,01 \times 10^{-2} \text{g/ml}$ , dados normalizados pelas contagens do pico do hidrogênio.

Com os espectros das amostras de ambas as concentrações (a solução de referência com  $1,01 \times 10^{-2} \text{g/ml}$  de ferro e a segunda solução com  $2,04 \times 10^{-2} \text{g/ml}$  de ferro em água) foi obtida a

diferença entre a de maior concentração pela de referência, veja a Figura 9.



**Figura 9** – Diferença dos espectros de emissão do objeto simulador entre o de maior pelo de menor concentração de ferro, contagens normalizadas pelo pico de captura neutrônica do hidrogênio.

No espectro da amostra de referência as contagens normalizadas dos picos referentes ao Fe 56 foram de 0,35 e 0,20 enquanto na de maior concentração foram de 0,62 e 0,38 o que corresponde num fator médio de aproximadamente de 1,83 vezes enquanto a concentração aumentou 2,02 vezes. A diferença entre espectros evidenciou que a amostra com maior concentração tem contagens para picos do ferro maior que a solução de referência, os picos de produção de gamas no detector também foram maiores porque o ferro alterou o espectro energético que vinha da amostra refletindo no número de eventos no HPGe.

Finalmente foram obtidas as energias depositadas nas esferas e no anel de ar. A dose absorvida média nas esferas laterais a fonte foi de  $2,19(30) \times 10^{-9}$  Gy/nêutron, na esfera posicionada atrás da fonte,  $7,0(25) \times 10^{-10}$  Gy/nêutron, na esfera entre os detectores foi de  $5,1(50) \times 10^{-11}$  Gy/nêutron e no anel a dose foi de  $4,65(80) \times 10^{-9}$  Gy/nêutron.

#### 4. Conclusão

Neste trabalho foram simulados com o uso do código de transporte MCNP5 espectros gama formados por relaxamento de núcleos metálicos excitados por reações de espalhamento inelástico de nêutrons provenientes de uma típica fonte de Amerício-Berílio. Foram usadas amostras cilíndricas sólidas de Ni, Fe, Cu e Al de composição natural e uma solução aquosa de ferro em duas concentrações diferentes.

Os resultados mostram que foi possível identificar todos os materiais presentes em até mais de uma variedade isotópica. Não só foi possível detectar os metais como também identificar elementos como oxigênio, nitrogênio e carbono, presentes no aparato simulado e no meio. O objeto simulador forneceu espectros que permitiram estabelecer uma relação entre contagens num dado canal com a concentração de elemento na solução, a relação obtida entre concentração foi cerca de 1 para 0,9 para esta configuração experimental, é importante lembrar que qualquer alteração de fonte, detectores ou amostra terá relação direta na constante de proporcionalidade. Como sugestão para trabalhos futuros está a possibilidade de se mapear esta relação e inferir se há ou não a presença de limiares, ou mesmo em que intervalo de concentrações esta relação se mantém linear em função do tipo de elemento disperso na solução.

A possibilidade de implementação clínica desta técnica motivou o cálculo de deposição de energia em determinadas posições em torno do aparato devido a fonte e do espalhamento e interação de nêutrons e gamas, os resultados de dose absorvida relativa (Gy/ nêutrons) permitem estimar a dose absorvida caso um futuro experimento seja realmente montado.

#### 5. Agradecimentos

Os autores gostariam de agradecer a Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) e a Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo (FAPESP), processo 2010/04206-4 pelo suporte financeiro parcial.

#### 6. Referências

- [1] Anuj J. Kapadia *et al*, “Non-Invasive Estimation of Potassium (39K) in Bovine Liver Using Neutron Stimulated Emission Computed Tomography (NSECT)”, IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, 2006.
- [2] Anuj J. Kapadia *et al*, “Neutron Spectroscopy of Mouse Using Neutron Stimulated Emission Computed Tomography (NSECT)”, IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, 2006.
- [3] E. Bender, A. Kapadia and S. Amy, “Breast cancer detection using neutron stimulated emission computed tomography: Prominent elements and dose requirements”, *Med. Phys.*, 34, 3866-3871.
- [4] Love P A *et al*, “Comparison of EGS4 and MCNP Monte Carlo codes when calculating radiotherapy depth doses”, *Phys. Med. Bio.*, 43(5) 1351-7, 1998.
- [5] Chiavassa S *et al*, “Validation of a personalized dosimetric evaluation tool (Oedipe) for targeted radiotherapy based on the Monte Carlo MCNPX code”, *Phys. Med. Bio.*, 51(3),601-16, 2006.
- [6] Chin M P, Spyrou N M, “A detailed Monte Carlo accounting of radiation transport in the brain during BNCT”, *Appl. Radiat. Iso.*, 67(7-8 Suppl), 164-7, 2009.

[7] Oak Ridge National Laboratory, "MCNP5-Monte Carlo N-Particle Transport System; RISCC Computer Code Collection", Los Alamos National Laboratory, Novo México, 2000.

[8] Kaeri, Nuclear Data Evaluation Lab, url: <http://atom.kaeri.re.kr/> , acessado em 30 de julho de 2010.

[9] Cross Section Evaluation Working Group, ENDEIB-VI, Report BNL-NCS-17541-ENDF-201, editado por P. F. Rose, National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, Upton, Nova Iorque. 1991.