

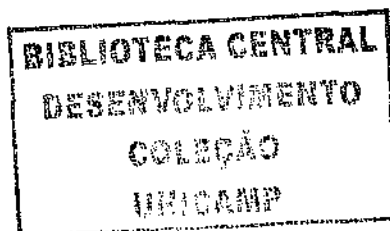
**UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS
FACULDADE DE ENGENHARIA QUÍMICA
SISTEMAS DE PROCESSOS QUÍMICOS E INFORMÁTICA**

**LEVANTAMENTO DE PARÂMETROS
NUCLEARES DO REATOR TRIGA MARK I IPR R1
COM CONFIGURAÇÃO CONCÊNTRICA VISANDO A APLICAÇÃO DA
TÉCNICA DE ATIVAÇÃO NEUTRÔNICA K_0**

**Autor: Milton Batista Franco
Orientador: Elias Basile Tambourgi**

**Tese apresentada à Faculdade de Engenharia Química como parte dos
requisitos exigidos para a obtenção do título de Doutor em Engenharia
Química.**

**Campinas – São Paulo
Dezembro - 2006**



UNIDADE	BC
Nº CHAMADA:	T/UNICAMP
	F848L
V.	Ed
TOMBO BC/	71941
PROC	16-14507
C	☐
D	☒
PREÇO	11,00
DATA	4-9-07
BIB-ID	406470

FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA
BIBLIOTECA DA ÁREA DE ENGENHARIA E ARQUITETURA - BAE - UNICAMP

F848L Franco, Milton Batista
Levantamento de parâmetros nucleares do reator
TRIGA MARK I IPR R1 com configuração concêntrica
visando a aplicação da técnica de ativação neutrônica (KO)
/ Milton Batista Franco.--Campinas, SP: [s.n.], 2006.

Orientador: Elias Basile Tambourgi.
Tese (Doutorado) - Universidade Estadual de
Campinas, Faculdade de Engenharia Química.

1. Reatores nucleares. 2. análise por ativação nuclear.
3. Radioquímica. I. Tambourgi, Elias Basile. II.
Universidade Estadual de Campinas. Faculdade de
Engenharia Química. III. Título.

Título em Inglês: Nuclear reactor TRIGA MARK I IPR R1 ,nuclear parameter to
obtain the neutronic activation technique

Palavras-chave em Inglês: Nuclear Reactors, Triga Reactor, Neutronic Activation

Área de concentração: Processos Químicos e Informática

Titulação: Doutor em Engenharia Química

Banca examinadora: Ana Paula Brescancini Rabelo, Luiz Carlos Bertevelo, Maristhela
Passoni de Araújo e Elisabete Jordão

Data da defesa: 15/12/2006

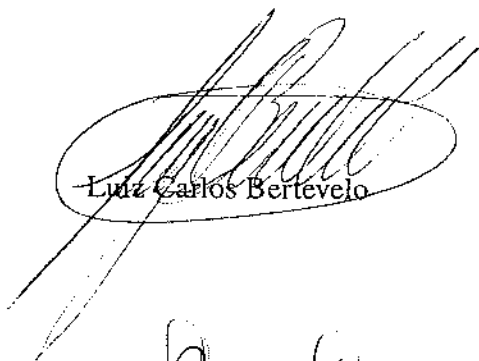
Programa de Pós-Graduação: Engenharia Química

* Conferenciado e classificado na BAE por [nome] (KO)
11/04/07

Tese de Doutorado defendida por Milton Batista Franco em 07 de dezembro de 2006 , e aprovada pela banca constituída pelos seguintes doutores:



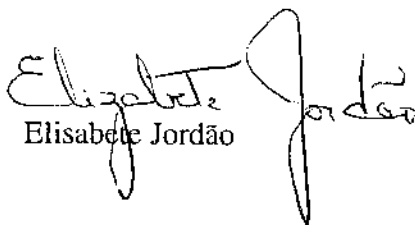
Ana Paula Brescancini Rabelo



Luiz Carlos Bertevelo



Maristhela Passoni de Araújo Marin

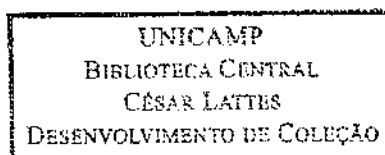


Elisabete Jordão



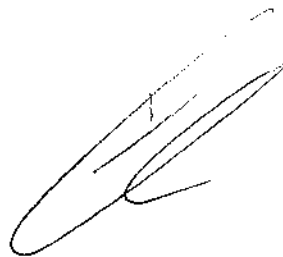
Elias Basile Tambourgi

200719536



Batista Franco.

Esta versão corresponde à final da Tese de Doutorado defendida por Milton

A handwritten signature in black ink, consisting of a large, stylized 'E' followed by a series of loops and a final horizontal stroke.

Prof. Dr . Elias Basile Tambourgi-orientador

***Aos meus filhos Gui, Beto e
João.***

***À Glória Maria minha amiga e
companheira.***

AGRADECIMENTOS

Ao Professor Elias Basile Tambourgi pela orientação, amizade e estímulo e aos demais professores da Faculdade de Engenharia Química da Universidade Estadual de Campinas.

À direção do Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear CDTN/CNEN, que através de sua política de formação e treinamento de pessoal, permitiu o desenvolvimento desse trabalho.

À Dra. Claudia de Vilhena Schayer Sabino, a quem admiro e respeito tanto profissionalmente como pessoalmente. Agradeço pela sugestão do assunto, amizade e incentivo constante.

Ao Dr. Roberto Pellacani Guedes Monteiro chefe da Supervisão de Química e Mineralogia do CDTN, pela amizade, apoio e incentivo.

Ao Engenheiro Zildete Rocha, chefe da Supervisão de Irradiação e Radioanálise do CDTN, por toda presteza durante o desenvolvimento do trabalho.

Ao Mestre Geraldo Frederico Kastner pela cooperação, acompanhamento e discussão das operações práticas e resultados.

Às Mestres Renata Vilela Cecílio Dias, Eliana Aparecida Nonato e Flávia Regina de Amorim, pela amizade, incentivo e estímulo.

À Dra. Juliana Batista da Silva pela ajuda nas correções e formatação do trabalho.

À Dra. Maria Ângela de B. C. Menezes pelas sugestões, orientações e incentivo.

Ao Mestre Fausto Maretti Junior e aos técnicos Paulo Fernando Oliveira e Luiz Otávio Sette Câmara pelas irradiações em todas as etapas instrumentais.

À mestre Lenira Lúcia Santos Ferreira, às bibliotecárias Nívia de Almeida Lima e Virgínia Lúcia Rodrigues pela cooperação e presteza na obtenção das referências bibliográficas.

Aos Técnicos Ângela Maria Amaral, Oliene dos Reis Fagundes, Adilson de Castro de Assis e João Bôsko Guedes que sempre me apoiaram e incentivaram.

Aos meus pais, José e Antônio, os principais responsáveis por tudo isso.

A todos os colegas da Supervisão de Química e Mineralogia que direta ou indiretamente contribuíram para a realização desse trabalho

SUMÁRIO

1	FUNDAMENTOS TEÓRICOS	ERRO! INDICADOR NÃO DEFINIDO.
1.1.	Reatores de pesquisa	Erro! Indicador não definido.
1.2.	Reator Triga – IPR – R1	Erro! Indicador não definido.
1.2.1.	Instrumentação e controle	Erro! Indicador não definido.
1.2.2.	Dispositivos de irradiação.....	Erro! Indicador não definido.
1.2.3.	Segurança e radioproteção	Erro! Indicador não definido.
1.2.4.	Operação do reator	Erro! Indicador não definido.
1.2.5.	Campos de utilização do reator.....	Erro! Indicador não definido.
1.3.	Espectro de energia dos nêutrons do reator.....	Erro! Indicador não definido.
1.3.1.	Seção de choque para reações (n, γ) e fluxo de nêutrons .	Erro! Indicador não definido.
1.3.2.	Energia efetiva de corte de cádmio	Erro! Indicador não definido.
1.4.	Equação geral da análise por ativação neutrônica	Erro! Indicador não definido.
1.5.	Ativação Neutrônica no Reator TRIGA-IPR-R1 do CDTN/BH	Erro! Indicador não definido.
1.6.	Taxa de reação por núcleo.....	Erro! Indicador não definido.
1.6.1.	Convenção de Högdahl.....	Erro! Indicador não definido.
1.6.2.	Convenção de Westcott	Erro! Indicador não definido.
1.7.	Métodos de análise por ativação neutrônica instrumental	Erro! Indicador não definido.
1.7.1.	Método absoluto.....	Erro! Indicador não definido.
1.7.2.	Método do comparador múltiplo ou relativo.	Erro! Indicador não definido.
1.7.3.	Métodos semi-absolutos.....	Erro! Indicador não definido.

2 ASPECTOS TEÓRICOS DA TÉCNICA PARAMÉTRICA K_0 ERRO! INDICADOR NÃO DEFINIDO.

2.1. Desenvolvimento das equações do método k_0 .Erro! Indicador não definido.

2.2. Método para determinação do índice espectral e da temperatura de nêutronsErro! Indicador não definido.

2.3. Métodos para a determinação de α Erro! Indicador não definido.

2.3.1. Método de multimonitores com cobertura de cádmio ..Erro! Indicador não definido.

2.3.2. Método da razão de cádmio para multimonitores.....Erro! Indicador não definido.

2.3.3. Método de multimonitores sem cobertura de cádmio ..Erro! Indicador não definido.

2.3.4. Incertezas e propagação das incertezas na determinação de α Erro! Indicador não definido.

2.4. Métodos para determinação de f Erro! Indicador não definido.

2.4.1. Incertezas no cálculo de f Erro! Indicador não definido.

2.5. Determinação do fluxo térmicoErro! Indicador não definido.

2.6. Método para determinação da eficiência do detetorErro! Indicador não definido.

2.7. Fatores que influenciam a exatidão, precisão e aplicabilidade do método k_0 . Erro! Indicador não definido.

2.7.1. Variação do fluxo de nêutrons durante a irradiaçãoErro! Indicador não definido.

2.7.2. Irradiação intermitente.....Erro! Indicador não definido.

2.7.3. Outras limitações.....Erro! Indicador não definido.

3 MATERIAIS E MÉTODOS..... ERRO! INDICADOR NÃO DEFINIDO.

3.1. Padrões e materiais de referência usados	Erro! Indicador não definido.
3.2. Espectrometria gama: determinação experimental da área líquida dos fotopicos γ e sua incerteza.....	Erro! Indicador não definido.
3.3. Eficiência do detector.....	Erro! Indicador não definido.
3.4. Irradiações.....	Erro! Indicador não definido.
3.5. Determinação de f , α , fluxos térmicos, φ_t epitérmico, φ_e e temperatura de nêutrons, T_n	Erro! Indicador não definido.
3.6. Avaliação do método	Erro! Indicador não definido.
4 RESULTADOS	ERRO! INDICADOR NÃO DEFINIDO.
4.1. Cálculo da Eficiência	Erro! Indicador não definido.
4.2. Cálculo dos Parâmetros	Erro! Indicador não definido.
4.2.1. Teste de Homogeneidade de Fluxo	Erro! Indicador não definido.
4.2.2. Cálculos de f , α , φ_t , φ_e , e T_n	Erro! Indicador não definido.
4.3. Análise de materiais de referência	Erro! Indicador não definido.
4.4. Intercomparações	Erro! Indicador não definido.
4.5. Precisão do método.....	Erro! Indicador não definido.
4.6. Exatidão do método.....	Erro! Indicador não definido.
CAPÍTULO V - DISCUSSÕES, CONCLUSÕES E SUGESTÕES.....	ERRO! INDICADOR NÃO DEFINIDO.
5 DISCUSSÕES, CONCLUSÕES E SUGESTÕES	ERRO! INDICADOR NÃO DEFINIDO.

6 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS ERRO! INDICADOR NÃO DEFINIDO.

7 ANEXOS..... ERRO! INDICADOR NÃO DEFINIDO.

Anexo 1 – Cálculo de eficiências em diferentes geometrias e suas respectivas incertezas.....Erro! Indicador não definido.

Anexo 1 - Planilha de cálculo da eficiência do detector de HPGe em tres geometrias diferentes.....Erro! Indicador não definido.

Anexo 2 – Planilha de cálculo dos parâmetros em uma das experiências na mesa.

Erro! Indicador não definido.

LISTA DE FIGURAS

FIGURA 1 - Reator Nuclear de Pesquisa TRIGA IPR-R1	8
FIGURA 2 - Vista em Corte do Reator	8
FIGURA 3 - Núcleo do Reator: a) Diagrama, b) Maquete e c) Placa Superior (MESQUITA, 2005).	9
FIGURA 4 - Secção de choque $\sigma(E)$ para reações (n,γ) versus E em escala log-log (DE CORTE, 1986).	19
FIGURA 5 - Distribuição do fluxo de nêutrons do reator $\phi'(E)$ versus E em escala log-log (DE CORTE, 1986).	19
FIGURA 6 - (a) Secção de choque total do Cd ($\sigma_{tot,Cd}(E)$), versus E e (b) funções de transmissão de nêutrons do Cd, $T(E)$ e $t(E)$, versus E (DE CORTE, 1986), onde $t(E)$ é uma função de transmissão ideal, tipo degrau.	22
FIGURA 7 - Análise por ativação neutrônica.	30
FIGURA 8 - Representação esquemática dos procedimentos seguidos nos diferentes métodos de análise por AAN.	47
FIGURA 9 - Cálculo da área total de um pico e do "background"	79
FIGURA 10 - Geometrias de contagem.	86
FIGURA 11 - Fluxograma típico da análise por ativação neutrônica.	87
FIGURA 12 - Irradiação das amostras.	90
FIGURA 13 - Laboratório de contagem para análise por ativação neutrônica.	90
FIGURA 14 - Espectro de uma fonte de Eu, à distância de 20 cm fonte-detetor.	95
FIGURA 15 - Curva de eficiência de um detetor HPGe (germânio ultra puro) para a distância de 20 cm fonte-detetor.	97

FIGURA 16 - Espectro de Lu, Au e Zr para a posição 1 de irradiação em uma experiência na mesa giratória.	100
FIGURA 17 - Valores de alfa para a mesa parada e girando.	102
FIGURA 18 - Valores de f, mesa parada e girando.	103
FIGURA 19 - Índice espectral, mesa parada e girando.	104
FIGURA 20 - $g(T_n)$, mesa girando.	105
FIGURA 21 - Alfa, f e índice espectral calculados no tubo central.	106
FIGURA 22 - Valores médios das concentrações e incertezas dos elementos analisados (TABELA 24): comparação entre os métodos relativos e k_0	121
FIGURA 23 - Distribuição de frequência das exatidões do método k_0 na mesa giratória TABELAS 15,16,17,18,19,20 e 23.	123
FIGURA 24 - Distribuição de frequência das exatidões do método k_0 no tubo central TABELAS 15,16,17, 18 e 19.	123

LISTA DE TABELAS

TABELA 1- Alguns Exemplos de Análises	28
TABELA 2- Parâmetros Relacionados às Análises	29
TABELA 3 - Precisão do método k_0 . (DE CORTE, 1986b)	72
TABELA 4 - Alguns exemplos de interferências por reações de limiar (INSTITUTO PERUANO DE ENERGIA NUCLEAR, 1995; XILEI et al., 1989)	76
TABELA 5 - Características das fontes padrões utilizadas para determinar a curva de eficiência de detecção do HPGe (germânio ultra puro).	84
TABELA 6 - Principais incertezas relativas percentuais consideradas no cálculo da incerteza da eficiência de detecção (%)	85
TABELA 7 - Condições experimentais: teste de homogeneidade de fluxo, determinação de α	92
TABELA 8 - Energias, áreas e incertezas nas áreas de uma fonte de ^{152}Eu à distância 20 cm fonte-detetor.	96
TABELA 9 - Energias, eficiências e incertezas nas eficiências em uma curva de eficiência com várias fontes à distância de 20 cm fonte-detetor.	96
TABELA 10 - Teste de homogeneidade do fluxo térmico com a irradiação de 25 μg de Au.	99
TABELA 11 - Energias, áreas, eficiências e as respectivas incertezas para os isótopos ^{177}Lu , ^{198}Au e ^{95}Zr e ^{97}Zr em uma das posições das experiências na mesa.	100
TABELA 12 – Resumo de uma planilha de cálculo dos parâmetros na mesa. ..	101
TABELA 13 - Resumo de uma planilha de cálculo dos parâmetros no tubo central.	101

TABELA 14 - Parâmetros determinados no reator TRIGA IPR R1, considerando os valores de α	107
TABELA 15 - Exatidão e precisão do método de análise por Ativação Neutrônica k_0 : concentração dos elementos na amostra GXR-5, comparados com os valores certificados.	110
TABELA 16 - Exatidão e precisão do método de análise por Ativação Neutrônica k_0 : concentração dos elementos na amostra GXR-6, comparados com os valores certificados.	111
TABELA 17 - Exatidão e precisão do método de análise por Ativação Neutrônica k_0 : concentração dos elementos na amostra GXR-2, comparados com os valores certificados.	112
TABELA 18 - Exatidão e precisão do método de análise por Ativação Neutrônica k_0 : concentração dos elementos na amostra SOLO-7, comparados com os valores certificados.	113
TABELA 19 - Exatidão e precisão do método de análise por Ativação Neutrônica k_0 : concentração dos elementos na amostra SOLO-5, comparados com os valores certificados.	114
TABELA 20 - Exatidão e precisão do método de análise por Ativação Neutrônica k_0 : concentração dos elementos na amostra SOLO-1, comparados com os valores certificados.	115
TABELA 21 - Determinação de elementos terras raras , usando o método k_0 e a convenção de Westcott.	116
TABELA 22 - Elementos traços em sedimento de rio.	117
TABELA 23 - Elementos menores e traços em sedimento de lago.	118

TABELA 24 - Resultados de análises pelos métodos de ativação neutrônica comparativa e k_0 na mesa giratória. Comparação entre os valores encontrados, $\bar{x}$, desvios e a precisão, CV.	120
--	-----

LISTA DE SÍMBOLOS

AAN	Análise por ativação neutrônica
α	Parâmetro que descreve o desvio do fluxo epitérmico da lei $1/E$
$\sigma(v)$	Secção de choque para reações (n,γ) em barn [$1\text{barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$], a velocidade v do nêutron em cm.s^{-1}
$\sigma(v_0)$	secção de choque à velocidade de 2200 m.s^{-1}
δ	Densidade
δ_e	Densidade da distribuição epitérmica
δ_m	Densidade da distribuição Maxwelliana
θ	Abundância isotópica
θ_A	Abundância isotópica do isótopo A
ε_γ	Eficiência absoluta
ε_r	Eficiência relativa
$\hat{\sigma}$	Secção de choque efetiva
$\hat{\sigma}_m$	Secção de choque efetiva para um espectro Maxwelliano
σ_0	Secção de choque para $v_n = v_0 = 2200\text{m/s}$
$\sigma_{tot, Cd}$	Secção de choque total do cádmio em cm^2 (soma das seções de choque de cada isótopo natural do cádmio)
v	Velocidade do nêutron
ϕ	Fluxo total de nêutrons [$\text{nêutrons.cm}^{-2} . \text{s}^{-1}$]
ϕ_e	Fluxo de nêutrons epitérmicos
ϕ_r	Fluxo de nêutrons rápidos
ϕ_t	Fluxo de nêutrons térmicos
τ	Vida média ($\tau = 1/\lambda$)
ρ	Concentração do elemento em massa
A_B	Atividade produzida do nuclídeo B ao final da irradiação (desintegração/s)
B	Área do background
$C = \frac{(1 - e^{-\lambda_m t_m})}{\lambda_m t_m}$	Fator que corrige o decaimento durante as contagens
C_i	Contagem líquida (área líquida do pico de absorção total)

C_t	Contagem total (área do pico + contagem de fundo)
C_{ts}	Contagem total por unidade de tempo
$D = e^{-\lambda_d}$	Fator que corrige o decaimento entre o final da irradiação e o início das contagens
E_c	Energia efetiva de corte de um filtro de nêutrons
E_{Cd}	Energia efetiva de corte de um filtro de cádmio
E_r	Energia de ressonância
E	Energia do nêutrons
E_γ	Energia do fóton gama
$\bar{E}_r$	Energia efetiva de ressonância, engloba a secção de choque térmica (σ_0) e a integral de ressonância I_0
E_{ref}	Por convenção é assumido o valor 1eV
E_0	Energia do nêutron em equilíbrio térmico [0,0253 eV (Maxwelliana)]
$f = \frac{\varphi_t}{\varphi_e}$	Razão entre os fluxos térmicos e epitérmico
F_B	Número de átomos do nuclídeo B que se formam por unidade de tempo [s^{-1}]
f_g	Fator de correção sobre a contagem líquida do fotopico gama que corrige os efeitos de geometria, tempo morto, empilhamento no multicanal e atenuação por auto absorção na própria amostra
F_{Cd}	Fator de transmissão epitérmica de cádmio
$g(T)$	Fator de correção introduzido por Westcott para corrigir qualquer desvio de $\sigma(v)$
I'	Integral de ressonância reduzida de Westcott
I_0	Integral de ressonância definida a partir da energia de corte de cádmio, ($E_{Cd}= 0,55\text{eV}$)
$I_0(\alpha)$	Integral de ressonância corrigida, considerando a influência de α
K	Constante de Boltzmann
M	Massa molar
m	Massa da amostra
N	Densidade neutrônica volumétrica
N_A	Número de Avogadro

N_A	Número de átomos do nuclídeo A
$n(v)$	Densidade de nêutrons a velocidade v
$n'(v)$	Densidade de nêutrons por unidade de intervalo de velocidade à velocidade v do nêutron
η	Fração da densidade neutrônica total na distribuição epitérmica
P_γ	Probabilidade de emissão do fóton gama por desintegração
$Q_0(\alpha) = I_0(\alpha)/\sigma_0$ ou $Q_0 = I_0/\sigma_0$	Razão entre integral de ressonância e secção de choque à velocidade do nêutron de 2200 m s^{-1}
r	Intensidade relativa da componente epitérmica no fluxo total
R	Taxa de reação (n, γ) por núcleo
R_e	Taxa de reação epitérmica
R_t	Taxa de reação térmica
R_{Cd}	Razão de cádmio
$S = 1 - e^{-\lambda t_i}$	Fator de saturação
S_0	Razão entre a integral de ressonância reduzida de Westcott e a secção de choque a 2200 m.s^{-1} vezes $2/\sqrt{\pi}$
$T_{1/2}$	Período de semi-desintegração
t_d	Tempo de decaimento
t_i	Tempo de irradiação
t_m	Tempo vivo de medição
t_r	Tempo real de medição
T_n	Temperatura dos nêutrons
T_0	Temperatura dos nêutrons numa distribuição Maxwelliana (293,59 K)
v_0	2200 m.s^{-1} (velocidade média dos nêutrons térmicos)
V_{Cd}	Velocidade do nêutron correspondente a energia E_{Cd}
W	Massa do analito
A_{esp}	Atividade específica expressa no tempo de decaimento zero e tempo de irradiação infinito
$\sigma(E)$	Secção de choque para reações (n, γ) à energia E do nêutron
$\sigma(v)$	Secção de choque para reações (n, γ) à velocidade v do nêutron

$\phi'(E)$ Fluxo de nêutrons por unidade de intervalo de energia à energia E do nêutron

$\phi'(v)$ Fluxo de nêutrons por unidade de intervalo de velocidade à velocidade v do nêutron

RESUMO

Este trabalho teve como objetivo determinar os parâmetros f , α , índice espectral e temperatura de nêutrons na mesa (parada e girando) e no tubo central do REATOR IPR-R1, visando a aplicação da técnica de ativação neutrônica paramétrica k_0 . É um método monopadrão de análise química por ativação neutrônica de aplicação bastante geral que elimina preparações tediosas de curvas de padrões, com capacidade analítica quantitativa multielementar e com uma exatidão comparável ao método relativo clássico

Os parâmetros α e f foram determinados usando o método de monitores nus. Para α , foram usados 3 monitores: ^{197}Au , ^{94}Zr e ^{96}Zr e no caso de f , a determinação foi feita usando o monitor bi-isotópico ^{94}Zr e ^{96}Zr . A temperatura de nêutrons foi calculada através do método direto, usando ^{176}Lu , ^{94}Zr ^{96}Zr e ^{197}Au . Calcula-se a função $g(T_n)$ de Westcott para o ^{176}Lu e o resultado é interpolado na tabela de Grintakis e Kim (1975), determinando assim a temperatura dos nêutrons.

Na determinação dos parâmetros foram usadas soluções de Au (feitas a partir de folha de Au, NBS, 99%), Lu (LuO_2 , Johnson Matthey Company - JMC) e Zr (ZrO_2 e folha metálica, Johnson Matthey Company 99,99% and Zry - 4, 98,14% of Zr, *National Bureau of Standard- NBS*).

Para checar a metodologia e a qualidade dos parâmetros determinados, foram analisados diversos materiais de referência e amostras de intercomparações (sedimentos do projeto AIEAVARCAL XXVI). Os materiais de referência analisados foram: GXR-2, GXR-5 e GXR-6 do *United States Geological Survey (USGS)* e Soil-5, Soil-7 e SL-1 da *Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA)*.

Palavras chave: Ativação neutrônica, métodos paramétricos, k_0 .

ABSTRACT

This research intended to determine the nuclear parameters α , f , spectral index and neutron temperature in several irradiations positions of the TRIGA MARK I IPR-R1 reactor, for use on the parametric method k_0 in the CDTN. k_0 is a monostandard method of neutron activation analysis. It is, on the whole, experimentally simple, flexible and an important tool for accurate and convenient standardization in instrumental multi-element analysis.

At the time the parameters were determined at the rotatory rack, lower layer and in the central thimble: α was calculated applying the three bare monitor method using ^{197}Au , ^{94}Zr and ^{96}Zr ; f determination was done according to the bare bi-isotopic method; neutron temperature was calculated through the direct method using ^{176}Lu , ^{94}Zr , ^{96}Zr and ^{197}Au and the Westcott's $g(T_n)$ function for the ^{176}Lu was calculated and the result was interpolated in the Grintakis and Kim (1975) Table, determining the neutron temperature.

The procedure to check the parameters consisted in using standard solutions of Au (metal foil, NBS), Lu (LuO_2 , Johnson Matthey Company - JMC) and Zr (ZrO_2 and metal foil, Johnson Matthey Company 99,99% and Zry - 4: 98,14% of Zr, *National Bureau of Standard- NBS*).

Several certified reference materials and two samples of intercomparisons (samples of sediment of the IAEA/ARCAL XXVI project) have been analysed by means of k_0 - INAA in order to verify the efficiency of the method and the quality of the parameters. The certified reference materials were: GXR-2, GXR-5 and GXR-6 of the *United States Geological Survey (USGS)* and Soil-5, Soil-7 and SL-1 of the *International Atomic Energy Agency (IAEA)*.

Key words: Neutron activation, parametric methods, k_0 method.

INTRODUÇÃO

A ativação neutrônica é uma técnica radioanalítica qualitativa e quantitativa para determinação de elementos estáveis, baseada na transmutação nuclear provocada pela colisão de nêutrons com o núcleo e posterior medida da radiação produzida.

É um campo relativamente sólido e as inovações metodológicas são relativamente poucas. O número de publicações sobre o tema é hoje em torno de 50% maior que na década passada, principalmente, devido ao número crescente de aplicações da técnica.

O processo envolve a preparação de amostras para irradiação, irradiação com nêutrons (geralmente térmicos e epitérmicos), detecção da radiação produzida (geralmente raios gama) e processamento de dados.

Inicialmente eram utilizados na medida e identificação de raios gama, detectores de cintilação de NaI (TI) que apresentavam baixa resolução em energia, o que devido ao grande número de radionuclídeos gerados, tornava necessária a separação radioquímica dos elementos para se eliminar a superposição de picos do espectro.

A partir da década de 60, com o advento dos detectores semicondutores de germânio de alta resolução, aliado ao uso dos analisadores multicanais, houve um grande avanço na determinação de muitos elementos, eliminando em grande parte a necessidade e os erros do tratamento radioquímico.

Atualmente, estão disponíveis sofisticados programas de análise espectral, ferramentas poderosas na ativação neutrônica.

Entre as características mais importantes da técnica destacam-se:

- grande variedade de elementos analisáveis: em torno de 70% dos elementos naturais apresentam propriedades nucleares adequadas para análise; capacidade de análise multielementar simultânea;
- pequenas possibilidades de contaminação da amostra ou perdas do analito durante a determinação: a manipulação da amostra antes da irradiação é mínima. Em geral, não se necessita nenhuma decomposição seja por fusão ou ataques ácidos, como na maioria dos métodos químicos instrumentais. Como consequência, não se necessita fazer preparações de brancos para correção de resultados, assim como preocupar-se com perdas por volatilização, adsorção e outras causas inerentes à etapa de decomposição;
- grande sensibilidade e uma ampla faixa de trabalho: em geral se trabalha em concentrações que variam entre partes por bilhão (ppb) e porcentagens. Por outro lado, pode-se analisar amostras com massas que variam de frações de miligrama a quilograma;
- complementariedade com relação a outros métodos de análise: existem vários elementos difíceis de analisar por outras técnicas químicas, porém, facilmente analisáveis utilizando reações nucleares de transmutação e vice-versa. Por outro lado a natureza dos erros que os métodos nucleares estão sujeitos são diferentes dos métodos químicos. Esta propriedade permite a verificação dos resultados para um grande número de elementos mediante o uso paralelo dos dois tipos de técnicas;
- capacidade multielementar combinada com a sensibilidade e especificidade que constituem uma grande vantagem quando a quantidade de amostra disponível é pequena por diversas razões: material arqueológico ou artístico, amostras de tecidos biológicos, evidência forense, etc. Uma vantagem adicional nesse tipo de amostra consiste em que a alíquota analisada não é destruída, podendo-se guardar ou utilizar para outros fins ou estudos.

Apesar das características apontadas, existem algumas desvantagens como:

- a dependência de facilidades de irradiação (um reator nuclear) e
- as limitações impostas para manipulação de materiais radioativos.

Um outro obstáculo a seu uso, especialmente no caso de aplicações industriais, é o moroso procedimento de análise.

Na análise de traços e ultra-traços, principalmente onde radionuclídeos de meia vida longa são envolvidos, os períodos de irradiação de muitas horas, ou mesmo dias e tempos de medidas de até dezenas de horas por amostra. Além disso, nesses casos ocasionalmente são necessários longos períodos de espera para reduzir efeitos de matriz quando a análise é não destrutiva.

Muitos avanços têm sido alcançados dentro da técnica ao longo do tempo, visando principalmente, ampliar o número de elementos analisados, realizando uma determinação com boa precisão e exatidão. Assim, métodos que se baseiam na produção de elementos de meia vida curta (na faixa de microssegundos a segundos), ativação com produção de raios gama prontos e os métodos paramétricos surgiram como ferramentas especiais dentro da técnica.

Entre os métodos paramétricos, o método de um simples comparador, tem sido amplamente avaliado e criticado, desde 1965, e ao longo desse tempo, tem demonstrado que é tão preciso e exato quanto o método relativo (análise por ativação neutrônica com o uso de padrões).

O método monopadrão foi inicialmente aplicado por Fukai e Meinke (1959) na análise de amostras biológicas, mais tarde Girardi et al (1965) fizeram uma avaliação crítica do método e estabeleceram um fator para cada elemento, usando dados relativos à irradiação e detecção obtidos com um comparador de cobalto. Esse método, no entanto, utilizava detectores de cintilação de NaI (TI), adotava a convenção simples desenvolvida por Högdahl (1965) na qual não se considera desvios da lei $1/v$ para cálculo de secção de choque efetiva e limitava-se a uma

posição de irradiação com baixo fluxo epitérmico, onde a distribuição de nêutrons não sofresse variações. Além disso, usava uma determinada geometria de detecção, de forma que a secção de choque efetiva para nêutrons (probabilidade da reação nuclear (n,γ)) e a eficiência de detecção não variassem.

Posteriormente, De Corte et al (1971, 2001c) e Dung (2003b) propuseram o método do comparador triplo, um método mais flexível que permitia a reavaliação do fator estabelecido para cada elemento, em relação à posição de irradiação usando comparadores de ouro, cobalto e índio. Paralelamente, Dubinskaya (1971) estudou a aplicação de monitores de irradiação de cobre, mantendo a flexibilidade em relação à posição de irradiação.

Numa tentativa de tornar o método do comparador triplo ainda mais flexível em relação às condições de irradiação e também de medida, Simonits et al (1975, 1976, 1980) propuseram o método intitulado k_0 . Esse novo fator estabelecido, independia do espectro de nêutrons na posição de irradiação e das características do detector utilizado. Subseqüentemente, outros trabalhos desenvolvidos procuraram aperfeiçoar esse método, testando novos monitores para determinação da razão entre fluxo térmico e epitérmico, corrigindo os desvios do fluxo epitérmico que afetam a integral de ressonância (DE CORTE et al, 1982a e 1981; EL NIMR et al, 1981; MOENS et al, 1979b), publicando compilações de fatores nucleares (SIMONITS et al, 1984; MOENS et al, 1984; ALGHEM et al, 2006; DE CORTE e SIMONITS, 2003), atualizando valores de integrais de ressonância (BEREZNAI et al, 1977; DE CORTE et al, 1979a e 1979b; WEIZHI e BANGFA, 1993) e promovendo intercomparações.

Também Kim e Stärk (1970), tomando como base o método do comparador triplo (MOENS et al, 1979; BECKER et al, 1992; CHUNG et al, 2006), introduziram, anteriormente ao método k_0 , uma outra versão do método monopadrão, substituindo a convenção de Högdahl pela convenção de Wescott (WESTCOTT et al, 1958).

Através dos anos, muitas variantes dos métodos paramétricos absolutos e de um simples comparador, vêm sendo propostos e aplicados, e não há nenhuma dúvida de suas utilidades em muitos campos de aplicação da AAN (Análise por ativação neutrônica). Esses esforços, entretanto, não levaram a um procedimento combinando simplicidade experimental, exatidão, flexibilidade (irradiação e contagem) e conveniência para computação.

Estes quatro aspectos foram os principais responsáveis pelo surgimento, em 1974, da idéia do método k_0 .

O objetivo do trabalho foi determinar alguns parâmetros nucleares em diversas posições de irradiação do reator TRIGA MARK I IPR R1 do CDTN (Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear) para utilização do método k_0 de análise por ativação neutrônica usando as convenções de Högdahl e Westcott. É um método radioquímico monopadrão de aplicação bastante geral, que elimina preparações tediosas de curvas de padrões, com capacidade analítica quantitativa multielementar e com uma exatidão comparável ao método radioquímico clássico.

Os parâmetros a ser determinados são:

- Relação f entre os fluxos de nêutrons térmicos (ϕ_t) e epitérmicos (ϕ_e);
- Fator α de correção para integrais de ressonância pela não idealidade da distribuição do fluxo de nêutrons epitérmicos;
- Índice espectral;
- Temperatura de nêutrons, fator determinante na medida do desvio de comportamento da secção de choque na região térmica.

CAPITULO I - FUNDAMENTOS TEÓRICOS

1 FUNDAMENTOS TEÓRICOS

1.1. Reatores de pesquisa

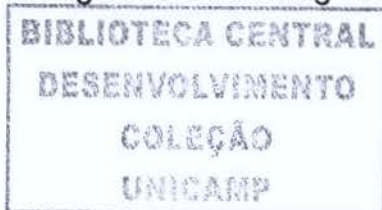
Os reatores nucleares de pesquisa têm sido largamente utilizados em diversos campos do conhecimento humano, como em medicina, aplicação industrial, desenvolvimento de novos materiais, agricultura, treinamento e outras áreas.

Existem mais reatores de pesquisa do tipo TRIGA, em funcionamento em diversos países do mundo, do que qualquer outro tipo de reator similar. Sua segurança inerente é baseada em seu combustível, o qual é fabricado em uma mistura metálica e homogênea com o moderador. Esse moderador, o hidreto de zircônio, misturado ao urânio do combustível, garante ao reator um coeficiente negativo de temperatura, permitindo assim, operações mais seguras.

1.2. Reator Triga – IPR – R1

O reator IPR-R1, do centro de desenvolvimento da tecnologia nuclear, em Belo Horizonte, é um reator do tipo TRIGA, fabricado pela GULF GENERAL ATOMIC (USA), projetado para funcionar em regime contínuo até a potência de 100kW. As FIGURAS 1 e 2 apresentam uma foto do reator e um desenho em corte do seu poço respectivamente com os componentes principais.

O núcleo do reator FIGURA 3, forma um reticulado cilíndrico com 91 posições, onde estão instalados 63 elementos combustíveis-moderadores. Esses componentes são dispostos formando anéis concêntricos e são mantidos em posição vertical suportados por duas grades circulares. O núcleo é circundado por um refletor de grafita. Uma coluna de aproximadamente 5m de água faz a blindagem em relação ao topo do poço.



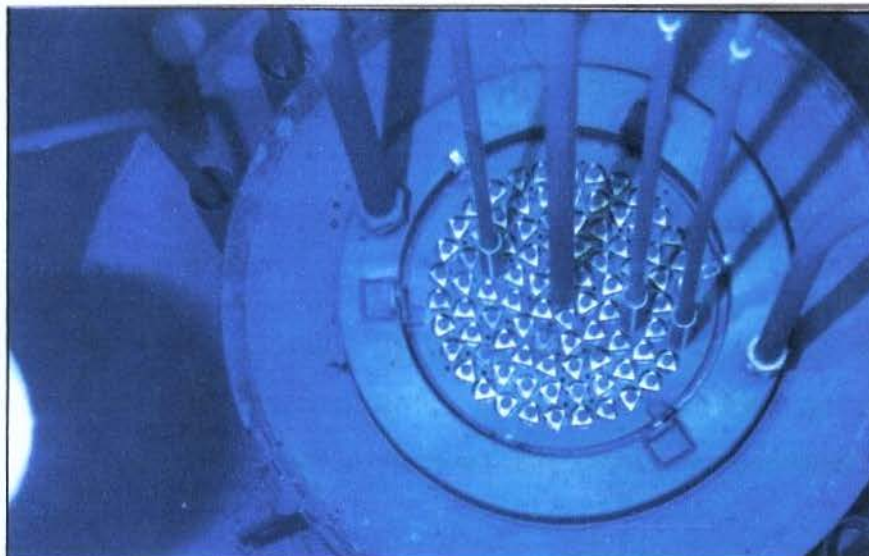


FIGURA 1 – Reator Nuclear de Pesquisa TRIGA IPR-R1.

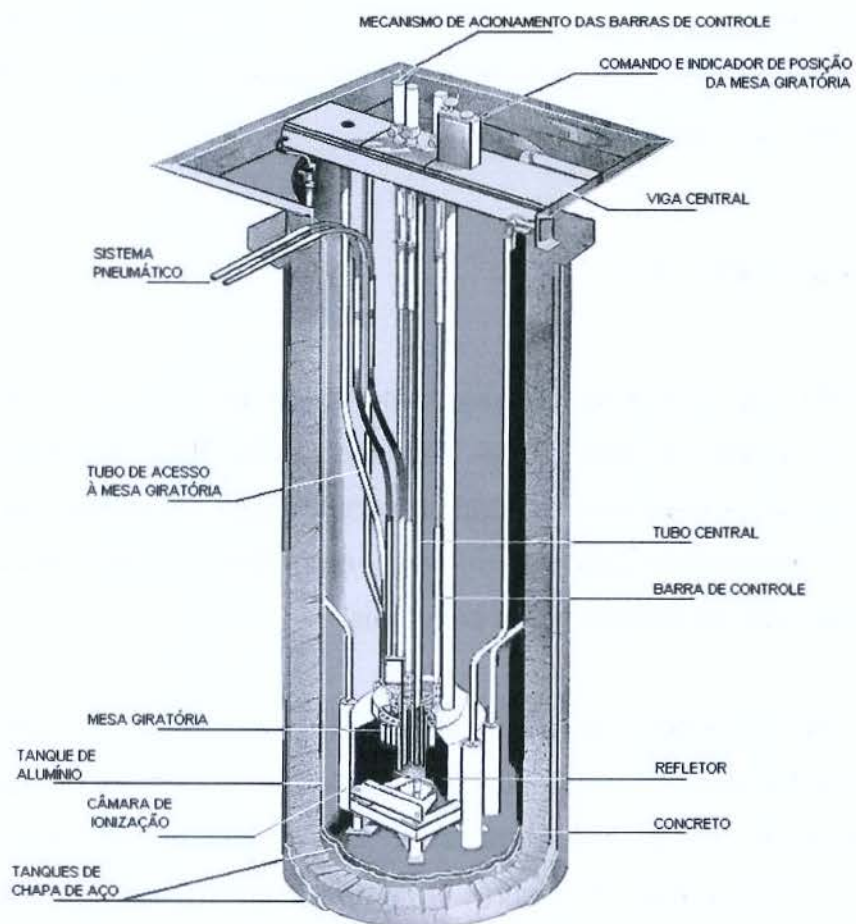


FIGURA 2 - Vista em Corte do Reator.

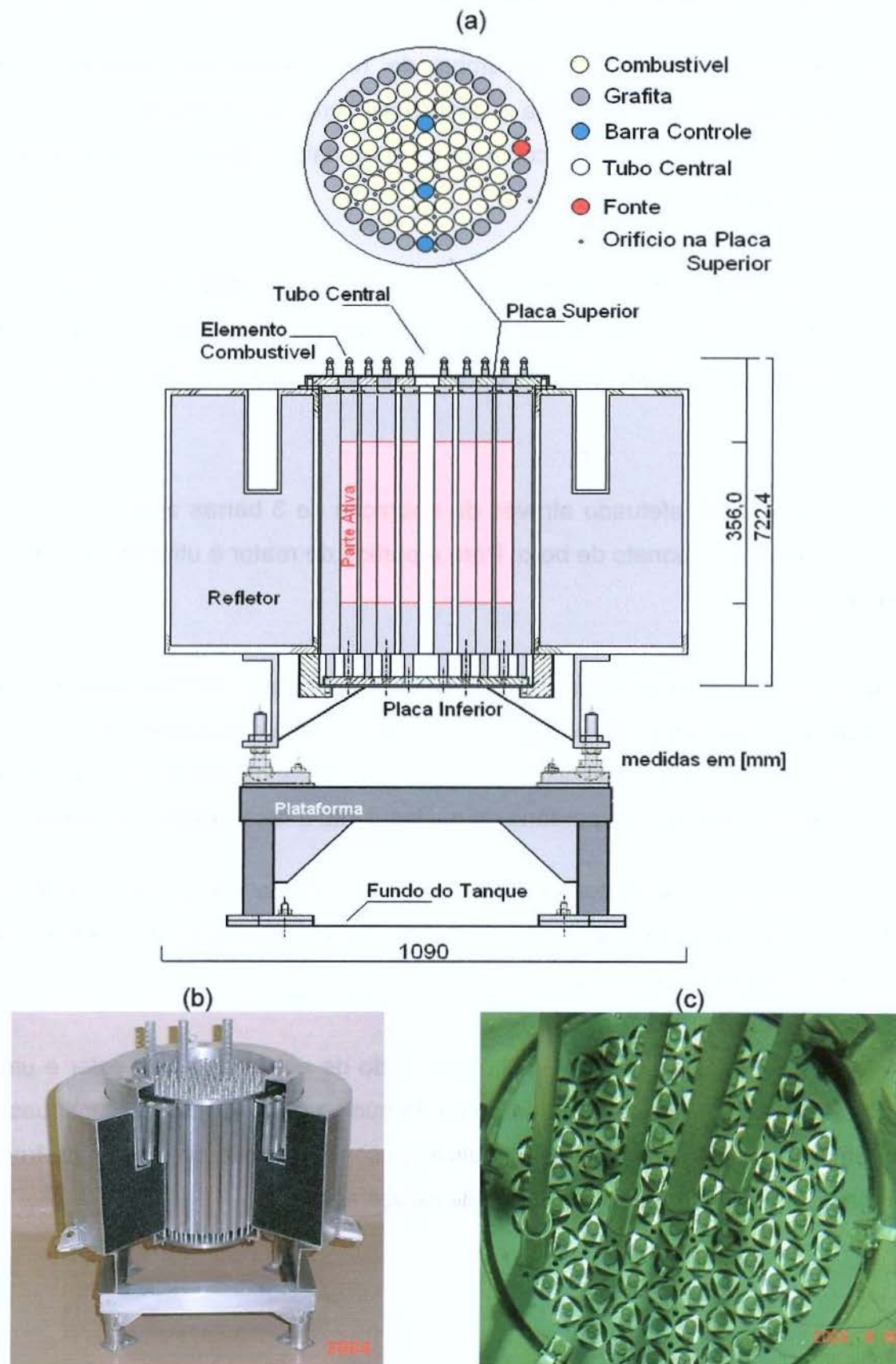


FIGURA 3 - Núcleo do Reator: a) Diagrama, b) Maquete e c) Placa Superior (MESQUITA, 2005).

O reator entrou em operação em novembro de 1960, tendo sido utilizado desde então, como ferramenta de pesquisa e desenvolvimento em diversas áreas, como radioquímica, física de reatores, controle de materiais, engenharia ambiental e aplicações industriais.

Utiliza como combustível o urânio enriquecido a 20%, como refletor a grafite e como moderador principal o hidreto de zircônio. O núcleo é refrigerado com água leve desmineralizada, que serve também de moderador adicional e como blindagem biológica.

O controle do reator é efetuado através da operação de 3 barras absorvedoras de nêutrons, contendo carboneto de boro. Para a partida do reator é utilizada uma fonte actínio-berílio.

O reator apresenta 4 dispositivos de irradiação de amostras: um tubo central, uma mesa giratória e dois terminais pneumáticos. Para o acompanhamento da evolução do fluxo de nêutrons e da potência do reator são utilizados quatro detectores de nêutrons, todos localizados na periferia do núcleo, junto à face externa do refletor.

A operação do reator é efetuada através de uma mesa de controle, onde se localizam os comandos de barras de controle e os medidores e sinalizadores de todos os parâmetros de operação.

Um sistema de refrigeração água-água, constituído de um trocador de calor e uma torre de refrigeração, permite o resfriamento do núcleo para operações contínuas a plena potência. Um sistema de desmineralização com utilização de resinas de troca iônica mantém o nível de pureza da água de refrigeração.

1.2.1. Instrumentação e controle

A instrumentação associada à operação do reator IPR-R1 inclui medidores de potência, de temperatura, de condutividade, de radioatividade da água de refrigeração e de áreas diversas na sala do reator:

Canal de partida: medidor logarítmico da taxa de contagem que mede, através de uma câmara de fissão, a evolução do nível de nêutrons durante a partida do reator.

Canais de potência: consistem em três canais associados a câmaras de ionização, sendo duas compensadas e uma não compensada. Os canais associados às câmaras compensadas estão acoplados a registradores e indicadores, que permitem o registro e leitura do nível de potência. O canal associado à câmara de ionização não compensada indica em porcentagem, o nível de potência em relação à potência máxima.

Medidores de temperatura: fornecem a temperatura da água na entrada e na saída do trocador de calor do sistema de refrigeração.

Medidores de condutividade: fornecem a condutividade da água na entrada e na saída do sistema de refrigeração e ainda na entrada e na saída do sistema de resinas troca-íons do tratamento de água do reator.

Medidores de radioatividade da água: fornecem, através de detectores GEIGER, o nível de radiação da água de refrigeração.

Monitores de área: instalados na borda do poço do reator e junto ao sistema de resinas troca-íons, servem para monitorar o nível de radiação durante a retirada de amostras. Sinais de alarme sonoro-luminosos estão acoplados ao sistema.

Mesa de controle: na mesa de controle encontram-se os comandos das barras de controle e seus indicadores de posição, acionador de controle automático e seletor de nível de potência desejado, sinalizadores de desligamento, alta voltagem, percentual de potência, período, registradores, refrigeração e monitores de água e de área.

1.2.2. Dispositivos de irradiação

Tubo central: tubo de alumínio que penetra a região central do núcleo permitindo a irradiação de amostras sob fluxo mais intenso do reator.

Mesa giratória: alojada numa cavidade anular de grafita, comporta 40 receptáculos para amostras, montadas em um suporte giratório, que acoplado a um mecanismo de rotação automático, permite a irradiação das amostras sob um fluxo de nêutrons uniforme.

Terminais pneumáticos: dois terminais de sucção de ar, constituídos por ventoinhas e válvulas apropriadas, permitem a introdução e a retirada de amostras no reator. Um dos terminais se aloja na periferia do núcleo e o outro junto à face externa do refletor.

1.2.3. Segurança e radioproteção

A operação do reator envolve problemas de segurança e radioproteção, que estão associados não só à operação em si, como também, à radioatividade induzida nos vários materiais irradiados. Diversos dispositivos desligam automaticamente o reator ou impedem a sua partida quando não são satisfeitos certos requisitos de segurança. Entre os requisitos se destacam: a interrupção de energia elétrica, período inferior a valor pré-determinado, níveis de potência superiores a valores pré-

fixados, falta de tensão nos detectores de nêutrons, chave de partida desligada e falta de energização da mesa de controle.

Para evitar que o pessoal de operação receba doses de radiação superiores às permitidas pela legislação vigente são previstos diversos dispositivos e normas de procedimento. Além dos diversos monitores de água e de área acoplados à mesa de operação, são utilizados detectores portáteis que permitem monitorar as fontes de radiação em cada local. São utilizados, ainda, filmes e canetas dosimétricas individuais, em toda área do reator.

Para manipulação de amostras mais ativas são usadas pinças especiais e em casos de manipulação dos combustíveis irradiados, blindagens e roupas especiais.

1.2.4. Operação do reator

Para que o reator possa operar num nível de potência apreciável, devem existir condições para passar o sistema de um estado sub-crítico a um estado crítico, com passagens temporárias por estados supercríticos.

No caso do reator IPR-R1, essas alterações do estado de criticalidade do sistema são realizadas através do deslocamento de três barras de controle: segurança, controle grosso e reguladora.

Antes de cada operação, uma lista de verificação de toda a instrumentação do reator deve ser preenchida, para que possam ser conferidas as condições de operação do mesmo.

1.2.5. Campos de utilização do reator

Aplicações industriais: Os isótopos produzidos para uso como traçadores radioativos (Mn-56, Fe-59, Co-60, Br-82, Au-198), são utilizados em:

- estudos das condições de escoamento de oleodutos;
- medidas de vazão em bombas e turbinas hidráulicas;
- estudos de desgastes provocados em minerodutos;
- controle de desgastes em altos fornos;
- determinação do tempo de permanência de clínquer em moinhos de bola de fábricas de cimento e diversos trabalhos na área.

Engenharia ambiental: Foram realizados diversos estudos de sedimentologia de fundo (transporte por arraste) e de suspensão, em diversos portos do Brasil utilizando os isótopos Cr-51, Mn-56, Br-82, Ir-192 e Au-198. Foram realizadas também, medidas de poluição oceânica por efluentes líquidos e rejeitos sólidos e medidas de vazões de rios e ribeirões.

Biologia e medicina: Realização de pesquisas com *Schistosoma Mansoni*, incorporação de Na-24 em tumores de coelhos albinos, efeitos terapêuticos do Au-198 em infiltrações intra-articulares e razão de eliminação de ferro em triotomidas com Fe-59.

Dosimetria e irradiação: Dosimetria de radiação gama no reator IPR-R1, monitoração da potência do reator com N-16, utilização de turmalina como dosímetro de nêutrons, etc.

Física do estado sólido e nuclear: Efeito Mössbauer em LiFeO_2 e LiF , geração de defeitos de cromatos de potássio, fosfato de amônia e formação de centros de cor e dosagem de cristais como KCl , LiF , kunzita e turmalina.

Física de reatores: Medidas de fluxo e distribuição de nêutrons em locais de irradiação do reator, medidas de reatividade no núcleo e espectrometria de nêutrons, análise de ruído e análise de produtos de fissão nos elementos combustíveis.

Radioquímica: Estudos de radiólise em complexos de Co e Cr, produção de ^{45}Ca e ^{51}Cr , determinação de Cu e Au em cristais de KCl. Dosagem de Au e Pt em rochas ultra-básicas, estudos sobre reação $^{108}\text{Cd} (n,p) ^{108}\text{Ag}$. Determinação de diversos elementos em várias matrizes, análise de urânio e tório em minérios, determinação de contaminantes em tintas utilizadas no programa nuclear, determinação de metais pesados de pacientes acometidos de leucopenia e em soro sanguíneo de funcionários da indústria siderúrgica, estudos de contaminantes em águas de minas e rios, entre outros.

Técnicas nucleares: Implantação do método de transmissão de nêutrons no espectro "maxwelliano" para controle de pureza de materiais nucleares, medidas de secção de choque para nêutrons monocromatizadores em materiais diversos e, neutrongrafia para controle de qualidade.

Treinamento: O reator tem sido utilizado para treinamento de pessoal do próprio centro nas áreas de segurança e radioproteção e análise por ativação, como também, para aulas práticas de alunos, dos cursos de graduação, em Engenharia Nuclear e pós-graduação em Ciências e Técnicas Nucleares da Escola de Engenharia da UFMG.

Além de estágios para alunos do Instituto Militar de Engenharia e da Escola de Ensino Especializado do Exército, têm sido treinados todos os operadores das centrais Nucleares de ANGRA I e II, através do Curso de Treinamento de Operadores em Reatores de Pesquisa (CTORP).

1.3. Espectro de energia dos nêutrons do reator

A análise por ativação neutrônica utiliza preferencialmente, a reação nuclear (n, γ) produzida por nêutrons térmicos e epitérmicos. Dentre as fontes de nêutrons existentes, o reator nuclear oferece as vantagens de maior sensibilidade analítica (alto fluxo) e ativação de muitos isótopos (espectro amplo).

O princípio de funcionamento dos reatores nucleares é a fissão de isótopos pesados como o ^{235}U , ^{239}Pu , ^{238}U . Esses isótopos chamados materiais físeis (ou férteis como o ^{238}U), produzem uma média de 2 a 3 nêutrons por fissão, com energias entre 0 e 15 MeV.

Uma vez iniciada a fissão do combustível nuclear, parte dos nêutrons produzidos é utilizada para provocar novas fissões, mantendo a reação em cadeia.

Em um reator, a taxa de reação por núcleo, R , de um nuclídeo é dada por (DE CORTE, 1986b):

$$R = \int_0^{\infty} \sigma(v) \varphi(v) dv = \int_0^{\infty} \sigma(E) \varphi(E) dE \quad (I-1)$$

Com:

$\sigma(v)$ - seção de choque para reações (n, γ) em barn [$1\text{barn} = 10^{-24} \text{cm}^2$], a velocidade v do nêutron em cm.s^{-1} ;

$\sigma(E)$ - seção de choque para reações (n, γ) , a energia E (eV) do nêutron;

$\varphi(v)$ - fluxo de nêutrons diferencial (ou por unidade de velocidade em unidades de cm^{-3}), a velocidade v do nêutron;

$\varphi(E)$ - fluxo de nêutrons diferencial (ou por unidade de energia em unidades de $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1} \text{eV}^{-1}$), a energia E do nêutron.

$\sigma(v) = f(\sigma(E))$, com $E [\text{erg} = 6,2415 \cdot 10^{11} \text{ eV}] = 1/2 m_n v^2$ (m_n , massa de repouso do nêutron = $1,6749 \cdot 10^{-24} \text{g}$).

$\phi'(v)dv = \phi'(E)dE$ (ambos em $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$).

1.3.1. Seção de choque para reações (n, γ) e fluxo de nêutrons

A probabilidade de ocorrência de uma reação nuclear é representada por uma seção de choque que decresce com a energia do nêutron incidente. Isto é explicado pelo fato de que o tempo em que os nêutrons permanecem no campo de ação das forças nucleares diminui com o aumento da velocidade do nêutron, diminuindo, dessa forma, a probabilidade de captura eletrônica. Esse fenômeno é conhecido como a lei $1/v$.

Para determinadas energias, a seção de choque se eleva rapidamente. Esses máximos aparecem em energias ressonantes que levam à formação de um núcleo de existência mais provável. A energia de ressonância é igual a soma da energia cinética e da energia de ligação do nêutron correspondendo à diferença energética entre dois níveis nucleares. Então, a seção de choque para a captura neutrônica segue aproximadamente, uma relação com o inverso da velocidade do nêutron ou da raiz de sua energia:

$$\sigma(v) \sim \frac{1}{v} \text{ ou } \sigma(E) \sim 1/\sqrt{E} \text{ (log } \sigma(E) \text{ versus log } E \text{ é linear com inclinação } -1/2)$$

(FIGURA 4).

No TRIGA MARK-I, reator de pesquisa do tipo térmico, os nêutrons produzidos por fissão nuclear podem ser utilizados numa extensa faixa de energia em torno de 0 a 2 MeV. Próximo à fonte de nêutrons, a energia destes é alta, porém, após choques sucessivos com os núcleos dos átomos do meio moderador, há perda de energia até que seja atingido o equilíbrio térmico com o meio.

Os nêutrons gerados por fissão apresentam uma distribuição energética particular, denominada espectro de fissão. A distribuição do fluxo, $\phi'(E)$ versus E , é subdividida em três regiões (FIGURA 5):

- um espectro de fissão ou de nêutrons rápidos, descrito pela distribuição Watt (ver extremo direito da FIGURA 5 apresentando um máximo em torno de 0,7 MeV). Como $\sigma(v)$ é muito pequeno nessa região a contribuição de reações (n,γ) induzidas por nêutrons rápidos, na taxa de reação, podendo ser negligenciado;
- espectro de nêutrons epitérmicos (intermediário, em processo de moderação) que pode ser descrito de uma forma ideal por $\phi'(E) \sim 1/E$. O limite inferior dessa região é μkT , onde μ é uma constante característica do moderador, usado no reator;
- um espectro de nêutrons de baixa energia que após processo de moderação, estão em equilíbrio térmico com o meio. Esse espectro pode ser descrito pela distribuição de MAXWELL-BOLTZMANN. Em um gráfico $\phi'(E)$ versus E ou $n'(v)$ versus v , o ponto máximo da curva (energia ou velocidade mais provável) está situado a $E(T_n) = kT_n$ ou $v(T_n) = [2E(T_n)/m_n]^{1/2} = [2kT_n/m_n]^{1/2}$, respectivamente [k = constante de Boltzmann = $1,3807 \cdot 10^{-16}$ erg.K⁻¹; T_n = temperatura do nêutron de energia mais provável, em K]. Em condições normais: $T_0 = 293,15$ K, $E_0 = 0,0253$ eV, $v_0 = 2200$ m s⁻¹; o valor $\sigma(v_0) = \sigma_0$ seção de choque à velocidade de 2200 m.s⁻¹.

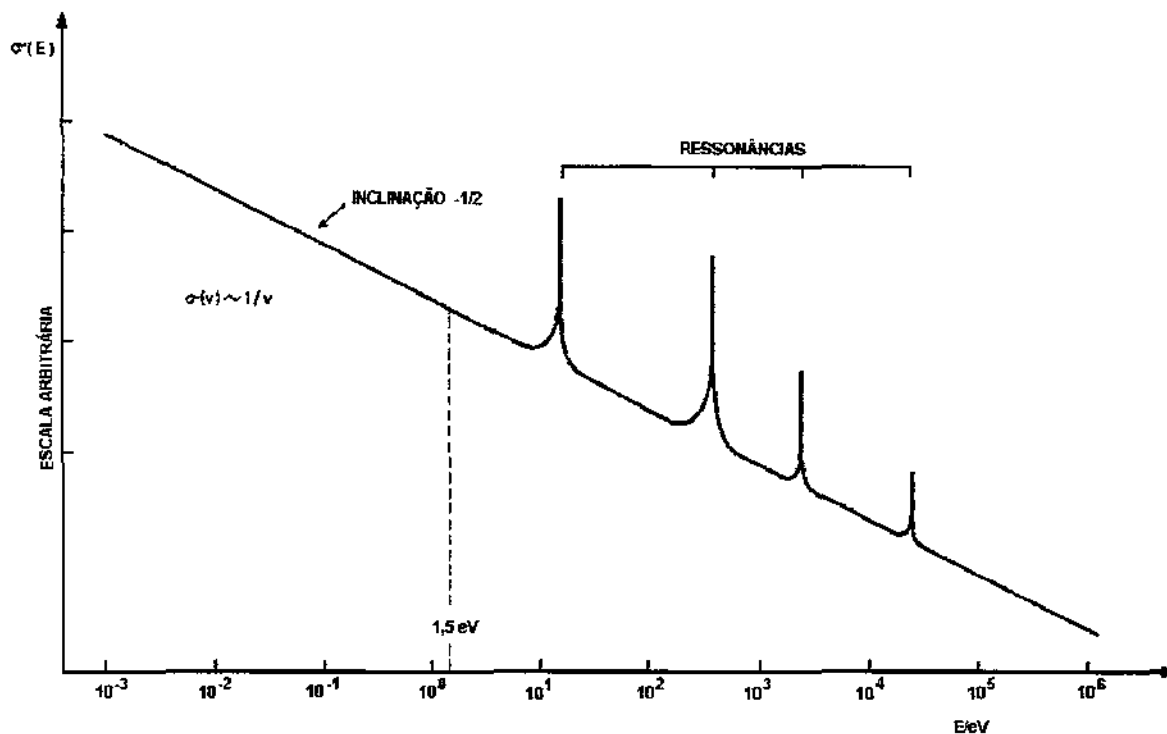


FIGURA 4 - Secção de choque $\sigma(E)$ para reações (n,γ) versus E em escala log-log (DE CORTE, 1986b).

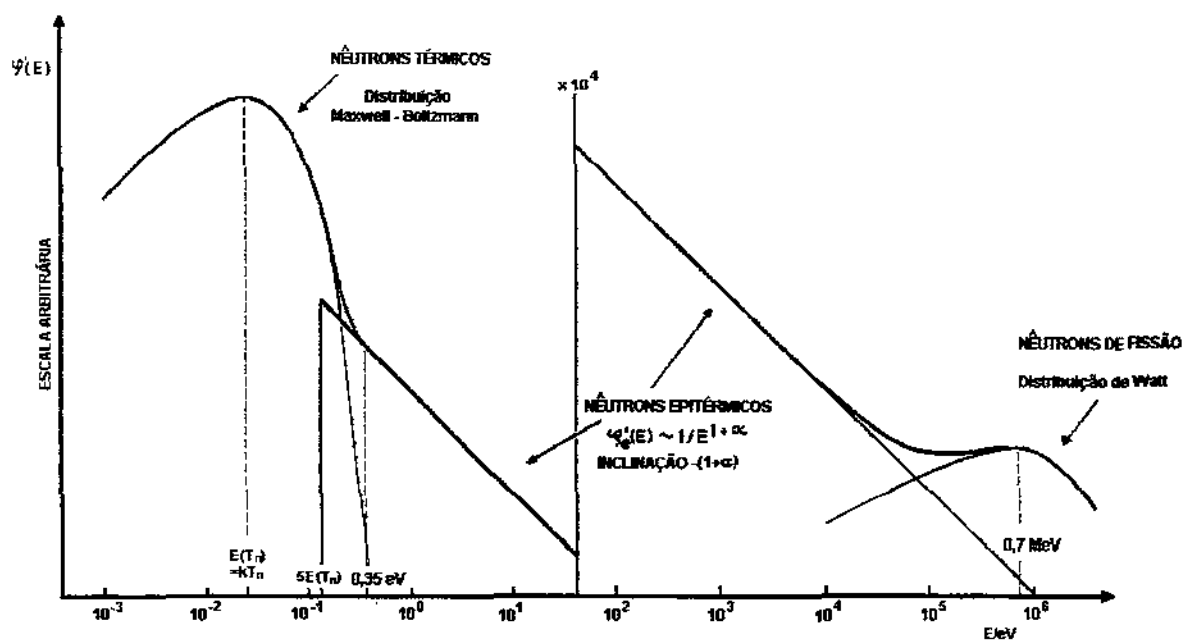


FIGURA 5 - Distribuição do fluxo de nêutrons do reator $\phi'(E)$ versus E em escala log-log (DE CORTE, 1986b).

1.3.2. Energia efetiva de corte de cádmio

Antes de falar sobre as convenções, especialmente a de HOGDAHL, são necessários alguns conceitos sobre a energia de corte de cádmio. Quando se pretende selecionar as energias dos nêutrons, que atingirão uma dada amostra, utiliza-se de filtros. O material desses filtros deve possuir propriedade nuclear apropriada: alta secção de choque para absorção de nêutrons térmicos, ou seja, alta absorção de nêutrons na região de baixa energia do espectro de energia.

O Cd, Gd, B, Sm e o Rh são elementos que apresentam essa propriedade. Desses, o mais usado é o cádmio, pela sua facilidade de manuseio e secção de choque para reações (n,γ) excepcionalmente alta, devido principalmente ao isótopo ^{113}Cd , abundância isotópica de 12,3%(valor estimado para esse nuclídeo $2,5 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$ combinada com uma ressonância em 0,178 eV, FIGURA 6a), o que lhe confere características de excelente filtro, para barrar os nêutrons térmicos. Assim, quando se irradia uma amostra sob uma cobertura de cádmio, a taxa de reação (n,γ) para nêutrons térmicos é drasticamente reduzida.

A energia efetiva de corte, E_c , é definida como a energia de corte de um filtro perfeito permitindo que uma amostra tenha o mesmo número de absorções que em outro filtro de cádmio.

Considera-se na prática a E_c do cádmio, como limite superior de energia dos nêutrons absorvidos ou o limite inferior de energia do fluxo epitérmico (FIGURA 6a).

Uma função de transmissão, $T(E)$, simplificada para Cd considerando uma cobertura de 1mm de espessura é mostrada na FIGURA 6b.

Ela pode ser calculada por (DE CORTE, 1986b):

$$T(E) = e^{-\frac{N_A L \delta \sigma_{tot,Cd}(E)}{M}} \quad (I-2)$$

Com:

δ - massa específica do cádmio=8,642 g cm⁻³

N_A - número de Avogadro

L - espessura da folha de cádmio = 0,1 cm

M - massa molar

$\sigma_{tot,Cd}$ - secção de choque total do cádmio em cm² (soma das secções de choque de cada isótopo natural do cádmio, FIGURA 6a)

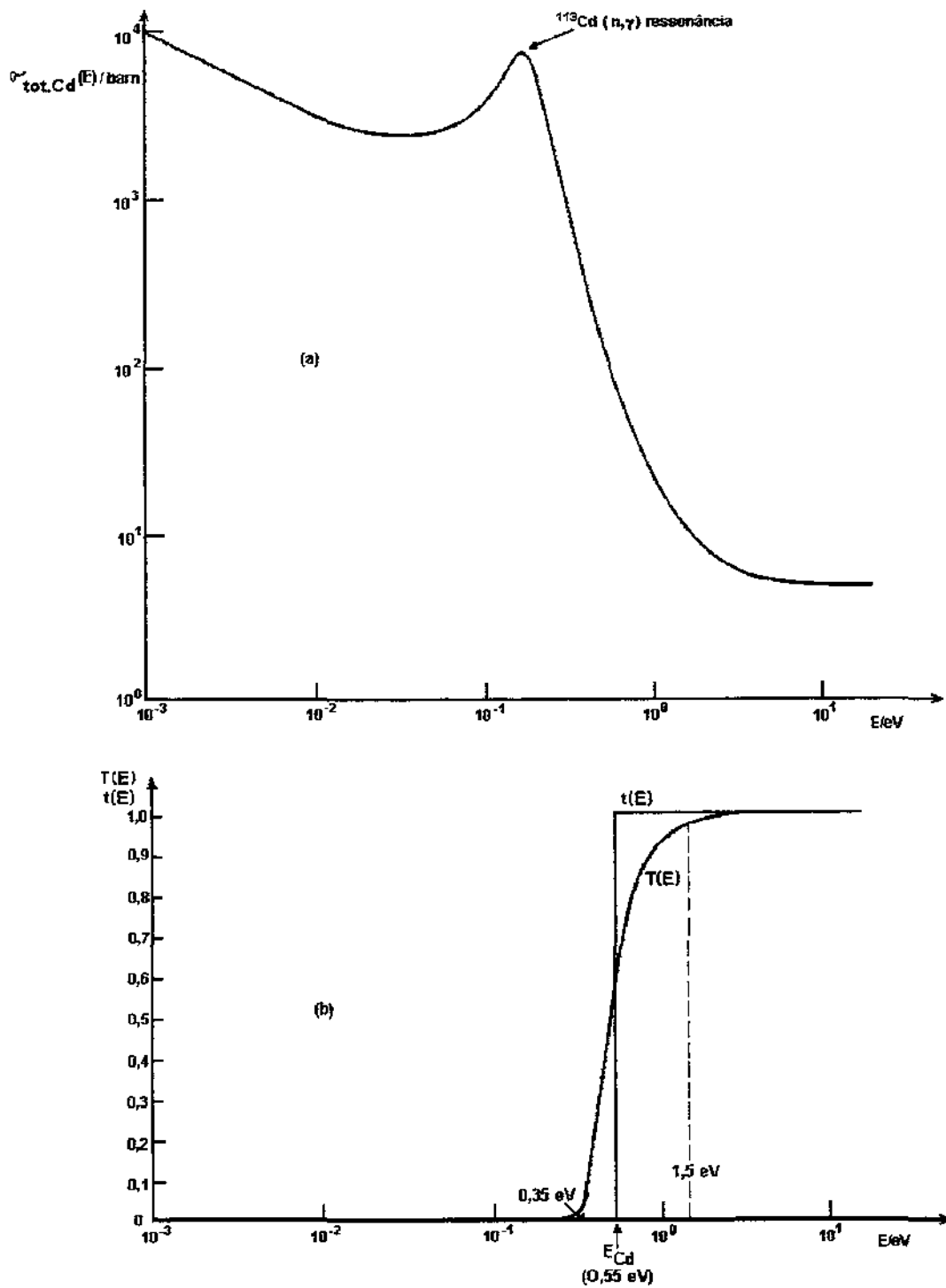
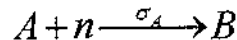


FIGURA 6 (a) Secção de choque total do Cd ($\sigma_{\text{tot,Cd}}(E)$), versus E e (b) funções de transmissão de nêutrons do Cd, $T(E)$ e $t(E)$, versus E (DE CORTE, 1986b), onde $t(E)$ é uma função de transmissão ideal, tipo degrau.

1.4. Equação geral da análise por ativação neutrônica

A equação matemática do processo de ativação neutrônica exprime quantitativamente cada etapa do processo e fornece os resultados através do tratamento dos dados experimentais obtidos (SILVA, 1991).

A taxa de formação de átomos de um nuclídeo B, F_B , no processo de ativação é proporcional ao número de átomos do isótopo A presentes no alvo A, ao fluxo neutrônico, e à secção de choque (probabilidade de captura). Esse processo pode ser representado pela reação:



$$F_B = \frac{dN_B}{dt} = N_A \sigma_A \varphi \quad (1-3)$$

Onde:

F_B - número de átomos do radionuclídeo B que se formam por unidade de tempo
[s⁻¹]

N_A - número de átomos do isótopo A

σ_A - secção de choque do nuclídeo A [barn = 10⁻²⁴ cm²]

φ - fluxo total de nêutrons [nêutrons cm⁻².s⁻¹]

Se durante a irradiação o nuclídeo B decai ao mesmo tempo em que é formado através da reação: $B \xrightarrow{\lambda_B} \text{produtos}$, então a taxa de produção é igual à :

$$F_B = \frac{dN_B}{dt} = (N_A \sigma_A \varphi) - (\lambda_B N_B) \quad (1-4)$$

Onde:

λ_B - constante de decaimento do radionuclídeo B/s⁻¹.

A solução da equação (I-4) para um tempo t_i de irradiação é:

$$N_B = \frac{N_A \sigma_A \varphi}{\lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t_i}) \quad (I-5)$$

Ou, em termos de atividade:

$$A_B = N_A \sigma_A \varphi (1 - e^{-\lambda_B t_i}) \quad (I-6)$$

Onde:

t_i - tempo de irradiação

A_B - atividade produzida do nuclídeo B ao final da irradiação [desintegração/s], o termo entre parênteses é o fator de saturação em geral representado pelo símbolo S.

Considerando que A seja isótopo de um elemento químico A, a ser quantificado (analito), o número de átomos N_A é dado por:

$$N_A = \frac{N_{\text{Avog}} \theta_A w}{M_A} \quad (I-7)$$

Substituindo (I-7) em (I-6) obtém-se uma das formas da equação geral (ou fundamental) da análise por ativação:

$$A_B = \frac{N_{\text{Avog}} \theta_A w}{M_A} \sigma_A \varphi (1 - e^{-\lambda_B t_i}) \quad (I-8)$$

Onde:

N_{Avog} - número de Avogadro = $6,02 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$

θ_A - abundância isotópica do isótopo A

w - massa do elemento existente no alvo (g)

M_A - massa molar do elemento A (g/mol)

A atividade A_B pode ser corrigida pelo fator de decaimento para qualquer tempo transcorrido a partir do final da irradiação:

$$A_B = \frac{N_{\text{Avog}} \theta_A w}{M_A} \sigma_A \phi (1 - e^{-\lambda_B t_i}) e^{-\lambda_B t_d} \quad (I-9)$$

Onde:

$e^{-\lambda_B t_d}$ - fator de decaimento

t_d - tempo de decaimento

A atividade A_B pode ser avaliada pela medida da radiação produzida, corrigindo-se o decaimento durante o tempo de medida (t_m):

$$A'_B = \int_0^{t_m} A_B e^{-\lambda_B t} dt = \left[\frac{-A_B}{\lambda_B} e^{-\lambda_B t} \right]_0^{t_m} = \frac{A_B}{\lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t_m}) \quad (I-10)$$

No caso do experimento de detecção de radiação gama, em um espectro gama de alta resolução, essa atividade está relacionada à área experimental do pico ou raia de um fóton gama, de uma dada energia, associada ao nuclídeo em análise:

$$A'_B = \frac{C_l / t_m}{\varepsilon_\gamma P_\gamma} \quad (I-11)$$

Onde:

A'_B - atividade medida [desintegração/s], para fótons gama de uma dada energia do nuclídeo B

ε_γ - eficiência de detecção na energia medida

P_γ - porcentagem de emissão γ por desintegração do nuclídeo B, isto é, P_γ é a abundância relativa do fotopico de energia considerada

C_l - contagem líquida (área líquida do fotopico)

t_m - tempo de medida, ou de contagem, pelo detetor de radiação

Igualando (I-10) e (I-11) tem-se:

$$\frac{A_B}{\lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t_m}) = \frac{C_I / t_m}{\varepsilon_\gamma P_\gamma} \quad (\text{I-12})$$

De onde tem-se:

$$A_B = \frac{C_I \lambda_B / t_m}{\varepsilon_\gamma P_\gamma (1 - e^{-\lambda_B t_m})} \quad (\text{I-13})$$

Igualando as equações (I-13) e (I-9), obtém-se a equação final, que quantifica um elemento em função de todos os parâmetros e variáveis relativas à irradiação e detecção, ficando então:

$$\frac{C_I \lambda_B / t_m}{\varepsilon_\gamma P_\gamma (1 - e^{-\lambda_B t_m})} = \frac{N_{\text{Avog}} \theta_A w}{M_A} \sigma \phi (1 - e^{-\lambda_B t_i}) e^{-\lambda_B t_d} \quad (\text{I-14})$$

Assim, a massa do elemento analito existente no alvo será dada por:

$$w_a = \frac{C_I \lambda_B M_A / t_m}{N_{\text{Avog}} \theta_A w \varepsilon_\gamma P_\gamma (1 - e^{-\lambda_B t_m}) \sigma \phi (1 - e^{-\lambda_B t_i}) e^{-\lambda_B t_d}} \quad (\text{I-15})$$

Na análise por ativação a proporcionalidade entre a quantidade do analito presente na amostra e a área do fotopico medido é usada para determinar a concentração do analito na amostra. A constante de proporcionalidade depende da condição experimental e parâmetros físicos. A determinação desses parâmetros e suas relações com essa constante pode ser evitada através da irradiação e medida de uma amostra de calibração contendo quantidades conhecidas dos elementos de interesse.

A amostra de calibração ou padrão deve ser irradiada simultaneamente, com a amostra a ser analisada, para eliminar a influência de possíveis variações no fluxo de nêutrons e medida nas mesmas circunstâncias da amostra. A razão das áreas dos picos medidos correspondente ao elemento de interesse nos dois espectros é usada para calcular a concentração.

Alternativas a esse método comparativo de análise são os métodos absoluto e paramétricos. Nesses métodos, é usada a razão entre as áreas dos picos medidos correspondente ao nuclídeo de interesse e de um comparador (ou monitor de fluxo). A área do pico comparador representa o fluxo neutrônico total. O comparador e amostra são irradiados, simultaneamente.

Esta razão pode ser identificada como a razão das taxas na qual os radionuclídeos são produzidos durante a irradiação, ou seja, a taxa de reação por núcleo (R), equação (I-1). Essa taxa de reação depende da distribuição de energia dos nêutrons, $\phi(E)$, e das secções de choques (σ), devendo assim, ser determinada para cada elemento e cada dispositivo de irradiação usado, assumindo que o espectro de nêutrons não varie com o tempo.

1.5. Ativação Neutrônica no Reator TRIGA-IPR-R1 do CDTN/BH

A ativação neutrônica instrumental é uma importante ferramenta analítica na determinação de elementos traços, em diversas matrizes. O reator TRIGA IPR-R1 possui uma mesa giratória especialmente apropriada para esta técnica analítica. Consiste de 40 tubos, sendo que cada um pode conter um recipiente plástico com uma ou duas amostras, para irradiação. Durante a irradiação a mesa gira em torno do núcleo do reator a uma taxa constante no tempo, de modo a garantir um fluxo de nêutrons uniforme no total das 40 amostras.

Alguns exemplos de procedimentos rotineiros utilizados no CDTN estão apresentados na TABELA 1, e os elementos normalmente analisados estão apresentados na TABELA 2. Nesta Tabela, A_{ψ} , atividade de saturação, é uma constante proporcional à seção de choque, à abundância isotópica e ao fluxo de nêutrons térmicos, e inversamente proporcional à massa atômica do elemento de interesse.

TABELA 1- Alguns Exemplos de Análises.

Elemento	Matriz	Técnica
Al, V, Sn, Hf	Ligas de Zr	INAA
Th	Água, sedimentos, alimentos e filtros de ar Rejeitos industriais, urânio, urina	INAA RNAA, coprecipitação
U	Água, sedimentos, alimentos e filtros de ar rejeitos industriais	INAA RNAA, extração por solvente
As	Água, sedimentos, solos, alimentos e filtros de ar Rejeitos industriais Urânio	INAA RNAA, coprecipitação RNAA, volatilização da arsina
W	Aço	INAA
Mo	Aço	INAA, nêutrons epitérmicos
Hg	Sedimentos Urina	INAA RNAA
Zr, Sr, Ti, Hf	Liga de Pb-Zr-Ti	INAA
Ba	Água e leite	RNAA
Au	Minérios e rochas	INAA ou RNAA
Sm	Gadolínio	INAA
K	Sedimentos, solos e rochas	INAA
Cr, Zn	Cabelo	INAA
Mn	Soro sanguíneo	RNAA
Ga	Rejeitos industriais	RNAA
Análise Multielementar	Sedimentos e solos	INAA

* INAA - análise por ativação instrumental.

RNAA - análise por ativação com separação radioquímica.

TABELA 2- Parâmetros Relacionados às Análises.

Isótopo	Saturação (A_{ψ}) (Bq/g)	$T_{1/2}$	t_i	t_d	t_m	E_{γ} (keV)
Na-24	$9,1 \times 10^9$	15 h	30 min	12 h	5 min	1368,4
Al-28	$3,4 \times 10^9$	2,31 min	1 min	1 min	2 min	1779
Cl-38	$1,1 \times 10^9$	37,2 min	5 min	5 min	10 min	1642
K-42	$9,7 \times 10^8$	12,4 h	30 min	12 h	10 min	1524,7
Sc-46	$2,3 \times 10^{11}$	83,9 d	4 h	30 d	60 min	889,4
Ti-51	$7,6 \times 10^7$	5,8 min	1 min	1 min	1 min	320
V-52	$3,8 \times 10^{10}$	3,8 min	1 min	1 min	2 min	1434,4
Cr-51	$5,4 \times 10^9$	27,8 d	16 h	30 d	60 min	320
Mn-56	$9,6 \times 10^{10}$	2,6 h	30 min	3 h	10 min	846,9
Fe-59	$9,6 \times 10^8$	2,6 a	16 h	30 d	60 min	1098,6
Co-60	$2,5 \times 10^{11}$	5,3 a	8 h	30 d	60 min	1332,4
Zn-65	$2,4 \times 10^9$	245 d	8 h	30 d	60 min	1115,4
Ga-72	$1,08 \times 10^{10}$	14,1 h	30 min	12 h	15 min	834,1
As-76	$2,3 \times 10^{10}$	26,5 h	4 h	48 h	30 min	559,2
Se-75	$2,4 \times 10^9$	120,4 d	8 h	30 d	60 min	136
Br-82	$6,4 \times 10^9$	35,3 h	30 min	24 h	15 min	776,6
Sb-122	$1,2 \times 10^{10}$	2,8 d	4 h	24 h	30 min	564
Cs-134	$9,4 \times 10^{10}$	2,1 a	4 h	30 d	60 min	604,7
Ba-139	$7,2 \times 10^8$	82,9 min	60 min	120 m	15 min	165,8
La-140	$2,3 \times 10^{10}$	40,2 h	30 min	24 h	15 min	486,8
Ce-139	$1,04 \times 10^7$	140 d	4 h	30 d	60 min	165,8
Nd-147	$6,5 \times 10^8$	11,1 d	4 h	7 d	60 min	91,4
Sm-155	$3,2 \times 10^9$	23 min	5 min	5 min	5 min	104,2
Eu-152m	$4,1 \times 10^{12}$	9,3 h	1 min	12 h	10 min	842
Gd-161	$4,2 \times 10^8$	3,7 min	1 min	1 min	2 min	360,4
Dy-165 m	$1,2 \times 10^{12}$	1,3 min	1 min	1 min	1 min	94,6
Ho-166	$1,5 \times 10^{11}$	26,9 h	5 min	24 h	15 min	80,6
Hf-181	$9,7 \times 10^9$	42,5 d	30 min	72 h	30 min	482,2
Ta-182	$4,6 \times 10^{10}$	115 d	30 min	15 d	30 min	1121,1
W-185	$1,2 \times 10^9$	75 d	2 h	20 d	30 min	125,5
Au-198	$1,99 \times 10^{11}$	64,7 d	5 min	48 h	10 min	411,8
Hg-203	$2,9 \times 10^9$	46,9 d	16 h	30 d	60 min	279,1
Th-233	$1,3 \times 10^{10}$	22,2 min	5 min	10 min	10 min	86,6
U-239	$4,6 \times 10^8$	23,5 min	5 min	5 min	5 min	74,7

Na Tabela 2, $T_{1/2}$ é a meia vida, t_i é o tempo de irradiação, t_d é o tempo de espera entre a irradiação e a contagem e t_m é o tempo de contagem. E_γ é a energia gama mais usada.



FIGURA 7 - Análise por ativação neutrônica.

1.6. Taxa de reação por núcleo

A equação fundamental da análise por ativação, equação (I-8), pode ser expressa de uma forma mais geral como (INSTITUTO PERUANO DE ENERGIA NUCLEAR, 1995):

$$A_{0,B} = \frac{0,6023 \theta_A w}{M_A} \left[\int_0^\infty \sigma(v) \phi(v) dv \right] S \quad (I-16)$$

Onde:

$A_{0,B}$ - Atividade do analito obtida ao final da irradiação ou no tempo zero;

$S = 1 - e^{-\lambda t_i}$ é fator de saturação, veja equações (I-5) e (I-6).

A constante 0,6023 decorre da conversão de unidade da secção de choque de cm^2 para barn ($1\text{barn}=10^{-24}\text{cm}^2$), juntamente como o número de Avogadro.

A partir desse ponto, as notações serão apresentadas de uma forma mais geral para fins de simplificação. Assim, $A_{0,B}$ será apenas A_0 , e toda grandeza característica do elemento B, o analito, será escrito omitindo o índice B.

A atividade no tempo zero para um isótopo com esquema simples de desintegração e meia vida curta se comparada ao tempo de contagem, junto a outros com atividade maior e meias vidas significativas (também em relação ao tempo de contagem) pode ser calculada reescrevendo a equação (I-11), considerando fatores de decaimento:

$$A_0 = \frac{C_1 DC / t_m}{\varepsilon_r P_r} \quad (\text{I-17})$$

D e C são fatores de correção devido ao decaimento radioativo do elemento durante o processo de análise: D corrige o decaimento entre o final da irradiação e o início das contagens e C corrige o decaimento durante as contagens. Tais fatores são calculados a partir das equações:

$$D = e^{-\lambda t_d} ; C = \frac{(1 - e^{-\lambda t_m})}{\lambda t_m} \quad (\text{I-18})$$

Essas equações serão usadas posteriormente, para deduzir a equação fundamental do método k_0 , equação (II-5).

A equação (I-16) mostra que existe uma relação de proporcionalidade direta entre a atividade obtida no final da irradiação (A_0) e a massa (w) do elemento presente na amostra, o que é a base dos métodos absolutos de análise por ativação. A constante de decaimento, a massa molar e a abundância isotópica são constantes naturais, a atividade ao final da irradiação e o tempo de irradiação são fatores experimentais

possíveis de serem determinados com razoável precisão e exatidão. O parâmetro mais difícil de avaliar na equação de ativação é a integral que representa a taxa de reação do isótopo, em estudo. A dificuldade em avaliar esse parâmetro tem feito com que nas seis décadas de utilização da ativação neutrônica, os métodos comparativos tenham sido preferidos.

Nas integrais das equações (I-1) e (I-16), as funções $\sigma(v)$ [ou $\sigma(E)$] e $\phi(v)$ [ou $\phi(E)$] são complexas e dependem respectivamente, da reação (n,γ) e do local de irradiação, não dispondo de descrições teóricas exatas por meio de funções analíticas integráveis. Frente a estas dificuldades, a resolução destas integrais só é feita através de aproximações. Assim, foram desenvolvidas algumas convenções, baseadas em propriedades de $\sigma(v)$ e $\phi(E)$, determinadas de forma experimental, que corretamente empregadas dão resultados precisos e exatos. As convenções mais utilizadas são a de Westcott (WESTCOTT et al., 1958; INSTITUTO PERUANO DE ENERGIA NUCLEAR, 1995; DE CORTE et al., 1994), a de Högdahl (1965) e a de Stoughton e Halperin (1959). As duas últimas são relativamente mais simples que a de Westcott, porém menos rigorosas e de aplicação mais restrita. Recentemente, Blaauw et al. (1991) desenvolveram também uma convenção alternativa que afirmam ser particularmente apropriada para o método k_0 .

Neste trabalho serão usadas as convenções de Högdahl e Westcott.

1.6.1. Convenção de Högdahl

Para todos os isótopos que se comportam idealmente frente aos nêutrons com energia entre zero e aproximadamente 1eV, Högdahl propôs uma convenção relativamente simples (HÖGDAHL, 1965).

Esta convenção baseia-se no fato experimental que, se uma amostra é irradiada em uma cápsula de cádmio de 1 mm de espessura, a cápsula absorverá completamente

os nêutrons de energias inferiores a $E_{Cd} = 0,55$ eV (subcádmicos), deixando passar livremente os de energias superiores (epicádmicos). Assim, a integral da taxa de reação pelo núcleo pode ser dividida em duas partes

$$R = \int_0^{\infty} \sigma(v) \phi'(v) dv = \int_0^{v_{Cd}} \sigma(v) \phi'(v) dv + \int_{v_{Cd}}^{\infty} \sigma(v) \phi'(v) dv \equiv R_t + R_e \quad (I-19)$$

Onde:

v_{Cd} é a velocidade de nêutrons correspondente à energia de corte do cádmio E_{Cd} .

Devido ao comportamento ideal da seção de choque e do fluxo de nêutrons (FIGURAS 2 e 3) considerado nos limites da primeira integral é possível escrever:

$$R_t = \int_0^{v_{Cd}} \sigma(v) \phi'(v) dv = \sigma_0 v_0 \int_0^{v_{Cd}} n(v) dv \quad (I-20)$$

Onde σ_0 é a seção de choque para nêutrons à velocidade $v_0 = 2200$ m/s (velocidade média dos nêutrons térmicos) e $n(v)$ é a densidade de nêutrons à velocidade v .

Usualmente é preferível expressar a integral de taxa de reação por núcleos para nêutrons epicádmicos em termos da energia cinética dos nêutrons:

$$R_e = \int_{v_{Cd}}^{\infty} \sigma(v) \phi'(v) dv = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \phi'_e(E) dE \quad (I-21)$$

O espectro do fluxo de nêutrons a partir de $E=0,35$ eV pode ser descrito pela equação (I-22) (BLAAUW et al., 1991) que é o fluxo epitérmico a partir desta energia (FIGURA 3):

$$\phi'_e(E) = \frac{\phi(E_{ref}) E_{ref}^{1+\alpha}}{E^{1+\alpha}} \quad (I-22)$$

Por convenção, o valor de E_{ref} é tomado como 1eV (HÖGDAHL, 1965; INSTITUTO PERUANO DE ENERGIA NUCLEAR, 1995) e o expoente α descreve o grau de não idealidade do espectro epitérmico, sendo um dado para cada reator e para cada posição de irradiação.

Substituindo a equação (I-22) na equação (I-21) obtém-se:

$$\int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) \varphi(E) dE = \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) \left(\frac{\varphi(E_{ref}) E_{ref}^{1+\alpha}}{E^{1+\alpha}} \right) dE \quad (I-23)$$

Os fluxos térmico e epitérmico convencionais são definidos, respectivamente, por:

$$\varphi_t = v_0 \int_0^{V_{cd}} n(v) dv \quad e \quad \varphi_e = \varphi(E_{ref}) E_{ref} \quad (I-24)$$

A integral de ressonância $I_0(\alpha)$ é definida por (DE CORTE, 1986b):

$$I_0(\alpha) = \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{E_{ref}^{\alpha}}{E^{1+\alpha}} dE \quad (I-25)$$

Empregando as equações (I-24) e (I-25) a taxa de reação por núcleo para nêutrons epitérmicos é:

$$\int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) \varphi(E) dE = I_0(\alpha) \varphi_e \quad (I-26)$$

E, finalmente, a taxa de reação por núcleo R é :

$$R = \varphi_t \sigma_0 + \varphi_e I_0(\alpha) \quad (I-27)$$

Pode-se verificar então que a determinação experimental da taxa de reação epitérmica R_e , quando se irradia sob uma cobertura de cádmio é:

$R_e = \varphi_e I_0(\alpha)$, quando se corrige pela não idealidade do fluxo epitérmico ou $R_e = \varphi_e I_0$ se se considera um fluxo ideal.

A taxa de reação térmica é:

$$R_t = \varphi_t \sigma_0$$

Uma outra quantidade muito útil é a razão de cádmio, R_{Cd} , dada por:

$$R_{Cd} = \frac{R}{R_e} = \frac{\varphi_t \sigma_0 + \varphi_e I_0(\alpha)}{\varphi_e I_0(\alpha)} = [f / Q_0(\alpha)] + 1 \quad (I-28)$$

Ou, no caso de um fluxo epitérmico ideal:

$$R_{Cd} = \frac{R}{R_e} = \frac{\varphi_t \sigma_0 + \varphi_e I_0}{\varphi_e I_0} = [f / Q_0] + 1 \quad (I-29)$$

Com $f = \frac{\varphi_t}{\varphi_e}$, razão entre os fluxos térmico e epitérmico e

$Q_0(\alpha) = I_0(\alpha) / \sigma_0$ ou $Q_0 = I_0 / \sigma_0$ razão entre integral de ressonância e seção de choque à velocidade do nêutron de 2200 m s⁻¹.

As tabelas normalmente publicadas de dados nucleares para diversos isótopos contêm os valores de σ_0 e $I_0(0)$. A relação entre $I_0(0)$ e $I_0(\alpha)$ é fornecida por (MOENS et al., 1979a; ROSSI, 1995):

$$I_0(\alpha) = E_{ref}^\alpha \left(\frac{I_0(0) - 0,429\sigma_0}{\bar{E}_r^\alpha} + \frac{0,429\sigma_0}{(1+2\alpha)E_{Cd}^\alpha} \right) \quad (I-30)$$

$\bar{E}_r$ é a energia efetiva de ressonância, propriedade do isótopo em estudo. Assim, pela convenção de Högdahl, considerando a não idealidade da distribuição do fluxo de nêutrons epitérmicos, necessita-se conhecer três propriedades do isótopo em estudo: σ_0 , $I_0(0)$ e E_r , e três parâmetros da posição de irradiação: ϕ_b , ϕ_e e α . Os valores de σ_0 , $I_0(0)$ e E_r , têm sido determinados experimentalmente, para quase todos os isótopos de interesse (MOENS, 1984; DE CORTE e SIMONITS, 1989a; VAN DER LINDEN, 1972).

1.6.2. Convenção de Westcott

A convenção ou formalismo de Westcott desenvolve um método para calcular a taxa de reação, a partir de características do espectro e do valor da secção de choque para o processo considerado. Foi proposta em 1958 por C. H. Westcott et al. (1958). É um modelo detalhista e muito rigoroso que se aplica nos espectros neutrônicos bem termalizados, ou seja $\left[\frac{\phi_t}{\phi_e} \right] \gg 1$. Sua principal vantagem é que não requer que os isótopos sigam a lei $\sigma(\nu) \sim \left(\frac{1}{\nu} \right)$ em nenhuma porção do domínio de energia do espectro neutrônico e vem sendo utilizada freqüentemente, por vários especialistas em análise por ativação neutrônica por métodos paramétricos (SILVA, 1991; DE CORTE et al., 1994; ALIAN et al., 1973 e 1984; ALIAN e SANSONI, 1980 e 1985).

Segundo essa convenção, o fluxo neutrônico à energia E é o resultado da contribuição das componentes térmica e epitérmica e pode ser expresso por:

$$\phi'(E) = \phi_t \frac{E}{(kT)^2} e^{-\frac{E}{kT}} + \phi_e \frac{\Delta(E/kT)}{E} \quad (I-31)$$

onde $\Delta(E/kT)$ é a função de junção entre o fluxo térmico ou Maxwelliano e o fluxo epitérmico, definida posteriormente.

A integral da taxa de reação por núcleo é dada pela expressão:

$$R = \int \sigma(v) \phi(v) dv = nv_0 \hat{\sigma} \quad (I-32)$$

onde $\hat{\sigma}$ é a seção de choque efetiva.

Segundo os autores este formalismo tem a característica que para qualquer reação cuja seção de choque siga a lei $1/v$, o valor efetivo dessa seção de choque para qualquer espectro neutrônico será justamente σ_0 , e que a velocidade de reação é proporcional a densidade neutrônica e independente do espectro neutrônico, ou seja, (WESTCOTT et al., 1958; DE CORTE et al., 1994):

$$R = \int \frac{\sigma_0 v_0}{v} n(v) v dv = nv_0 \sigma_0 \quad (I-33)$$

Analisando o modelo aproximado que considera o espectro neutrônico de um reator nuclear bem moderado como a soma de um fluxo epitérmico e outro Maxwelliano, Westcott e colaboradores deduziram a seguinte equação para a seção de choque efetiva (WESTCOTT et al., 1958; INSTITUTO PERUANO DE ENERGIA NUCLEAR, 1995; DE CORTE et al., 1994):

$$\hat{\sigma} \equiv \sigma_0 \left[g(T_n) + r S_0 \sqrt{T_n / T_0} \right] \quad (I-34)$$

O sentido físico de $\hat{\sigma}$ é o da probabilidade de captura neutrônica média para o espectro real que se irradia o isótopo de interesse. $g(T_n)$ é o fator de correção introduzido por Westcott para corrigir qualquer desvio de $\sigma(v)$ relativo a proporcionalidade $(1/v)$ enquanto r representa a intensidade relativa da componente epitérmica.

$$g(T_n) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{T_n/T_0} \frac{1}{\sigma_0} \int \sigma(E) \left(\frac{E}{KT} \right) e^{-\frac{E}{KT}} \frac{dE}{KT} \quad (I-35)$$

O parâmetro S_0 é definido por

$$S_0 = \frac{2I'}{\sqrt{\pi}\sigma_0} \quad (I-36)$$

Onde I' é a integral de ressonância reduzida de Westcott, que será examinada mais adiante.

Para dedução da equação (I-34) é necessário algumas considerações:

- a densidade neutrônica volumétrica por intervalo unitário de velocidades pode ser escrita como (INSTITUTO PERUANO DE ENERGIA NUCLEAR, 1995):

$$n(v) = n(1 - \eta)\delta_m(v) + n\eta\delta_e(v) \quad (I-37)$$

- onde δ_m e δ_e são as funções de densidade de distribuição Maxwelliana e epitérmica, as quais estão normalizadas de modo que:

$$\int_0^{\infty} \delta_m(v) dv = \int_0^{\infty} \delta_e(v) dv = 1 \quad (I-38)$$

Enquanto que para a densidade neutrônica total, tem-se:

$$n = \int_0^{\infty} n(v) dv \quad (I-39)$$

A quantidade η é a fração da densidade neutrônica total na distribuição epitérmica e está relacionada com r . Chamando de v_{Tn} a velocidade de um nêutron com energia cinética, kT_n , a função de distribuição Maxwelliana normalizada é:

$$\delta_m(v) = \frac{4}{\pi^{1/2}} \frac{v^2}{v_{Tn}^3} e^{-(v/v_{Tn})^2} \quad (I-40)$$

A densidade epitérmica é proporcional a $1/E$ por intervalo unitário de energia, então:

$$\delta_e(v) \propto v^{-2} \quad (I-41)$$

O final da densidade epitérmica na zona de baixas energias pode ser expresso por uma função matemática, $\Delta(E/kT)$, chamada "função de corte" ou função junção dos fluxos térmicos e epitérmicos (vide página 45), cuja forma mais simples é a chamada função degrau unitário:

$$\begin{aligned} \Delta &= 1 \quad \forall E > \mu kT_n \\ \Delta &= 0 \quad \forall E < \mu kT_n \end{aligned} \quad (I-42)$$

Sendo μ o coeficiente do ponto de junção e está relacionado com o moderador do reator. Para reatores moderados a água pesada e grafite, $\mu = 3,7$. E para reatores moderados a água leve foi encontrado o valor de $\mu=2,1$.

Utilizando a última expressão, tem-se então que a função normalizada de distribuição da densidade neutrônica epitérmica é:

$$\delta_e(v) = v_{Tn} \mu^{1/2} v^{-2} \Delta \quad (I-43)$$

Após essas considerações, a taxa de reação por núcleo com uma seção de choque $\sigma(v)$ no espectro neutrônico dado pela equação (I-32) é dada pela forma:

$$R = nv_0 \hat{\sigma} = \int_0^{\infty} n(v) \sigma(v) v dv = n(1 - \eta) \int_0^{\infty} \frac{4v^3}{\sqrt{\pi} v_{T_n}^3} e^{-(v/v_{T_n})^2} \sigma(v) dv + n\eta v_{T_n} \mu^{1/2} \int_0^{\infty} \frac{\Delta}{v} \sigma(v) dv \quad (I-44)$$

Se se considera a irradiação de um núcleo qualquer com um espectro neutrônico puramente Maxwelliano tem-se que $\eta = 0$, logo:

$$R = nv_0 \hat{\sigma}_m = n \int_0^{\infty} \frac{4}{\pi^{1/2}} \frac{v^3}{v_{T_n}^3} e^{-(v/v_{T_n})^2} \sigma(v) dv \quad (I-45)$$

$$\hat{\sigma}_m = \frac{1}{v_0} \int_0^{\infty} \frac{4}{\pi^{1/2}} \frac{v^3}{v_{T_n}^3} e^{-(v/v_{T_n})^2} \sigma(v) dv \quad (I-46)$$

Comparando as equações (I-45) e (I-33) (aplicada a um espectro Maxwelliano) Westcott e colaboradores definem o parâmetro $g(T_n)$ da seguinte maneira:

$$g(T_n) = \frac{\hat{\sigma}_m}{\sigma_0} = \frac{1}{v_0 \sigma_0} \int_0^{\infty} \frac{4}{\pi^{1/2}} \frac{v^3}{v_{T_n}^3} e^{-(v/v_{T_n})^2} \sigma(v) dv \quad (I-47)$$

Se se trabalha com um isótopo ideal, tal que $\sigma(v) \propto (1/v)$, é fácil verificar que segundo a equação (I-47) $g(T_n) = 1$. Caso contrário, seria necessário conhecer a forma detalhada de $\sigma(v)$ para encontrar o valor de $g(T_n)$. Westcott, e também outros autores, têm publicado tabelas de valores deste parâmetro em função da temperatura neutrônica para vários isótopos que desviam do comportamento ideal, mas infelizmente, essas tabelas não cobrem todas as reações “não $1/v$ ” de interesse analítico em AAN ou em muitos casos, os valores são bastante incertos (DE CORTE et al., 1992b).

Quando η não é zero, segundo Westcott e colaboradores, procede-se da seguinte maneira :

$$R = n(1 - \eta)v_0\hat{\sigma}_m + n\eta v_{T_n}\mu^{1/2} \int_0^\infty \frac{\Delta}{v} \sigma(v) dv = nv_0\hat{\sigma}_m + n\eta \left[v_{T_n}\mu^{1/2} \int_0^\infty \frac{\Delta}{v} \sigma(v) dv - v_0\hat{\sigma}_m \right] \quad (I-48)$$

Para mostrar o significado físico desta última expressão pode se usar a condição de normalização para δ_e (equações (I-38) e (I-43)), obtendo primeiro:

$$v_0\hat{\sigma}_m = \hat{\sigma}_m v_{T_n}\mu^{1/2} \int_0^\infty \left(\frac{v_0}{v} \right) \frac{\Delta}{v} dv \quad (I-49)$$

Introduzindo a equação (I-49) na equação (I-48), multiplicando e dividindo o segundo termo do lado direito da equação (I-48) por $\sigma_0 v_0$ e levando em conta que $\frac{dE}{E} = \frac{2dv}{v}$, obtém-se:

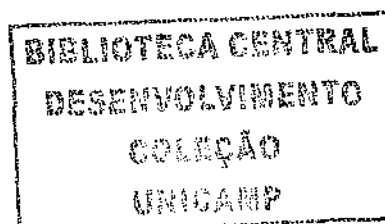
$$\begin{aligned} R &= nv_0\hat{\sigma}_m + n\eta \left[v_{T_n}\mu^{1/2} \int_0^\infty \left[\sigma(v) - \frac{v_0\hat{\sigma}_m}{v} \right] \left(\frac{\Delta}{v} \right) dv \right] \\ &= nv_0\sigma_0 g(T_n) + \frac{n\eta}{2} \left[v_{T_n}\mu^{1/2} \int_0^\infty \left[\sigma(v) - \frac{v_0\hat{\sigma}_m}{v} \right] \Delta dE \right] \\ &= nv_0\hat{\sigma} \end{aligned} \quad (I-50)$$

Onde:

$$\hat{\sigma} = \sigma_0 \left(g(T_n) + \frac{\eta\mu^{1/2}}{2\sigma_0} \frac{v_{T_n}}{v_0} I' \right) \quad (I-51)$$

$$I' = \int_0^\infty \left[\sigma(E) - \frac{g(T_n)\sigma_0 v_0}{v} \right] \frac{\Delta(E)dE}{E} \quad (I-52)$$

ΔE é a função de junção do espectro do reator, que descreve a terminação de baixa energia dos nêutrons epitérmicos.



Westcott prefere uma função Δ_4 dada por (DE CORTE et al., 1994):

$$\Delta_4(E) = \left[1 - \frac{0,26}{1 + [E/(16,4kT_n)]^5} + \left(\frac{4,75kT_n}{E} \right)^7 \right]^{-1} \quad (I-53)$$

Que é centrada em torno de $5kT_n$. Usualmente, é introduzido um valor de corte μkT_n (DE CORTE et al., 1994).

Desse modo a equação (I-52) torna-se:

$$I' = \int_{\mu kT_n}^{\infty} \left[\sigma(E) - \frac{g(T_n)\sigma_0 v_0}{v} \right] \frac{\Delta(E)dE}{E} \quad (I-54)$$

Westcott e colaboradores definiram o índice espectral epitérmico da seguinte maneira:

$$r(\alpha) \sqrt{\frac{T_n}{T_0}} = r \sqrt{\frac{T_n}{T_0}} (1 + 2\alpha)(\mu kT_n)^{\alpha} (1eV)^{-\alpha} \quad (I-55)$$

Onde, r é definido por:

$$r = \eta \frac{(\pi\mu)^{1/2}}{4} \quad (I-56)$$

Pela teoria de Maxwell, pode-se dizer que:

$$\frac{v_{T_n}}{v_0} = \left(\frac{T_n}{T_0} \right)^{1/2} \quad (I-57)$$

Assim:

$$\hat{\sigma} = \sigma_0 \left(g(T_n) + \frac{2}{\sigma_0 \sqrt{\pi}} \left(\frac{T_n}{T_0} \right)^{1/2} r I' \right) \quad (I-58)$$

Finalmente, levando em conta a definição de S_0 , equação (I-36), tem-se para a secção de choque efetiva de Westcott :

$$\hat{\sigma} \equiv \sigma_0 \left[g(T_n) + rs_0 \sqrt{\frac{T_n}{T_0}} \right] \quad (I-59)$$

1.7. Métodos de análise por ativação neutrônica instrumental

Como foi visto na equação (I-15) e considerando a taxa de reação por núcleo (R), na análise por ativação (n,γ), a massa do analito a ser determinado na amostra é encontrada pelas equações:

$$w_A = \frac{M_A}{N_A \theta_A P_{\gamma,A}} \frac{\left(\frac{C_i/t_m}{SDC} \right)_a}{\left[F_{abt,A} \phi_i \sigma_{0,A} + F_{abe,A} \phi_e I_{0,A}(\alpha) \right] \varepsilon_{\gamma,A}} \quad (I-60)$$

quando a amostra é irradiada em todo o espectro de nêutrons, e

$$w_A = \frac{M_A}{N_A \theta_A P_{\gamma,A}} \frac{\left[\left(\frac{C_i/t_m}{SDC} \right)_{Cd} \right]_A}{F_{abe,A} F_{Cd,A} \phi_e I_{0,A}(\alpha) \varepsilon_{\gamma,A}} \quad (I-61)$$

se a amostra é irradiada sob uma cobertura de cádmio.

O índice A se refere ao analito e os termos F_{abt} e F_{abe} correspondem aos fatores de auto blindagem térmica e epitérmica, respectivamente. O termo $F_{Cd} = \frac{(A_{esp})_{Cd}}{(A_{esp})_e}$ é o fator de transmissão epitérmica e indica quão transparente é a cobertura de cádmio aos nêutrons epitérmicos. $(A_{esp})_{Cd}$ é a atividade específica de um isótopo irradiado

com cobertura de cádmio e $(A_{esp})_e$ é a atividade específica de um isótopo sem cobertura no qual só chegam nêutrons epitérmicos. Na prática o valor de F_{Cd} para a maioria dos elementos é igual a unidade (EL NIMR, 1981).

Este é o efeito devido a diminuição do fluxo de nêutrons ao atravessar a amostra contendo elementos de seção de choque muito grande. Os fatores F_{abt} e F_{abe} são termos de correção a serem multiplicados por $\varphi_t \sigma_0$ e $\varphi_e I_0(\alpha)$, respectivamente, para corrigir a taxa de reação numa dada amostra (DE CORTE, 1986b).

1.7.1. Método absoluto

O método absoluto de padronização, experimentalmente muito simples, requer não só o conhecimento dos parâmetros M , θ , P_γ e σ_0 com bastante precisão, tanto para o analito como para o monitor, mas também, que os parâmetros φ , f e α permaneçam constantes, durante a irradiação. É o método típico para espectros fortemente térmicos (altos valores de f).

Por esse método o cálculo da concentração, $\rho(ppm) = \frac{w}{W}$, do analito é dado por:

$$\rho_A(ppm) = \frac{\left[\frac{C_{lc}}{t_m} \right]_A}{A_{esp,m}} \frac{M_A \theta_m P_{\gamma,m} \sigma_{0,m} F_{abt,m} f + F_{abe,m} Q_{0,m}(\alpha) \varepsilon_{\gamma,m}}{M_m \theta_A P_{\gamma,A} \sigma_{0,A} F_{abt,A} f + F_{abe,A} Q_{0,A}(\alpha) \varepsilon_{\gamma,A}} 10^6 \quad (1-62)$$

Os índices m e A se referem ao monitor de fluxo e analito, respectivamente e W é a massa da amostra. O termo $A_{esp} = \frac{C_{lc}}{SDCW}$, é a atividade específica.

1.7.2. Método do comparador múltiplo ou relativo

O método relativo é um método amplamente usado, que consiste em irradiar a amostra juntamente com um padrão sintético ou um material de referência que tenha as mesmas características da amostra e no qual a quantidade do elemento a ser determinado seja conhecida.

A amostra e o padrão são irradiados na mesma posição sob o mesmo fluxo, durante o mesmo tempo. A atividade produzida no radionuclídeo é medida no mesmo detector, em geometrias iguais, tomando-se a área para o fotopico γ de mesma energia.

Comparando-se o elemento a ser determinado na amostra com o mesmo elemento presente no padrão pelo mesmo produto de ativação, pode-se eliminar do cálculo também o fator de saturação, peso atômico, a abundância isotópica, a constante de desintegração e a secção de choque efetiva.

Considerando que a maioria dos termos na equação (I-62) se cancelarão, as equações (I-60) e (I-61) podem ser reescritas, gerando respectivamente:

$$w_A = \frac{\left(\frac{C_I/t_m}{DC}\right)_A}{\left(\frac{C_I/t_m}{DCw}\right)_p} \quad \text{ou} \quad \rho_A(ppm) = \frac{\left(\frac{C_I/t_m}{DCW}\right)_A}{\left(\frac{C_I/t_m}{DCw}\right)_p} 10^6 \quad (\text{I-63})$$

$$w_A = \frac{\left[\left(\frac{C_I/t_m}{DC}\right)_{Cd}\right]_A}{\left[\left(\frac{C_I/t_m}{DCw}\right)_{Cd}\right]_p} \quad \text{ou} \quad \rho_A(ppm) = \frac{\left[\left(\frac{C_I/t_m}{DCW}\right)_{Cd}\right]_A}{\left[\left(\frac{C_I/t_m}{DCw}\right)_{Cd}\right]_p} 10^6 \quad (\text{I-64})$$

Os índices A e p se referem a analito e padrão, respectivamente, W é a massa da amostra e a w é massa do analito.

O método permite determinar concentrações do analito com melhor precisão do que o método absoluto, entretanto, fica-se restrito a elementos simultaneamente presentes na amostra e no padrão. Deve-se levar em conta também que a preparação de um padrão sintético aumenta o custo da análise devido a mão de obra empregada e ao tempo gasto, podendo se tornar uma fonte de erros na preparação com as diluições de soluções, problemas de adsorção do analito em frascos, tubos de irradiações, etc.

1.7.3. Métodos semi-absolutos

Estes métodos consistem em reunir os conjuntos de dados nucleares experimentais ou avaliados que aparecem na expressão do método absoluto, em um só parâmetro que por sua vez, se possa determinar com relativa facilidade.

São vários os métodos semi absolutos usados na AAN, porém por sua importância, nesse trabalho só será mencionado o método k_0 .

A FIGURA 8 apresenta um esquema dos procedimentos seguidos nos diferentes métodos de análise por ativação neutrônica.

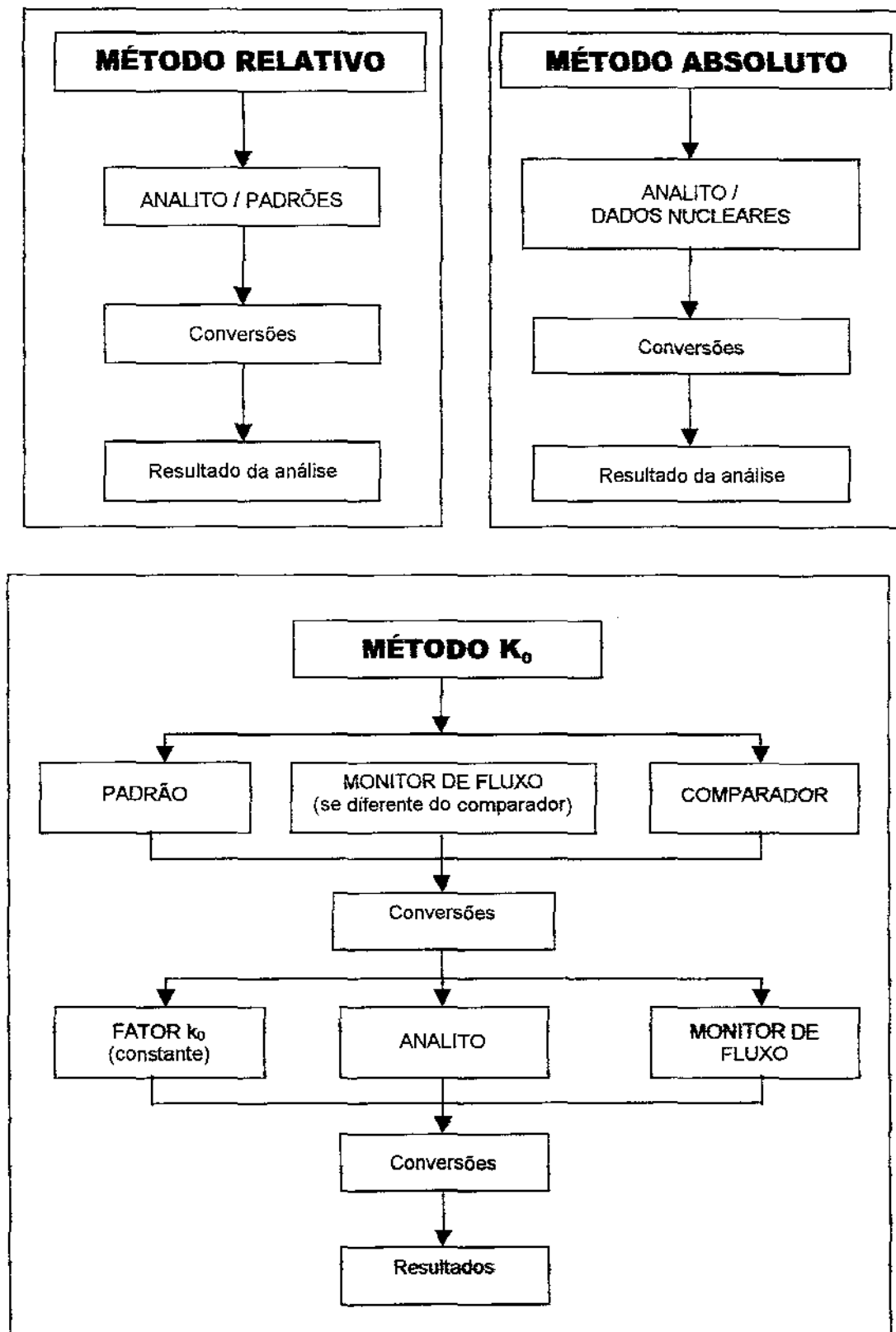


FIGURA 8 - Representação esquemática dos procedimentos seguidos nos diferentes métodos de análise por AAN.

CAPÍTULO II - ASPECTOS TEÓRICOS DA TÉCNICA PARAMÉTRICA

K_0

2 ASPECTOS TEÓRICOS DA TÉCNICA PARAMÉTRICA k_0

Ainda que o método comparativo seja intrinsecamente exato, torna-se pouco prático para análises multielementares de grande número de amostras, devido à necessidade de se preparar e medir grande quantidade de padrões multielementares. São operações que consomem muito tempo e podem introduzir várias fontes de erros. A análise quantitativa de elementos que podem aparecer inesperadamente na amostra não é possível, se não se preparou o padrão para aquele elemento. Por outro lado, o uso de materiais de referência como padrões multielementares não é uma boa solução devido ao seu alto custo, disponibilidade limitada e, sobretudo a limitada exatidão e precisão dos valores certificados para diversos elementos.

Por estas e outras razões vêm aumentando estudos em busca de métodos absolutos de análise. Estes métodos requerem um conjunto arbitrariamente selecionado de valores de constantes nucleares, introduzindo assim as correspondentes incertezas nos resultados. Uma situação intermediária entre os métodos absoluto e comparativo são os métodos semi-absolutos denominados "monostandar" e "bi-standar" a partir dos quais emergiu o método k_0 . Este método foi desenvolvido no período de 1975-1991, principalmente, no Institute for Nuclear Sciences da Rijksuniversiteit de Ghent na Bélgica e surge como uma excelente alternativa, que combina as vantagens dos métodos absolutos e comparativo, eliminando ao mesmo tempo várias desvantagens importantes de cada um. Atualmente, o método vem sendo usado em laboratórios na Bélgica, Hungria, Holanda, Alemanha, Estados Unidos, Eslovênia, Portugal, Peru, etc (ROSSI, 1995; DE CORTE et al., 1992b; JOVANOVIĆ e VUKOTIĆ, 1989; YUSUF e FLEMING, 1993).

Nos métodos paramétricos de AAN, como foi visto, as concentrações dos analitos são calculadas diretamente dos valores de constantes nucleares e parâmetros pré-medidos. Esses métodos apresentam grandes vantagens em relação aos métodos

comparativos, mas podem ser pouco precisos devido às incertezas nos parâmetros envolvidos, e principalmente, a problemas de instabilidade de fluxos na região de irradiação de amostras.

Os dados que encontramos tabelados são: o período de semi-desintegração do radionuclídeo e a energia efetiva de ressonância. Dependendo do método utilizado são também a massa atômica relativa do elemento e a abundância isotópica do precursor, as seções de choque e as integrais de ressonância, as intensidades das radiações medidas e a relação integral de ressonância/secção de choque que constitui os fatores Q_0 .

Além deles, usa-se os parâmetros experimentais: tempos de irradiação, medidas e decaimentos, contagem líquida do pico γ , a eficiência do detector e os fluxos térmico e epitérmico do reator.

Quanto a esses dados, pode-se classificá-los em três categorias:

- **Dados de primeira ordem:** Constantes fundamentais, como número de Avogadro e a constante de Boltzman;
- **Dados de segunda ordem:** aqueles determinados de forma absoluta e/ou com utilização de dados de primeira ordem como: períodos de semi-desintegração, massas atômicas relativas, abundâncias isotópicas, intensidades de emissão;
- **dados de terceira ordem:** são dados determinados de forma relativa com a utilização de dados de primeira e segunda ordem: seções de choque, integrais de ressonância, cociente I/σ , constantes k_0 .

Os dados de terceira ordem dependem de, por exemplo:

- **Secções de choque:** o número surge de uma metodologia de ativação em cujo cálculo final intervêm as massas atômicas relativas, as abundâncias isotópicas, as intensidades das radiações medidas e eventualmente, a secção de choque para uma reação padrão.

- **Integrais de ressonância:** empregando o método da razão de cádmio entram no cálculo a secção de choque da reação em questão, integral de ressonância e a secção de choque de uma reação padrão.
- **Quociente I/σ :** em geral, requer o conhecimento do valor equivalente para uma reação padrão.
- **Constante k_0 :** Por definição, esta constante composta está referida a um conjunto equivalente para uma reação padrão, usualmente $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$.

A qualidade dos resultados analíticos depende muito da qualidade dos dados tabelados (INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2000; JACIMOVIC et al., 2003; DE CORTE et al., 2001a e 2001b).

O aprimoramento desses dados nas últimas décadas e a disponibilidade dos computadores tornaram esses métodos muito competitivos.

2.1. Desenvolvimento das equações do método k_0

Para deduzir a equação fundamental do método k_0 , utilizando a convenção de Högdahl, pode-se começar combinando as equações (I-1), (I-16), (I-17) e (I-27) para expressar a atividade no tempo de decaimento zero, de um isótopo qualquer irradiado durante o tempo t_i :

$$\frac{C_i CD/t_m}{\varepsilon_r P_r} = 0,6023 \frac{w\theta}{M} [\varphi_e \sigma_0 + \varphi_e I_0(\alpha)] S \quad (\text{II-1})$$

Dividindo ambos os termos da equação por $\varphi_e \sigma_0$ obtém-se:

$$\frac{1}{\varphi_e \sigma_0} \frac{C_i CD/t_m}{\varepsilon_r P_r} = 0,6023 \frac{w\theta}{M} FS \quad (\text{II-2})$$

Onde:

$$F = f + Q_0(\alpha) ; \quad f = \frac{\varphi_i}{\varphi_e} ; \quad Q_0(\alpha) = \frac{I_0(\alpha)}{\sigma_0} = \frac{Q_0 - 0,429}{E_r^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)E_{ca}^\alpha} \quad (II-3)$$

Os parâmetros f e α são propriedades da posição de irradiação utilizada e podem ser determinados experimentalmente, com exatidão e precisão adequadas, como será mostrado mais a frente. $Q_0(\alpha)$ é propriedade de cada isótopo irradiado (DE SOETE et al., 1972; SIMONITS et al., 2000), ε_γ é a eficiência do detector. Os fatores C e D , assim como a massa do padrão podem em geral, serem determinados com bastante exatidão. O fator P_γ é uma propriedade do nuclídeo em estudo.

Quando se irradia simultaneamente, em uma mesma posição, uma amostra problema de massa w e uma massa exatamente conhecida w^* , de um elemento utilizado como padrão, a equação para o padrão e para o i -ésimo elemento existente na amostra pode ser escrita como:

$$\frac{1}{\varphi_e \sigma_0^*} \frac{C_i^* C^* D^*}{\varepsilon_{\gamma,i}^* P_{\gamma,i}^*} = 0,6023 \frac{w^* \theta^*}{M^*} F^* S^* \quad (II-4)$$

$$\frac{1}{\varphi_e \sigma_{0,i}} \frac{C_{i,i} C_i D_i}{\varepsilon_{\gamma,i} P_{\gamma,i}} = 0,6023 \frac{w_i \theta_i}{M_i} F_i S_i$$

Combinando ambas as equações, resulta que a massa do i -ésimo elemento presente na amostra pode ser calculada por:

$$w_i = \frac{w^* C_{i,i} \varepsilon_{\gamma,i}^* F^* S^* C_i D_i}{k_0 C_i^* \varepsilon_{\gamma,i} F_i S_i C^* D^*} \quad (II-5)$$

onde por definição:

$$k_0 = \frac{M^* \theta_i P_{\gamma,i} \sigma_{0,i}}{M_i \theta^* P_{\gamma,i}^* \sigma_0^*}$$

Os símbolos associados às propriedades para o padrão são indicados pelo (*) no expoente.

Esta é a equação fundamental do método k_0 , empregando a convenção de Högdahl. Como se percebe k_0 é uma constante natural dos isótopos em estudo podendo ser calculada a partir de seus componentes (BLAAUW, 1993; ERDTMANN et al., 1988). Para 91 isótopos de interesse os valores de k_0 têm sido medidos por diversos Laboratórios em todo o mundo e são disponíveis na literatura os valores recomendados, com incertezas menores que 2%. Para outros 21 a incerteza está na faixa de 5% (JOVANOVIĆ et al., 1985).

Para a utilização da convenção de Westcott é recomendável seguir os procedimentos de De Corte et al. (1992b), que descrevem uma forma relativamente simples de aplicação desse formalismo através do uso de um formalismo de Westcott modificado, incluindo a não idealidade do espectro neutrônico epitérmico e uma proposta para a medida da temperatura neutrônica.

Assim, a concentração do i -ésimo elemento presente na amostra, segundo esse formalismo é dado por (DE CORTE et al., 1992b e 1994; BLAAUW, 1995):

$$\rho_i = \frac{A_{esp,i}}{A_{esp}^*} \frac{1}{k_0} \frac{g^*(T_n) + r(\alpha) \sqrt{\frac{T_n}{T_0}}}{g_i(T_n) + r(\alpha) \sqrt{\frac{T_n}{T_0}}} \frac{s_0^*(\alpha) \varepsilon_{\gamma}^*}{s_{0,i}(\alpha) \varepsilon_{\gamma,i}} \quad (II-6)$$

A constante k_0 pode ser determinada empregando a equação:

$$k_0 = \frac{A_{esp,i}}{A_{esp}^*} \frac{1}{\rho_i} \frac{g^*(T_n) + r(\alpha) \sqrt{\frac{T_n}{T_0}}}{g_i(T_n) + r(\alpha) \sqrt{\frac{T_n}{T_0}}} \frac{s_0^*(\alpha) \varepsilon_{\gamma}^*}{s_{0,i}(\alpha) \varepsilon_{\gamma,i}} \quad (II-7)$$

onde:

A_{esp} é a atividade específica.

As equações acima são similares às usadas para núclídeos “ $1/\nu$ ” na convenção de Högdahl. A única modificação é que os termos $g(T_n) + r(\alpha) \sqrt{\frac{T_n}{T_0}} s_0(\alpha)$ no numerador e no denominador substituíram os termos $f + Q_0(\alpha)$, mais um parâmetro extra $g(T_n)$ para corrigir pelo comportamento não “ $1/\nu$ ”.

Segundo os autores citados, o valor de $s_0(\alpha)$ pode ser calculado por:

$$s_0(\alpha) = s_0(0) (\bar{E}_r)^{-\alpha} (1eV)^\alpha \quad (\text{II-8})$$

$\bar{E}_r$ é a energia efetiva de ressonância e será vista em mais detalhes posteriormente.

Para aqueles núclídeos cujas sessões de choque cumprem a lei $1/\nu$, s_0 é dado por:

$$s_0(0) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} Q_0(0) - 0,484 \quad (\text{II-9})$$

Para utilizar as equações (II-5) e (II-7) é necessário determinar experimentalmente, o índice espectral, α , f e ε_γ . Os três primeiros são características do reator nas diferentes posições de irradiação e, o último é uma característica do detetor de radiação gama utilizado na análise química da amostra.

2.2. Método para determinação do índice espectral e da temperatura de nêutrons

Seguindo os procedimentos de De Corte et al. (1992b), o índice espectral ou índice de Westcott $r(\alpha)\sqrt{\frac{T_n}{T_0}}$, uma medida da relação entre o fluxo epitérmico e total, pode ser determinado experimentalmente, pelo método da razão de cádmio ou pela correlação entre pares de monitores bi-isotópicos (GRYNTAKIS, 1975; DE CORTE et al., 1992b e 1994; ROSSI, 1995).

Método da razão de cádmio:

$$r(\alpha)\sqrt{\frac{T_n}{T_0}} = \frac{g(T_n)}{(R_{Cd} - 1)s_0 \frac{4}{\sqrt{\pi}} g(T_n) R_{Cd} \sqrt{\frac{E_0}{E_C}}} \quad (II-10)$$

Onde:

E_0 energia a $T_0 = 293,6K$

E_C energia de corte de cádmio

R_{Cd} $A_{esp}/(A_{esp})_{Cd}$, onde $(A_{esp})_{Cd}$ e A_{esp} são as atividades específicas produzidas pela irradiação com e sem cobertura de cádmio, respectivamente.

T_n e T_0 temperaturas neutrônica e 293,15 K, respectivamente.

Método de pares de monitores bi-isotópicos, usando o zircônio:

$$r(\alpha) \sqrt{\frac{T_n}{T_0}} = \frac{\frac{k_{0,1} \varepsilon_{\gamma,1}}{k_{0,2} \varepsilon_{\gamma,2}} g(T_n)_1 - \frac{A_{esp,1}}{A_{esp,2}} g(T_n)_2}{\frac{A_{esp,1}}{A_{esp,2}} s_{0,2}(\alpha) - \frac{k_{0,1} \varepsilon_{\gamma,1}}{k_{0,2} \varepsilon_{\gamma,2}} s_{0,1}(\alpha)} \quad (II-11)$$

Os índices 1 e 2 referem-se ao ^{97}Zr e ^{95}Zr , respectivamente.

Para a medida da temperatura neutrônica foi proposto um método absoluto, isto é sem usar nenhum sítio de irradiação com temperatura conhecida como referência.

A determinação é baseada na simples co-irradiação de Lu e um monitor “1/v” [$g(T_n)=1$], seguida de subsequente medida das atividades induzidas em um detector de germânio, calibrado em eficiência. Calcula-se a função $g(T_n)$ de Westcott para o ^{176}Lu e interpola o resultado em tabelas (GRYNTAKIS, 1975).

$$\frac{\left[\frac{A_{esp} M}{\theta_{\gamma} \sigma_0 \varepsilon_{\gamma}} \right]_{Lu}}{\left[\frac{A_{esp} M}{\theta_{\gamma} \sigma_0 \varepsilon_{\gamma}} \right]_{1/v}} = \frac{g_{Lu}(T_n) + r(\alpha) \sqrt{\frac{T_n}{T_0}} s_{0,Lu}(\alpha)}{g_{1/v}(T_n) + r(\alpha) \sqrt{\frac{T_n}{T_0}} s_{0,1/v}(\alpha)} \quad (II-12)$$

2.3. Métodos para a determinação de α

Existem vários métodos para determinação experimental de α (SIMONITS et al., 1984; PICCOT et al., 2002). Esses métodos podem ser classificados em 3 grandes grupos fundamentais: medida da razão de cádmio e irradiação com e sem cobertura de cádmio. Os três métodos se fundamentam na generalização do método do “Detector multiressonante” descrito por Schumann e Albert citados em (DE CORTE et al., 1979a, 1981 e 1992; DE BEECK, 1985; YVES e PAUL, 1968).

Este método se baseia no fato de que o fluxo epitérmico não ideal possa ser descrito de forma aproximada pela equação (I-22) que pode ser re-escrita como:

$$\varphi_e'(E) = \varphi_e \frac{1eV^\alpha}{E^{1+\alpha}} \quad (II-13)$$

$$\varphi_e'(E)E = \varphi_e E^{-\alpha} 1eV^\alpha \quad (II-14)$$

de modo que quando se constrói um gráfico de $\text{Log } \varphi_e'(E).E$ vs. $\text{Log } E$, se obtém uma reta cujo coeficiente angular é $-\alpha$. Os valores discretos de $\varphi_e(E) E$ podem ser obtidos irradiando uma série de núclídeos de ressonância com cobertura de cádmio, cada um dos quais se caracteriza por um pico de ressonância com energia E_r e bordas $1/v$ desprezíveis. Assim, para cada núclídeo obtém-se:

$$\varphi_e'(E_r)E_r = \varphi_e E_r^{-\alpha} 1eV^\alpha \quad (II-15)$$

$$= \varphi_e' E_r^{-\alpha} 1eV^\alpha \quad (II-16)$$

Sob estas condições, pode-se demonstrar que $E_r^{1+\alpha} I_0(\alpha) 1eV^{-\alpha}$ é bastante independente de α , ou: $E_r^{1+\alpha} I_0(\alpha) = E_r I_0(\alpha) 1eV^{-\alpha}$ o que conduz a:

$$E_r^{-\alpha} = \frac{I_0(\alpha)}{I_0} 1eV^\alpha \quad (II-17)$$

Isto significa que $\varphi_e(E_r)E_r$ da equação (II-15) pode ser calculado como:

$$\varphi_e(E_r)E_r = \frac{\varphi_e I_0(\alpha)}{I_0} \quad (II-18)$$

$$\varphi_e(E_r)E_r = \frac{R_e}{I_0} \quad (II-19)$$

Onde R_e é a taxa de reação por núcleo com nêutrons epitérmicos, que no caso de detectores de semicondutores pode-se expressar na seguinte forma:

$$R_e = \frac{A_{esp,e}M}{\theta N_A P_y \varepsilon_\gamma} \quad (II-20)$$

Os monitores com ressonâncias simples são poucos, é por isso que o método de Schumann e Albert se generalizou com o conceito de energia média de ressonância, $\overline{E_r}$, introduzido por Ryves (INSTITUTO PERUANO DE ENERGIA NUCLEAR, 1995; DE CORTE et al., 1986a). Do que foi dito, a equação (II-15) pode ser escrita como:

$$\varphi_e(\overline{E_r})\overline{E_r} = \varphi_e \overline{E_r}^{-\alpha} 1eV^\alpha \quad (II-21)$$

$$= \varphi_e \overline{E_r}^{-\alpha} 1eV^\alpha \quad (II-22)$$

$\overline{E_r}$ é definida como a energia de uma ressonância simples hipotética, que dá a mesma velocidade de reação ressonante de todas as ressonâncias que o isótopo possui.

Substituindo a equação (I-30) na equação (II-22) se obtém, finalmente:

$$\varphi_e(\overline{E_r})\overline{E_r} = \frac{R_e(\overline{E_r})^{-\alpha}}{\frac{I_0(0) - 0,429\sigma_0}{[\overline{E_r}(\alpha)]^\alpha} - \sigma_0} \frac{0,4291eV^\alpha}{(2\alpha+1)0,55^\alpha} \quad (II-23)$$

como: $Q_0(\alpha) = I_0(\alpha) / \sigma_0$

$$\varphi_e(\overline{E_r})\overline{E_r} = \frac{R_e(\overline{E_r})^{-\alpha}}{\sigma_0 Q_0(\alpha)} \quad (\text{II-24})$$

Como R_e , σ_0 e $Q_0(\alpha)$ são constantes para cada elemento analisado, a expressão 88 pode ser escrita como:

$$\varphi_e(\overline{E_r})\overline{E_r} = Cte (\overline{E_r})^{-\alpha} \quad (\text{II-25})$$

resultando uma função potencial de α de modo que se se constrói um gráfico $\log[cte.(\overline{E_r})^{-\alpha}]$ versus $\log \overline{E_r}$ o coeficiente angular da reta obtida no papel log - log será $-\alpha$.

2.3.1. Método de multimonitores com cobertura de cádmio

Este método é apropriado para a determinação de α em AAN epitérmica. Um conjunto de vários monitores é irradiado simultaneamente, sob uma cobertura de cádmio e são posteriormente, medidos em um detector HPGe com eficiência bem determinada. Na expressão (II-24) o termo da taxa de reação por núcleo para cada monitor do fluxo epitérmico pode ser expresso por:

$$R_e = \frac{(A_{exp,1})_{Cd}}{k_{0,Au}(i)\varepsilon_{p,i}F_{Cd,i}F_{abe,i}} \quad (\text{II-26})$$

Se todos os monitores apresentam uma dependência de $\alpha(v) \sim 1/v$ sobre 1,5 eV de energia, α pode ser obtido como a inclinação (α) da reta:

$$\log \left[\frac{(\bar{E}_r)^{-\alpha} (A_{esp,i})_{Cd}}{k_{0,Au} (i) \varepsilon_{\gamma,i} F_{Cd,i} Q_{0,i} (\alpha) F_{abe,i}} \right] \text{ versus } \log \bar{E}_{r,i} \quad (II-27)$$

Onde i são os isótopos empregados 1,2,...,n.

O termo do lado esquerdo da equação (II-27) é função de α , e dessa forma um procedimento iterativo deve ser usado, plotando, por exemplo, a equação (II-27) para $\alpha = 0$ que dá uma primeira aproximação e assim por diante. Matematicamente, o resultado final de α nesse processo é idêntico a resolução da equação:

$$\alpha + \frac{\sum_i^N \left[\log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \left[\log A_i - \frac{\sum_i^N \log A_i}{N} \right]}{\sum_i^N \left[\log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right]^2} = 0 \quad (II-28)$$

Com:

$$A_i = \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} (A_{esp,i})_{Cd}}{k_{0,Au} (i) \varepsilon_{\gamma,i} F_{Cd,i} Q_{0,i} (\alpha) F_{abe,i}} \quad (II-29)$$

Como esse método depende da escolha dos monitores, o número desses monitores deve ser grande e com ampla faixa de variação dos valores de $\bar{E}_{r,i}$. Na prática, o melhor é selecionar um número limitado de monitores fisicamente adequados (lâminas ou filamentos de metais puros ou ligas) com dados nucleares conhecidos com exatidão e com valores de $\bar{E}_r$ distribuídos uniformemente na faixa de energia de interesse. Isto nos dá a possibilidade de verificar a linearidade da curva da equação (II-27), provando assim que α é constante sobre toda a região epitérmica do espectro do reator.

2.3.2. Método da razão de cádmio para multimonitores

Este método deve ser usado para a determinação de α em reatores, onde as características do fluxo neutrônico sejam bem conhecidas e estáveis em função do tempo. O método consiste na irradiação de um conjunto de N monitores, com e sem cobertura de cádmio e as medidas das atividades induzidas.

A partir da equação (II-24) pode-se demonstrar que:

$$\frac{\theta P_{\gamma} N_A \sigma_0 \varepsilon_{\gamma}}{M} = \frac{A_{exp} - \frac{[A_{exp}]_{Cd}}{F_{Cd}}}{F_{abe} \varphi_{SCd}} \quad (II-30)$$

Podendo escrever (II-24) como:

$$\varphi_e(\bar{E}_r)\bar{E}_r = \frac{\varphi_e R_e (\bar{E}_r)^{-\alpha}}{\left[A_{exp} - \frac{[A_{exp}]_{Cd}}{F_{Cd}} \right] Q_0(\alpha)} \quad (II-31)$$

A razão de cádmio é definida como:

$$R_{Cd} = \frac{A_{exp}}{[A_{exp}]_{Cd}} \quad (II-32)$$

Então, se todos os monitores apresentam a dependência $\alpha(\nu) \sim 1/\nu$ até 1,5 eV de energia, α pode ser obtido como a inclinação ($-\alpha$) da reta que resulta do gráfico da equação (II-33).

$$\log \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{(F_{Cd,i} R_{Cd} - 1) Q_{0,i}(\alpha) \frac{F_{abe}}{F_{abt}}} \text{ versus } \log \bar{E}_{r,i} \quad (II-33)$$

Como no método anterior, α pode ser obtido da equação:

$$\alpha + \frac{\sum_i^N \left[\log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \left[\log A_i - \frac{\sum_i^N \log A_i}{N} \right]}{\sum_i^N \left[\log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right]^2} = 0 \quad (\text{II-34})$$

Com:

$$A_i = \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{(F_{Cd,i} \cdot R_{Cd,i} - 1) Q_{0,i}(\alpha) \frac{F_{abe}}{F_{abt}}} \quad (\text{II-35})$$

Neste método deve se evitar o uso de monitores com valores altos de Q_0 , que normalmente conduzem a altos valores de incertezas em α devido a efeitos de propagação de incertezas.

2.3.3. Método de multimonitores sem cobertura de cádmio

Este é o método usado para determinação "IN – SITU" de α e consiste em irradiar um conjunto de N monitores conjuntamente, com um isótopo de referência, sem cobertura de cádmio. O cálculo é efetuado partindo das expressões que se obtém para o método do monitor triplo sem cobertura de cádmio, usando os fatores k_0 , de forma que se todos apresentam uma dependência $\sigma(\nu) = 1/\nu$ em torno de 1,5 eV, α pode ser obtido como o coeficiente angular ($-\alpha$) da reta quando se plota

$$\log(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} A_i \text{ versus } \log E_{r,i} \quad (\text{II-36})$$

Com:

$$A_i = \frac{\frac{A_{esp,i}}{k_{0,Au}(i)\varepsilon_{\gamma,i}} - \frac{A_{esp,ref}}{k_{0,Au}(ref)\varepsilon_{\gamma,ref}}}{Q_{0,i}(\alpha)\frac{F_{abe,i}}{F_{abt,i}} - Q_{0,ref}(\alpha)\frac{F_{abe,ref}}{F_{abt,ref}}} \quad (\text{II-37})$$

onde o índice ref indica o monitor de referência. Assim como os métodos anteriores, α pode ser obtido matematicamente da equação:

$$\alpha + \frac{\sum_i^N \left[\left[\log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \left[\log A_i (\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} - \frac{\sum_i^N \log A_i (\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{N} \right] \right]}{\sum_i^N \left[\log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right]^2} = 0 \quad (\text{II-38})$$

Note que o número mínimo de monitores é três ($N = 2$, mais um monitor de referência), tornando assim o método de “três monitores sem cobertura de cádmio”, método que será utilizado nesse trabalho. Desse modo α pode ser determinado usando a seguinte equação:

$$(a-b) \left(\frac{Q_{0,1} - 0,429}{\bar{E}_{r,1}^\alpha} \right) - a \left(\frac{Q_{0,2} - 0,429}{\bar{E}_{r,2}^\alpha} \right) + b \left(\frac{Q_{0,3} - 0,429}{\bar{E}_{r,3}^\alpha} \right) = 0 \quad (\text{II-39})$$

Com:

$$\alpha = \frac{1}{1 - \frac{A_{esp,2}}{A_{esp,1}} \frac{k_{0,Au(1)}}{k_{0,Au(2)}} \frac{\varepsilon_{\gamma,1}}{\varepsilon_{\gamma,2}}} \quad (\text{II-40})$$

e

$$b = \frac{1}{1 - \frac{A_{esp,3}}{A_{esp,1}} \frac{k_{0,Au(1)}}{k_{0,Au(3)}} \frac{\varepsilon_{\gamma,1}}{\varepsilon_{\gamma,3}}} \quad (\text{II-41})$$

Os índices 1, 2 e 3 se referem ao ^{97}Zr , ^{95}Zr e ^{198}Au , respectivamente.

2.3.4. Incertezas e propagação das incertezas na determinação de α

Estudos sobre propagação das incertezas (DE CORTE, 1986b; SASAJIMA, 2004) mostram a dificuldade de se formular conclusões gerais e práticas com relação às melhores combinações de monitores com relação a seus valores de Q_0 e $\bar{E}_r$.

Contudo, no método de três monitores descobertos, isto é sem o filtro de Cd, chegou-se à conclusão que os melhores resultados são obtidos de isótopos que apresentam um valor baixo de Q_0 e dois valores altos. A melhor combinação seria:

$$Q_{0,1} < Q_{0,2} < Q_{0,3} \text{ e } \bar{E}_{r,2} < \bar{E}_{r,1} < \bar{E}_{r,3}$$

Em geral, os fatores de propagação de erros e as incertezas de α são bem maiores nos métodos de irradiação de monitores sem cobertura de cádmio que nos métodos de cobertura de cádmio e razão de cádmio. Nesses últimos, evidentemente, o cádmio funciona como um perfeito filtro para os nêutrons térmicos, facilitando as medidas, mas não são práticos do ponto de vista experimental, pois, implica em se trabalhar com altos níveis de radiação e perturbações no fluxo do reator.

Será usado aqui no nosso trabalho o método dos três monitores descobertos: ^{197}Au , ^{96}Zr , ^{94}Zr .

Em todos os métodos anteriormente citados, para determinação de α , o fator α é calculado usualmente de uma função implícita da forma:

$$F(\alpha, x_1, x_2, x_3, \dots) = 0 \quad (\text{II-42})$$

Onde $x_1, x_2, x_3, \dots$ podem ser tanto variáveis estatísticas (ex.: taxa de contagens) ou parâmetros fixados com uma determinada incerteza associada (ex.: um dado nuclear).

De acordo com a lei clássica de propagação das incertezas, a incerteza relativa sobre α em função das incertezas relativas sobre os fatores x_j é dada por:

$$u_r(\alpha) = \left\{ \sum_j [Z_\alpha(x_j) u_r(x_j)]^2 \right\}^{1/2} \quad (\text{II-43})$$

Onde $u_r(\alpha) = s(\alpha)/\alpha$ é a incerteza relativa de alfa e $s(\alpha)$ é a incerteza absoluta de alfa expressa pelo desvio padrão de alfa. O fator de propagação da incerteza $Z_\alpha(x_j)$ é definido como um multiplicador da incerteza relativa sobre x_j [$u_r(x_j) = s(x_j)/x_j$] para obter a incerteza relativa associada a α .

Quando se escrevem as incertezas relativas em termos de diferenciais, obtém-se:

$$Z_\alpha(x_j) = \left| \frac{\partial \alpha}{\alpha} / \frac{\partial x_j}{x_j} \right| = \left| \frac{x_j}{\alpha} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial x_j} \right) \right| \quad (\text{II-44})$$

deve-se ter em mente que $Z_\alpha(x_j)$ é apenas o fator de propagação parcial da incerteza de α , causado pela incerteza relativa de x_j . A derivada $\partial\alpha/\partial x_j$, é o chamado coeficiente de sensibilidade, conforme definido no “Guia para a Expressão da Incerteza de Medição” tradução do ISO GUM (INMETRO, 1993).

O diferencial total da função F na equação (II-42) implica:

$$\frac{\partial F}{\partial \alpha} d\alpha + \frac{\partial F}{\partial x_j} dx_j + \sum_{i \neq j} \frac{\partial F}{\partial x_i} dx_i = 0 \quad (\text{II-45})$$

A Equação (II-44) torna-se:

$$Z_\alpha(x_j) = \left| \frac{x_j}{\alpha} \left(\frac{\partial F}{\partial x_j} + \sum_{i \neq j} \frac{\partial F}{\partial x_i} \frac{\partial x_i}{\partial x_j} \right) / \frac{\partial F}{\partial \alpha} \right| \quad (\text{II-46})$$

Da equação (II-46) é possível calcular os fatores de propagação de incertezas para as variáveis individuais e parâmetros na equação (II-42).

Para se obter a incerteza relativa total sobre α , esses fatores $Z_\alpha(x_j)$ devem ser introduzidos na equação (II-43), juntos com as incertezas relativas medidas ou estimadas sobre os parâmetros x_j sob consideração.

2.4. Métodos para determinação de f

Entre os vários métodos para determinação da razão entre os fluxos térmico e epitérmico, dois são os mais usados de forma experimental, em qualquer canal de um reator (SIMONITS et al., 1976; DE CORTE et al., 1995; INGELBRECHT et al., 1991): são os métodos da razão de cádmio e o multiisotópico.

Razão de cádmio:

$$f = \left[F_{Cd,r} R_{Cd,r} - 1 \right] \frac{\bar{F}_{abe,r}}{F_{abt,r}} Q_{0,r}(\alpha) \quad (II-47)$$

Onde r é um monitor de razão de fluxo com valor de Q_0 bem conhecido. Se for usado o Au, a $R_{Cd,Au}$ será dada pela relação cádmica que se obtém dividindo a atividade específica da linha 411,8 eV do isótopo ^{198}Au que se obtém da reação $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ de uma lâmina de ouro, com e sem cobertura de cádmio. Desse modo, tomando os dados correspondentes ao ouro e substituindo na equação (II-47), obtém-se:

$$R_{Cd,Au} = \frac{A_{esp,Au}}{(A_{esp,Au})_{Cd}} \quad (II-48)$$

Este método é bastante simples, mas, apresenta o inconveniente de variações no fluxo de nêutrons, trazendo assim, complicações no procedimento de análise.

Outro método bastante usado é o multiisotópico, utilizando um monitor que contenha ao menos dois isótopos com boas características de medição, isto é: não apresentem desvios significativos da lei $1/v$ e que seus valores de $Q_0 = I_0/\sigma_0$ sejam bastante afastados entre si. O zircônio com seus dois isótopos fundamentais, ^{96}Zr e ^{97}Zr , é um dos monitores que melhor atende a essas características.

Considerando o isótopo ^{96}Zr como 2 e o ^{97}Zr como 1, obtém-se a expressão de f :

$$f = \frac{\frac{k_{0,1}}{k_{0,2}} \frac{\epsilon_{\gamma,1}}{\epsilon_{\gamma,2}} Q_{0,1}(\alpha) - \frac{A_{esp,1}}{A_{esp,2}} Q_{0,2}(\alpha)}{\frac{A_{esp,1}}{A_{esp,2}} - \frac{k_{0,1}}{k_{0,2}} \frac{\epsilon_{\gamma,1}}{\epsilon_{\gamma,2}}} \quad (II-49)$$

onde F_{abe} e F_{abt} são fatores de correção pela auto blindagem dos nêutrons epitérmicos e térmicos respectivamente, que são sempre menores ou igual a 1.

2.4.1. Incertezas no cálculo de f

Para estudar a influência da incerteza na atividade relativa sobre os valores de f de acordo com Simonits e colaboradores (SIMONITS et al., 1976), a equação (II-49) pode ser escrita na seguinte forma:

$$f = f(x_1, x_2, \dots) \quad (\text{II-50})$$

Segundo a teoria de propagação de erros o fator de propagação de erro $Z(x_i)$, é definido como:

$$Z_f(x_i) = \left| \frac{\partial f / f}{\partial x_i / x_i} \right| = \left| \frac{x_i}{f} \left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \right) \right| \quad (\text{II-51})$$

É apresentada dessa forma a grandeza do erro relativo em f causado pelo erro relativo da variável x_i .

Aplicando a equação (II-51) na equação (II-49), tem-se:

$$\frac{A_{esp,r}}{f} \left(\frac{\partial f}{\partial A_{esp,r}} \right) = \frac{k_0}{f} \left(\frac{\partial f}{\partial k_0} \right) = \frac{-\varepsilon_r}{f} \left(\frac{\partial f}{\partial \varepsilon_r} \right) = \frac{(f + Q_{0,1}(\alpha))(f + Q_{0,2}(\alpha))}{f[Q_{0,2}(\alpha) - Q_{0,1}(\alpha)]} > 1 \quad (\text{II-52})$$

$$\left| \frac{Q_{0,1}(\alpha)}{f} \left(\frac{\partial f}{\partial Q_{0,1}(\alpha)} \right) \right| = \frac{Q_{0,1}(\alpha)(f + Q_{0,2}(\alpha))}{f[Q_{0,2}(\alpha) - Q_{0,1}(\alpha)]} > 1 \quad (\text{II-53})$$

$$\left| \frac{Q_{0,2}(\alpha)}{f} \left(\frac{\partial f}{\partial Q_{0,2}(\alpha)} \right) \right| = \frac{Q_{0,2}(\alpha)(f + Q_{0,1}(\alpha))}{f[Q_{0,2}(\alpha) - Q_{0,1}(\alpha)]} > 1 \quad (\text{II-54})$$

Onde: $A_{esp,r} = A_{esp,2} / A_{esp,1}$ e $\varepsilon_r = \varepsilon_{r,1} / \varepsilon_{r,2}$

As equações (II-51) a (II-54) indicam que o valor absoluto de $Q_{0,2}(\alpha) - Q_{0,1}(\alpha)$ é crítico para a precisão e exatidão de f . As incertezas nos valores de k_0 e $Q_0(0)$, afetam os resultados de forma sistemática.

Os valores de $A_{esp,r}$ e ε_r são determinados experimentalmente em diferentes posições de irradiação do reator, utilizando o detetor HPGe. Essas são as fontes de incertezas nos valores de f .

2.5. Determinação do fluxo térmico

Para a determinação do fluxo térmico se utiliza a conhecida equação de ativação, com um termo que corrige pelos nêutrons epitérmicos:

$$\frac{C_i}{t_m w SDC} = \frac{N_A \theta \varepsilon_r P_r \phi_t \left[1 + \frac{Q_0(\alpha)}{f} \right]}{M} \quad (\text{II-55})$$

É necessário, portanto medir as grandezas que aparecem na equação (II-55), em especial a eficiência do detetor gama, usado nas experiências.

2.6. Método para determinação da eficiência do detector

A eficiência do sistema de contagem, ε , determinada para cada energia de interesse, calibrando o detector com uma fonte padrão polienergética ou várias fontes monoenergéticas, que emita fótons com intensidade P_γ exatamente conhecidas e aplicando a seguinte equação:

$$\varepsilon_\gamma = \frac{A_{i,j} DC}{A_0 P_{\gamma,i}} = \frac{\frac{C_{i,i}}{t_m} DC}{A_0 P_{\gamma,i}} \quad (\text{II-56})$$

Essas fontes geralmente utilizam radioisótopos como: ^{52}Eu , ^{56}Mn , ^{24}Na , ^{133}Ba , ^{109}Cd , ^{60}Co e ^{137}Cs . Para determinar a curva de calibração da eficiência é necessário estabelecer um polinômio com os dados obtidos com as medidas das fontes:

$$\varepsilon_\gamma = a_0 + a_1 E_\gamma + a_2 (E_\gamma)^2 + \dots + a_n (E_\gamma)^n \quad (\text{II-57})$$

$$\ln \varepsilon_\gamma = a_0 + a_1 \ln E_\gamma + a_2 \ln (E_\gamma)^2 + \dots + a_n (\ln E_\gamma)^n \quad (\text{II-57})'$$

A partir do gráfico de $\ln \varepsilon_\gamma$ versus $\ln E_\gamma$, ou dos coeficientes do polinômio ajustado, a eficiência é interpolada para qualquer valor de ε_γ . Nesse trabalho serão usadas fontes de ^{152}Eu , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{133}Ba , e ^{241}Am para calcular as curvas de eficiência em diferentes geometrias.

2.7. Fatores que influenciam a exatidão, precisão e aplicabilidade do método k_0 .

Por definição a aplicabilidade do método k_0 apresentado aqui é limitada a isótopos e energias gama para os quais esses fatores estão disponíveis. Esses fatores encontrados em várias publicações (SIMONITS et al., 1980; DE CORTE e SIMONITS, 1989a; ANALYTICAL METHODS COMMITTEE, 1989; DE CORTE, 1989b; DE CORTE et al., 1982b; HEYDORN e DAMSGAARD, 1994; KIM, 1981; VAN DER LINDEN et al., 1973), são valores médios de várias determinações experimentais, feitas principalmente nos reatores WWR-M em Budapeste e Thetis na Bélgica.

A exatidão depende na verdade de parâmetros que são encontrados tabelados na literatura como: k_0 , Q_0 , $\bar{E}_r$, esquemas de decaimento, características nucleares, etc (SIMONITS et al., 1980 e 1984; JOVANIC et al., 1984; ROTH et al., 1992) e outros que são determinados experimentalmente, como a curva de eficiência do detetor, os parâmetros α e f , a geometria de contagem e efeitos de coincidência.

Na literatura é encontrado um cálculo da média da precisão, baseado nas estimativas de incertezas relacionadas aos parâmetros individuais (DE CORTE, 1986b). A TABELA 3 apresenta essas estimativas, para condições não muito extremas de irradiação e contagem, e para reações (n, γ) com valores médios de Q_0 . A soma quadrática de todas essas incertezas gira em torno de 4%.

Deve se enfatizar que as conclusões acima se aplicam também a outros métodos de um único comparador.

Quando se compara essa estimativa com o método clássico ou relativo, é bom saber que muitos problemas afetam também esse último, como: o problema de preparação dos padrões e também das incertezas associadas aos mesmos.

TABELA 3 - Precisão do método k_0 . (DE CORTE, 1986b)

Incertezas no resultado de análise	
Parâmetros	Contribuição
k_0	~1%
Q_0	~1%
α	~1,5%
f	~1%
ε	~2%
Coincidência	~1,5%
Total	~3,5% (soma quadrática das incertezas individuais)

2.7.1. Variação do fluxo de nêutrons durante a irradiação

Quando durante a irradiação ocorrem variações significativas no fluxo de nêutrons (supondo que f e α permaneçam constantes) a equação (I-62) deve ser mudada para:

$$\rho_a(ppm) = \frac{\left(\frac{C_1/t_m}{S' DCW} \right)_a k_0(m) f + Q_{0,m}(\alpha) \varepsilon_{\gamma,m}}{\left(\frac{C_1/t_m}{S' DCW} \right)_m k_0(a) f + Q_{0,a}(\alpha) \varepsilon_{\gamma,a}} 10^6 \quad (\text{II-58})$$

com:

$$S' = \int_0^{t_m} F(t) \lambda e^{\lambda(t-t_m)} dt \quad (II-59)$$

Onde $F(t)$ é a função fluxo de nêutrons, que estabelece a variação temporal do fluxo neutrônico.

2.7.2. Irradiação intermitente

Quando são realizadas várias irradiações (1, 2, 3,iN) a equação simples de cálculo da concentração não é mais válida. Entretanto, se o fluxo permanece constante durante cada irradiação, pode-se distinguir duas equações:

- 1) ϕ , f e α permanecem constantes de irradiação para irradiação, mantém-se o mesmo comparador com a mostra durante as N irradiações, e usa-se apenas uma medida da atividade acumulada. A equação de cálculo elementar é mudada para:

$$\rho_a(ppm) = \frac{\left(\frac{C_i / t_m}{CW \sum_i S_i D_i} \right)_a \frac{k_0(m)}{k_0(a)} \cdot \frac{f + Q_{0,m}(\alpha)}{f + Q_{0,a}(\alpha)} \cdot \frac{\varepsilon_{\gamma,m}}{\varepsilon_{\gamma,a}} \cdot 10^6}{\left(\frac{C_i / t_m}{CW \sum_i S_i D_i} \right)_m} \quad (II-60)$$

- 2) se ϕ , f e α mudam nas irradiações, então, deve-se co-irradiar em cada uma, um novo monitor, o qual deve ser medido individualmente. O cálculo da concentração será dado por:

$$\rho_a(ppm) = \left(\frac{C_i / t_m}{CW} \right)_a \frac{k_{0,C}(m)}{k_{0,C}(a)} \frac{f + Q_{0,m}(\alpha)}{f + Q_{0,a}(\alpha)} \frac{1}{\varepsilon_{\gamma,a}} \left[\sum_{i=1}^N \left(\frac{A_{esp,m} S_a D_a}{\varepsilon_{\gamma,m}} \right)_i \right]^{-1} 10^6 \quad (II-61)$$

Apesar de mais trabalhoso, nenhuma perda significativa da exatidão acontece, desde que os cuidados sejam tomados.

2.7.3. Outras limitações

Outras interferências inerentes à técnica de ativação neutrônica são: químicas, física e nucleares.

As químicas compreendem os casos em que a atividade induzida por um determinado elemento presente na amostra ou introduzido por contaminação no manuseio da amostra, dificulta a determinação de um outro (EHMAN et al., 1992; ERDTMANN e PETRI, 1996; JONAH et al., 2005).

Pode ocorrer de certos elementos presentes na amostra produzirem picos que se superpõem a outros no espectro ou a alta atividade induzida aumenta a radiação de fundo (efeito Compton associado com a radiação gama e "bremsstrahlung" associado à radiação beta) mascarando picos de outros elementos.

Ambas situações podem ser solucionadas pelo decaimento desses radionuclídeos produzidos por esses elementos interferentes, pela diminuição do tempo de irradiação, ou em último caso, pela separação radioquímica.

As limitações físicas englobam diversos casos. Durante a irradiação podem ocorrer mudanças no estado físico da amostra ou do recipiente, pode acontecer a radiólise da amostra ou quebra dos recipientes devido à energia liberada no processo de fissão do combustível nuclear. Assim, o tempo de irradiação está limitado pela resistência térmica e mecânica de recipientes e amostras.

Amostras que contenham teores significativos de elementos que tenham alta secção de choque podem provocar uma depressão do fluxo. Esse efeito pode ser minimizado pela produção de alvos bem finos e planos ou diluição com material de baixa secção de choque.

Alvos finos e planos podem também minimizar a auto absorção de raios gama de baixa energia, o espalhamento de nêutrons e o enriquecimento do fluxo de nêutrons rápidos.

2.7.3.1. Interferências primárias

Problemas comuns a muitos tipos de métodos de um simples comparador são as reações interferentes primárias do tipo (n, n') e $(n, 2n)$, causando um erro positivo se não forem corrigidas. Algumas dessas reações são: ^{77m}Se , ^{87m}Sr , ^{111m}Cd , ^{117m}Sn , ^{135m}Ba , ^{137m}Ba . Assim sendo, para a determinação desses elementos deve-se usar outros isótopos: ^{75}Se , ^{85}Sr , ^{115}Cd , ^{117}Cd , ^{123m}Sn , ^{125m}Sn , ^{131}Ba , ^{133m}Ba , ^{139}Ba , etc.

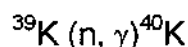
Outros casos compreendem basicamente as reações nucleares interferentes produzidas na irradiação (XILEI et al., 1989, DUNG e CHO, 2003a). Os resultados da medida de um elemento através do radionuclídeo gerado na ativação são alterados quando ocorrem reações nucleares secundárias que produzem ou consomem o radionuclídeo, ou devido à radiação natural. Um exemplo são as reações com nêutrons rápidos, TABELA 4.

**TABELA 4 - Alguns exemplos de interferências por reações de limiar
(INSTITUTO PERUANO DE ENERGIA NUCLEAR, 1995; XILEI et al., 1989)**

Reação principal	Interferência	Observações
$^{19}\text{F}(n,\gamma)^{20}\text{F}$	$^{23}\text{Na}(n,\alpha)^{20}\text{F}$	Significativa na maioria das matrizes com alta concentração de sódio
$^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$	$^{28}\text{Si}(n,p)^{28}\text{Al}$	Importante em materiais biológicos
	$^{31}\text{P}(n,\alpha)^{28}\text{Al}$	
$^{31}\text{P}(n,\gamma)^{32}\text{P}$	$^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$	Significativa em amostras biológicas
	$^{35}\text{Cl}(n,\alpha)^{32}\text{P}$	
$^{36}\text{S}(n,\gamma)^{37}\text{S}$	$^{36}\text{Cl}(n,p)^{37}\text{S}$	Importante em materiais biológicos
$^{45}\text{Sc}(n,\gamma)^{46}\text{Sc}$	$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	Significativa em análises com nêutrons epitérmicos
$^{50}\text{Cr}(n,\gamma)^{51}\text{Cr}$	$^{54}\text{Fe}(n,\alpha)^{51}\text{Cr}$	Significativa em materiais biológicos

Uma forma de eliminar essas interferências, uma vez identificado o elemento interferente, é separá-lo antes da irradiação. Este é um procedimento demorado e pode introduzir contaminações nas amostras. Deve ser usado só em situações extremamente necessárias.

No caso da radiação natural, o radionuclídeo produzido na irradiação, é um radionuclídeo natural. Esse é o caso do ^{40}K :



Nesse caso, a interferência pode ser eliminada pela medida do radionuclídeo na amostra não submetida à ativação.

CAPÍTULO III - MATERIAIS E MÉTODOS

3 MATERIAIS E MÉTODOS

3.1. Padrões e materiais de referência usados

ZrO₂ - óxido de zircônio JMC - Johnson Matthey Chemicals Limited.

Zr - zircônio metálico 99,99% - JMC - Johnson Matthey Chemicals Limited.

Zry-4, Zircaloy-4, 98,14% de Zr – NBS – National Bureau of Standards.

LuO₂, óxido de Lutécio 99 – JMC - Johnson Matthey Chemicals Limited.

Solução padrão de Au, concentração: 500µg/mL (a partir de folhas de ouro – NBS - National Bureau of Standards).

Solução padrão mista de elementos terras raras, concentração 100 µg/mL – GFS Chemicals – Multielement Standard.

Amostras de referência de solos GXR-2, GXR-5 e GXR-6 da United States Geological Survey (USGS).

Amostras de referência SL-1 (sedimento de lago), Soil-5 e Soil-7 da International Atomic Energy Agency (IAEA).

Todos os resultados são expressos em base seca (secagem em estufa a 120⁰C por 24 horas).

3.2. Espectrometria gama: determinação experimental da área líquida dos fotopicos γ e sua incerteza

Todas as contagens foram feitas em um detector HPGe a 20 cm de distância da amostra, calibrado em eficiência para a faixa de energia de 133 a 1408 keV. A detecção dos picos, assim como o cálculo das áreas correspondentes e das incertezas estatísticas associadas, foram feitas usando o programa Maestro (EG&G ORTEC, 1992). O programa calcula a área sob o pico de emissão gama nos espectros de energias por integração numérica descrito a seguir e ilustrado pela FIGURA 9.

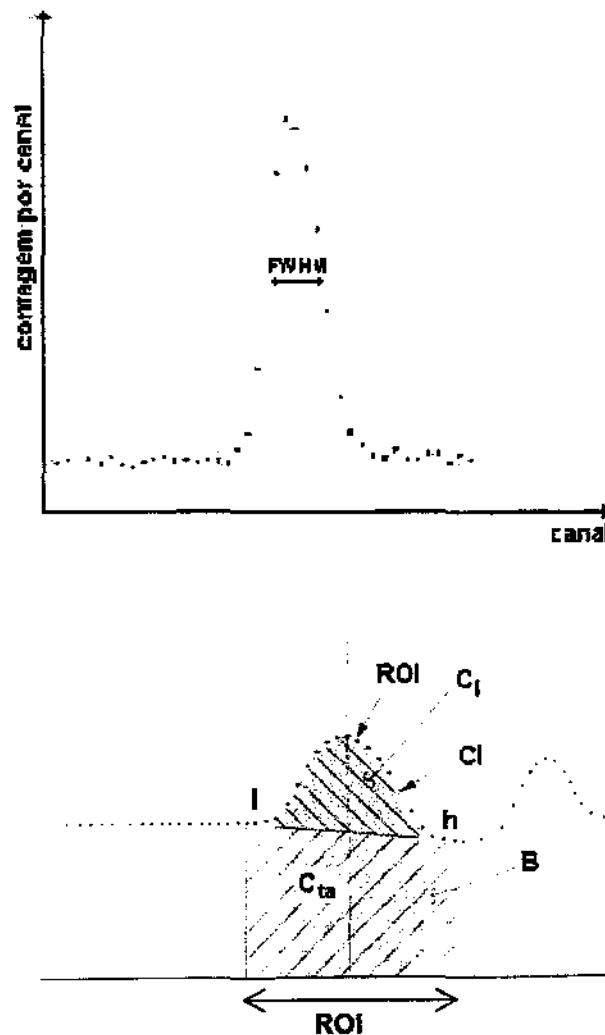


FIGURA 9 - Cálculo da área total de um pico e do "background"

O programa calcula o "background" usando a média dos últimos três canais da região de interesse (Region Of Interest – ROI) de cada lado do pico. Por esses pontos é traçada uma reta abaixo do pico.

Ele subtrai o "background" calculado canal por canal e tenta um ajuste pelo método de mínimos quadrados de uma função Gaussiana para os dados restantes e apresenta a área líquida, área bruta e o erro da área líquida para a ROI do pico que é marcado. O centróide está baseado na função ajustada.

O "Background" é dado pela seguinte equação:

$$B = \left(\sum_{i=I}^{I+2} C_i + \sum_{i=h-2}^h C_i \right) \frac{h-I+1}{6} \quad (\text{III-1})$$

Onde:

- B é a área do "background";
- I é o limite inferior da região de interesse;
- h é o limite superior da região de interesse;
- C_i é a contagem do canal i e
- 6 é o número de canais usados, 3 de cada lado do pico.

A área bruta é a soma de todos os canais marcados pela região de interesse:

$$A_b = \sum_{i=I}^h C_i \quad (\text{III-2})$$

Onde:

- A_b é o número total de contagens na região de interesse;

A área bruta ajustada é a soma das contagens de todos os canais marcados na região de interesse mas não usados no "background":

$$A_{ba} = \sum_{i=I+3}^{h-3} C_i \quad (\text{III-3})$$

onde A_{ba} são as contagens brutas ajustadas.

Por fim, a área líquida, é a área bruta ajustada menos o "background" calculado ajustado:

$$A_l = A_{ba} - \frac{B (h-I-5)}{(h-I+1)} \quad (\text{III-4})$$

A incerteza é a raiz quadrada da soma dos quadrados da incerteza da área bruta ajustada e a incerteza do "background" ajustado. A incerteza do "background" é dada pela razão entre a largura ajustada do pico e o número de canais usados para calcular o "background".

Desse modo, a incerteza da área líquida do pico é (EG&G ORTEC, 1992):

$$u_{A_l} = \sqrt{A_{ba} + \left(\frac{h-I-5}{6} \right) \left(\frac{h-I-5}{h-I+1} \right) B} \quad (\text{III-5})$$

3.3. Eficiência do detector

A eficiência de detecção é um dos pontos críticos na análise por ativação neutrônica e por consequência na técnica k_0 .

Para se determinar a taxa de emissão gama dos fótons incidentes no detector é preciso calcular a sua eficiência de detecção para uma geometria particular. É indispensável a manutenção da geometria de contagem para padrões e amostras. Para isso foram construídos os suportes apresentados na FIGURA 10.

São usadas várias fontes padrão como: ^{241}Am , ^{152}Eu , ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{60}Co e ^{56}Mn , fornecidas pela Agência Internacional de Energia Atômica (INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 1982).

Características como atividade, meia-vida, energia gama e probabilidade de emissão gama de decaimento das fontes padrão, utilizadas na calibração da eficiência em função da energia estão apresentadas na TABELA 5.

A fração de eventos registrados pelo detector por fóton emitido pela fonte, $\varepsilon_\gamma(E)$, é função da atividade A da fonte, do número de contagens líquidas sob o pico em consideração, C_i , da probabilidade de emissão gama por decaimento P_γ , do tempo de contagem, t_m , e de um fator de correção, f_g , que leva em conta as correções de geometria, tempo morto, empilhamento e atenuação na própria amostra.

$\varepsilon_\gamma(E)$ é dado por:

$$\varepsilon_\gamma(E) = \frac{C_i f_g DC}{A_0 P_\gamma t_m} \quad (\text{III-6})$$

Uma vez medidas as fontes, determina-se a eficiência de detecção considerando os seguintes fatores: área sob o pico, para cada linha do espectro das fontes padrão, meia-vida e atividades das fontes padrão, tempo transcorrido desde suas calibrações, tempo de medida, energia e probabilidade de emissão gama por decaimento, assim como, os fatores de correção devido ao tempo de decaimento e de contagem (equações I-11, I-17, I-18 e II-56). Como nesse trabalho, amostras e monitores serão contados na mesma geometria, f_g é constante, e nas equações onde a eficiência aparece ela o faz como uma razão de duas eficiências, o fator de correção de geometria f_g se cancela, motivo pelo qual não será necessário determiná-lo experimentalmente.

A curva ajustada à eficiência em função da energia pode ser representada genericamente pela equação (II-57), que numa forma mais condensada se escreve:

$$\ln \varepsilon_{\gamma}(E) = \sum_{k=0}^{k=n} a_k (\ln E)^k \quad (\text{III-7})$$

Onde:

n = grau do polinômio em $\ln E$

Ou por outros polinômios em função da energia.

O cálculo dos parâmetros de ajuste da curva de eficiência em função da energia é feito pelo método de ajuste por mínimos quadrados ponderado pelas incertezas nas eficiências.

Na TABELA 6 são apresentadas as incertezas padrão relativas, em valores percentuais das fontes padrão, também chamadas de coeficientes de variação, para cada fonte de incerteza, que são componentes da incerteza combinada da eficiência em cada valor de energia característica dos fótons gama de cada fonte padrão usada. Os valores dessas incertezas foram calculados por estimativas do tipo A ou B, conforme definido no ISO GUM (INMETRO, 1993; DE REGGE e FAJGELJ, 1998), das seguintes formas:

u_E a incerteza padrão na energia da raia nuclear

u_A a incerteza padrão na atividade da fonte padrão foi obtido do certificado de cada fonte.

TABELA 5 - Características das fontes padrões utilizadas para determinar a curva de eficiência de detecção do HPGe (germânio ultra puro).

Isótopo	Atividade (kBq)	Meia-vida $T_{1/2}$ (d)	P_γ (% gama)	E_γ (keV)
²⁴¹ Am	393,5	$(1,580)10^5$	36,0	59,537
¹³⁷ Cs	345,4	11009	84,6	661,645
⁶⁰ Co	418,7	1925,2	99,87	1173,238
⁶⁰ Co		1925,2	99,980	1332,501
¹³³ Ba	321,4	3848,0	7,10	276,397
			18,33	302,851
			62,3	356,005
			8,92	383,851
¹⁵² Eu	399,6	4931	28,37	121,779
			7,51	244,693
			26,58	344,272
			2,234	411,111
			3,121	443,979
			12,96	778,890
			4,16	867,38
			14,62	964,05
			10,16	1085,83
			13,56	1112,08
			20,58	1408,03

TABELA 6 - Principais incertezas relativas percentuais consideradas no cálculo da incerteza da eficiência de detecção (%)

Isótopo	E_γ (keV)	(CV) _E %	(CV) _A %	(CV) _{T/2} %	(CV) _{P_γ} %	(CV) _{Cl} %
²⁴¹ Am	59,537	0,0017	1,0	0,126	0,8333	0,36
¹³⁷ Cs	661,645	0,0014	1,0	0,10	0,2220	0,39
⁶⁰ Co	1173,238	0,00034	1,0	0,020	0,0600	0,62
⁶⁰ Co	1332,501	0,00038	1,0	0,020	0,0090	0,58
¹³³ Ba	276,397	0,0043	1,5	0,029	1,4084	1,12
	302,851	0,0050	1,5	0,029	1,2002	0,58
	356,005	0,0048	1,5	0,029	1,1236	0,26
	383,851	0,0039	1,5	0,029	1,0089	0,70
¹⁵² Eu	121,779	0,0025	2,0	0,30	0,8460	0,16
	244,693	0,0020	2,0	0,30	0,7989	0,45
	344,272	0,0020	2,0	0,30	0,6772	0,21
	411,111	0,0020	2,0	0,30	0,5871	1,15
	443,979	0,0023	2,0	0,30	0,5767	1,18
	778,890	0,0021	2,0	0,30	0,5401	0,49
	867,38	0,0036	2,0	0,30	1,4423	1,12
	964,05	0,0036	2,0	0,30	0,4104	0,49
	1085,83	0,0036	2,0	0,30	0,4211	0,45
	1112,08	0,0036	2,0	0,30	0,4425	0,50
	1408,03	0,0021	2,0	0,30	0,4373	0,38

Onde: (CV)_E é a incerteza na energia; (CV)_A incertezas nas atividades; (CV)_{T/2} incertezas nas meia-vidas; (CV)_{P_γ} incertezas nas emissões de gamas; e (CV)_{Cl} incertezas nas áreas dos picos.

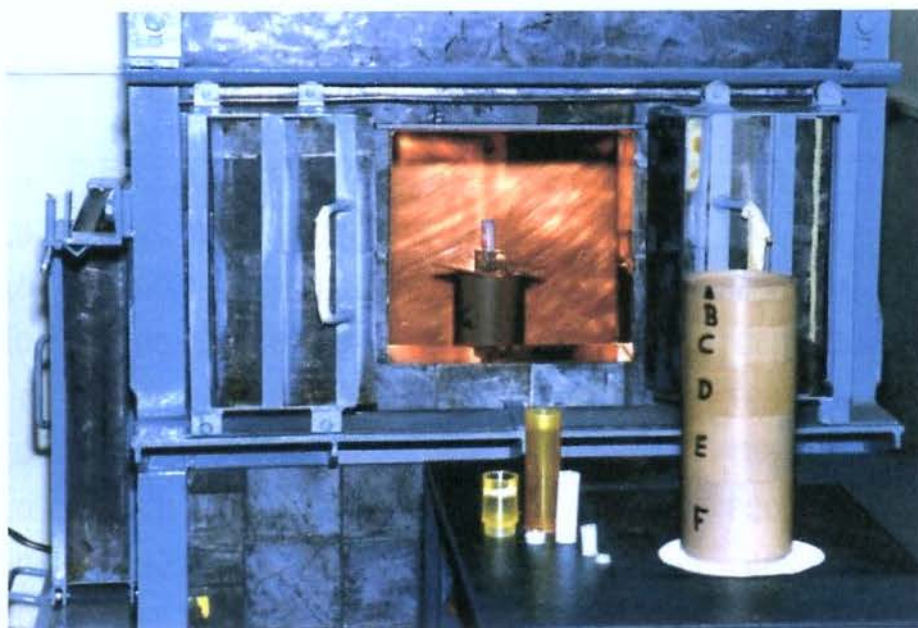


FIGURA 10 - Geometrias de contagem.

3.4. Irradiações

A FIGURA 11 apresenta um esquema de análise por ativação neutrônica.

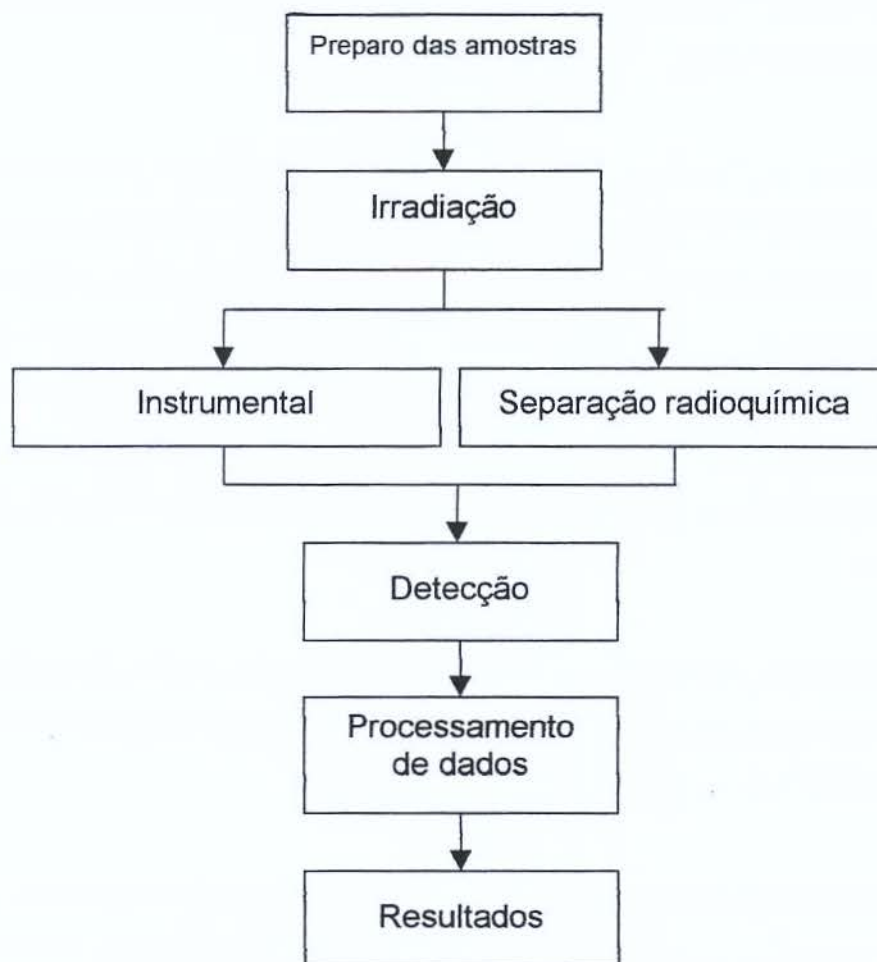


FIGURA 11 - Fluxograma típico da análise por ativação neutrônica.

Foi usado no trabalho o reator TRIGA MARK I – IPR-R1 à potência de 100 kW e fluxo térmico de $6,6 \times 10^{11}$ nêutron. $\text{cm}^2.\text{s}^{-1}$, para a irradiação das amostras e a técnica de ativação neutrônica paramétrica k_0 para determinação dos elementos.

Foram pesadas três alíquotas de aproximadamente 300 mg, em frascos de polietileno. Uma parte para determinar radionuclídeos de meia-vida curta (Al, Cu, Cl, Mn, Ti e V), outra para nuclídeos de meia-vida média (As, Au, Ga, K, La e Na) e por

último, uma terceira, para nuclídeos de meia-vida longa (Ce, Co, Cr, Cs, Fe, Rb, Sc, Ta e Zn).

Para cada 8 amostras, uma foi irradiada em triplicata para checar a repetitividade.

Antes da preparação e análise, as amostras foram secas até peso constante por 24h à temperatura de 120°C.

Para a determinação dos elementos cujos radionuclídeos têm meia-vida curta, o tempo de irradiação foi de 5 minutos, com 10 minutos de espera para decaimento e um tempo de medida de 600 segundos. Para meia-vida média, as irradiações foram de 4 horas, com 12 horas de espera para decaimento e 3 horas de medidas. Por fim, nas irradiações para medidas dos elementos de meia-vida longa, as irradiações foram de 20 horas, 10 dias pelo menos para decaimento e 4 horas para medidas. O dispositivo para colocação das amostras no local de irradiação está apresentado na FIGURA 12.

A espectroscopia gama foi feita usando um detector HPGe, CANBERRA, modelo GC1518, com resolução de 1,85keV para a energia de 1332keV do ^{60}Co e software "Maestro" EG&G Ortec (FIGURA 13).

Foram analisados diversos materiais de referência com as amostras: SL-1, Soil-5 e Soil-7 da IAEA (International Atomic Energy Agency) e GXR-2, GXR-5 E GXR-6 do USGS (United States Geological Survey), com a finalidade de estimar a exatidão do método, que é uma das figuras de mérito para sua validação.

As atividades das amostras foram calculadas a partir dos espectros medidos, meia-vida, energias e taxa de emissão gama por decaimento, tempo de medida e eficiências obtidas pela interpolação da curva de calibração para cada radionuclídeo produzido. Os espectros do "background" natural, também medidos, foram subtraídos do espectro da fonte considerada.

Os cálculos da atividade seguem uma forma reorganizada, de acordo com a equação (III-8):

$$A = \frac{C_l DC}{\varepsilon_\gamma(E) P_\gamma t_m} f_c \quad (\text{III-8})$$

Onde:

A - atividade em (Bq);

C_l - área sob o pico para a energia gama considerada;

$\varepsilon_\gamma(E)$ - eficiência de detecção para a energia E ;

P_γ - probabilidade de emissão gama por decaimento da linha considerada;

t_m - tempo de medida;

f_c - fator de correção que leva em conta as correções de geometria f_g , tempo morto, empilhamento e atenuação na própria amostra.

As incertezas nas eficiências e nas probabilidades de emissão gama são duas das fontes de incertezas no cálculo das atividades, as outras provêm da medida das amostras. Uma vez identificadas estas fontes, é possível obter as incertezas nas atividades.

As fontes que deverão ser consideradas para se obter as incertezas nas concentrações dos analitos são: o tempo morto, as áreas sob os picos, a meia-vida, eficiências, a probabilidade de emissão gama por decaimento e a constante k_0 .



FIGURA 12 - Irradiação das amostras.



FIGURA 13 - Laboratório de contagem para análise por ativação neutrônica.

3.5. Determinação de f , α , fluxos térmicos, φ_t , epitérmico, φ_e e temperatura de nêutrons, T_n .

Na mesa, tanto parada quanto girando, as experiências foram feitas em oito posições simétricas. No tubo central, as experiências foram feitas em oito tubos dispostos verticalmente, para testar a homogeneidade do fluxo térmico. Os parâmetros serão determinados nessas oito posições e generalizados para toda a mesa.

Para a determinação dos parâmetros, foram feitas 6 experiências na mesa (3 com a mesa parada e 3 com ela girando) e 4 no tubo central TABELA 7. Os parâmetros α e f foram determinados usando o método de monitores nus (sem cobertura de cádmio). Para α , foram usados 3 monitores: ^{197}Au , ^{94}Zr e ^{96}Zr e no caso de f , a determinação foi feita usando o monitor bi-isotópico ^{94}Zr e ^{96}Zr . A temperatura de nêutrons foi calculada através do método direto, usando ^{176}Lu , ^{94}Zr , ^{96}Zr e ^{197}Au . Calcula-se a função $g(T_n)$ de Westcott para o ^{176}Lu e o resultado é interpolado na tabela de Grintakis et al. (GRYNTAKIS e KIM, 1975), determinando assim a temperatura dos nêutrons.

TABELA 7 - Condições experimentais: teste de homogeneidade de fluxo, determinação de α , f , T_N , índice espectral e os fluxos neutrônicos.

Experiência	Mesa parada	Irradiação	Mesa girando	Irradiação	Tubo central	Irradiação
01	• 25μg de Au	15 minutos	• 25μg de Au	15 minutos		
02	• 50mg de Zr • 25μg de Lu • 2,5μg de Au	4 Horas	• 50mg de Zr (ZrO₂) • 25μg de Lu • 2,5μg de Au	4 Horas	• 50mg de Zr (ZrO₂) • 2μg de Lu • 2,5μg de Au	1 Hora
03					• 450 mg de Zr • 30μg de Lu • 5μg de Au	1 Hora
04	• 600 mg de Zry-4 • 40μg de Lu • 6μg de Au	4 Horas	• 600mg de Zry-4 • 40μg de Lu • 6μg de Au	4 Horas	• 225 mg de Zry-4 • 30μg de Lu • 2,5μg de Au	2,5 Horas
05	• 510mg de Zr • 60 μg de Lu • 12,5 μg de Au	4 Horas	• 510mg de Zr • 60 μg de Lu • 12,5 μg de Au	4 Horas	• 255mg de Zr • 30 μg de Lu • 6 μg de Au	2,5 Horas

3.6. Avaliação do método

Após os cálculos dos parâmetros, o desempenho do método foi avaliado através da análise de vários materiais de referência (BECKER et al., 1992; BORNHORST e BALAGNA, 1979; POTTS e ROGERS, 1991; INGELBRECHT et al., 1991; AOTA et al., 1994a e 1994b; SUTARNO e STEGER, 1986) e participação em dois exercícios de intercomparação de resultados dentro do projeto “AIEA/ARCAL XXVI - Garantia de Qualidade em Laboratórios Químicos”.

AIEA - Agência Internacional de Energia Atômica.

ARCAL - Acuerdos Regionales de Cooperación para a America Latina.

As medidas foram feitas usando alíquotas de aproximadamente 300 mg, em duplicatas nas amostras de referência, e em quintuplicatas nas amostras de intercomparações.

Irradiações:

Para a análise de cada tipo de radioisótopo foram utilizadas condições diferentes, dependendo de suas meias vidas:

- Meia-vida curta: irradiações de 5 minutos, espera de 10 minutos para decaimento e um tempo de medida também de 10 minutos. Elementos: Al, As, Ba, Dy, K, Mn, Na, Sm, Ti e V
- Meia-vida média: irradiações de 4 horas, espera de 3 dias e contagem de 3 horas. Elementos: Ba, Br, Ce, K, La, Yb.
- Meia-vida longa: irradiações de 14 horas, espera de 15 dias a um mês e contagens de pelo menos 4 horas. Elementos: Sb, Co, Cr, Cs, Eu, Fe, Hf, Th, Rb, Sc, Ta.

Todas as medidas foram feitas na geometria de 20 cm, com tempos suficientes para contagens na área total do pico superiores a 20000.

CAPÍTULO IV - RESULTADOS E DISCUSSÃO

4 RESULTADOS

4.1. Cálculo da Eficiência

A FIGURA 14 mostra o espectro de uma fonte de ^{152}Eu . Na TABELA 8 são apresentadas as energias, as áreas e as incertezas nessas áreas das posições assinaladas no espectro.

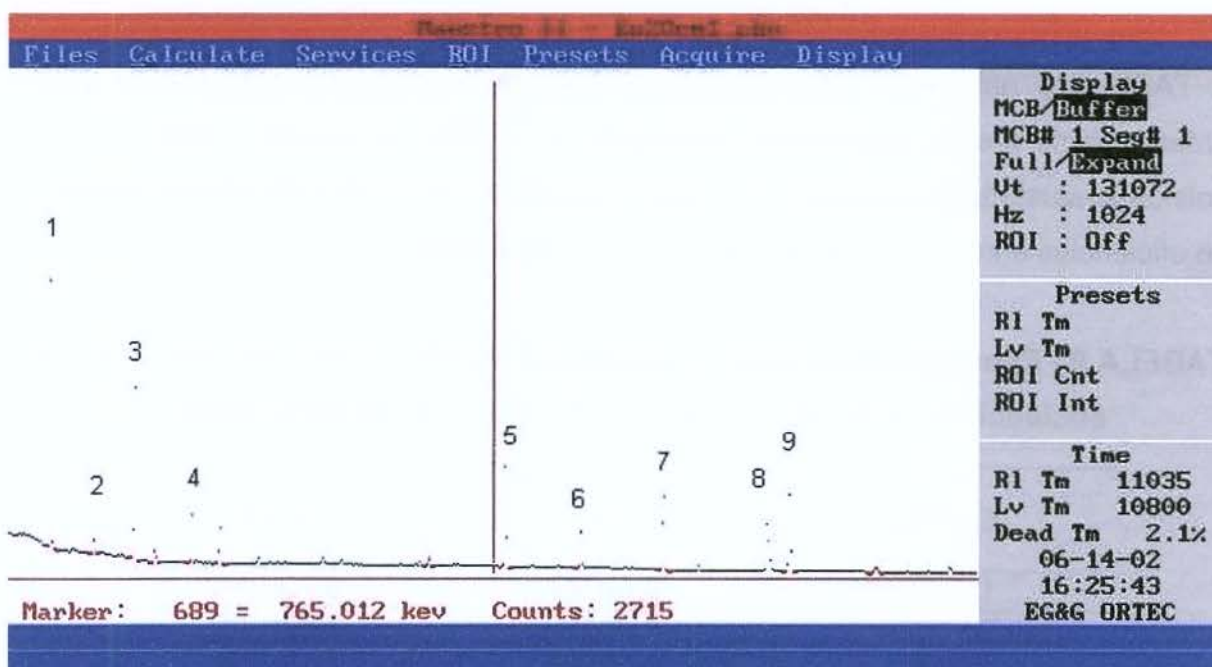


FIGURA 14: Espectro de uma fonte de Eu, à distância de 20 cm fonte-detetor.

TABELA 8 - Energias, áreas e incertezas nas áreas de uma fonte de ^{152}Eu à distância 20 cm fonte-detetor.

ROI	E (keV)	Área líquida (Al)	u(Al)
1	121,78	813008	1300,8128
2	244,69	149522	672,849
3	344,29	379612	797,1852
4	411,12	26923	408,9998
5	778,92	83943	300,9864
6	867,38	27292	411,3207
7	964,11	81064	305,6704
8	1085,85	58764	397,2136
9	1112,07	67080	335,4

A TABELA 9 apresenta uma curva de eficiência com todas as fontes descritas anteriormente e suas respectivas incertezas. A FIGURA 15 mostra o gráfico de um polinômio ajustado às energias. O Anexo 1 mostra uma planilha de cálculo completa de eficiências e incertezas para três geometrias diferentes.

TABELA 9 - Energias, eficiências e incertezas nas eficiências em uma curva de eficiência com várias fontes à distância de 20 cm fonte-detetor.

E (keV)	ε_{γ}	u (ε_{γ})
121,78	0,00149	3,75E-05
244,69	0,00109	2,63E-05
276,397	0,00109	2,46E-05
302,85	9,87E-04	1,95E-05
344,29	8,17E-04	1,86E-05
356	8,39E-04	1,56E-05
383,84	7,82E-04	1,52E-05
411,12	5,44E-04	1,52E-05
443,979	6,24E-04	1,62E-05
661,85	3,91E-04	5,12E-06
778,92	3,69E-04	8,26E-06
867,38	3,07E-04	1,05E-05
964,11	3,12E-04	7,05E-06
1112,07	2,77E-04	6,25E-06
1173,24	3,04E-04	3,57E-06
1332,5	2,73E-04	3,15E-06
1408	2,24E-04	5,0E-06

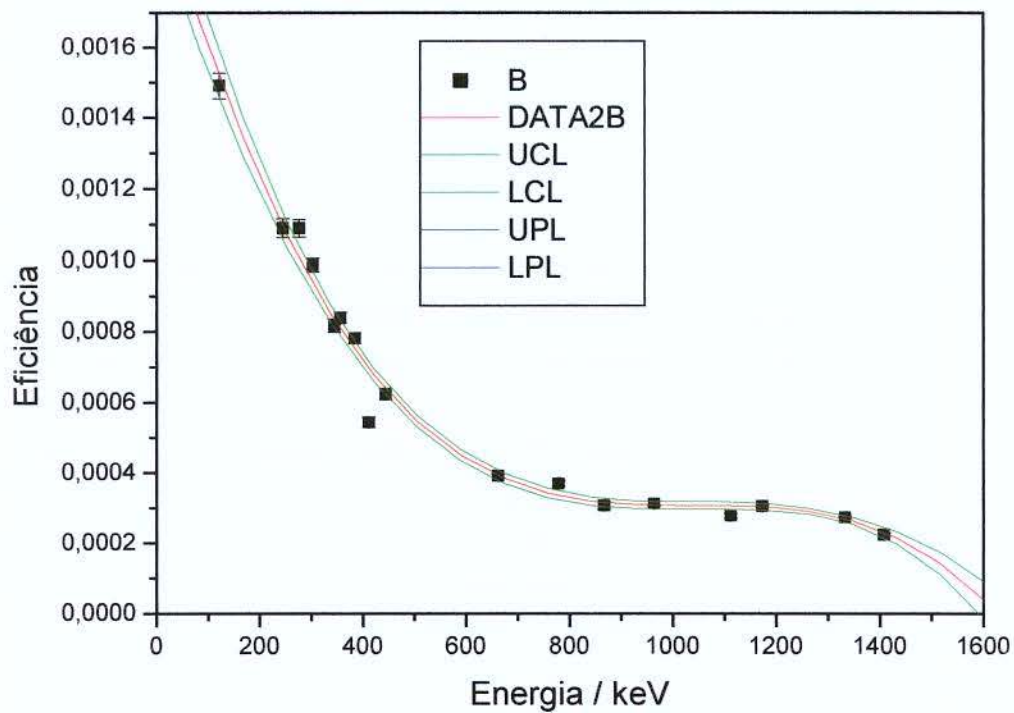


FIGURA 15: Curva de eficiência de um detector HPGe (germânio ultra puro) para a distância de 20 cm fonte-detetor.

Polynomial Regression for Data2_B:

$$Y = A + B1 \cdot X + B2 \cdot X^2 + B3 \cdot X^3$$

Weight given by Data2_C error bars.

Parameter	Value	Error	t-Value	Prob> t
A	0,00207	1,08869E-4	18,97285	<0.0001
B1	-5,0692E-6	4,33806E-7	-11,68541	<0.0001
B2	4,86661E-9	5,24836E-10	9,27264	<0.0001
B3	-1,55687E-12	1,96777E-13	-7,91184	<0.0001

R-Square (COD)	Adj. R-Square	Root-MSE (SD)	N
0,97843	0,97345	3,66677	17

ANOVA Table:

Item	Degrees of Freedom	Sum of Squares	Mean Square	F Statistic
Model	3	7928,75538	2642,91846	196,56967
Error	13	174,78759	13,4452	
Total	16	8103,54297		

Prob>F

<0.0001

4.2. Cálculo dos Parâmetros

4.2.1. Teste de Homogeneidade de Fluxo

Antes de iniciar as experiências, propriamente ditas, para medida dos parâmetros, foram irradiados 25 µg de Au durante 15 minutos na mesa e no tubo central, nas condições experimentais mostradas na TABELA 7.

Os resultados das atividades específicas são apresentados na TABELA 10. Como se pode observar pelas atividades, o fluxo é bastante homogêneo tanto na mesa como

no tubo central, mostrando a estabilidade do reator. Com a mesa girando, prática usada nas irradiações, tem-se uma maior uniformidade no fluxo, como era de se esperar.

TABELA 10 - Teste de homogeneidade do fluxo térmico com a irradiação de 25 μg de Au.

Mesa girando Posições	Atividade específica	Mesa parada Posições	Atividade específica	Tubo central* nível	Atividade específica
1	479	1	463	1	1,0E+09
6	494	6	491	2	1,0E+09
11	492	11	512	3	1,1E+09
16	492	16	500	4	1,0E+09
21	482	21	478	5	1,0E+09
26	485	26	486	6	1,0E+09
31	473	31	506	7	1,0E+09
36	466	36	500	8	1,0E+09
$\bar{x}$	483	$\bar{x}$	492	$\bar{x}$	1,0E+09
s	10	s	16	s	1,6E+08

* Tubos de 2cm dispostos verticalmente um sobre o outro.

4.2.2. Cálculos de f , α , φ_t , φ_e , e T_n

A FIGURA 16 e a TABELA 11 apresentam um exemplo de um espectro de Lu, Au e Zr e as respectivas medidas em uma posição de irradiação de uma das experiências, na mesa giratória. As TABELAS 12 e 13 apresentam resumos de experiências de cálculo dos parâmetros na mesa e no tubo central respectivamente. Um exemplo completo com toda a planilha de cálculo está apresentado no Anexo 2.

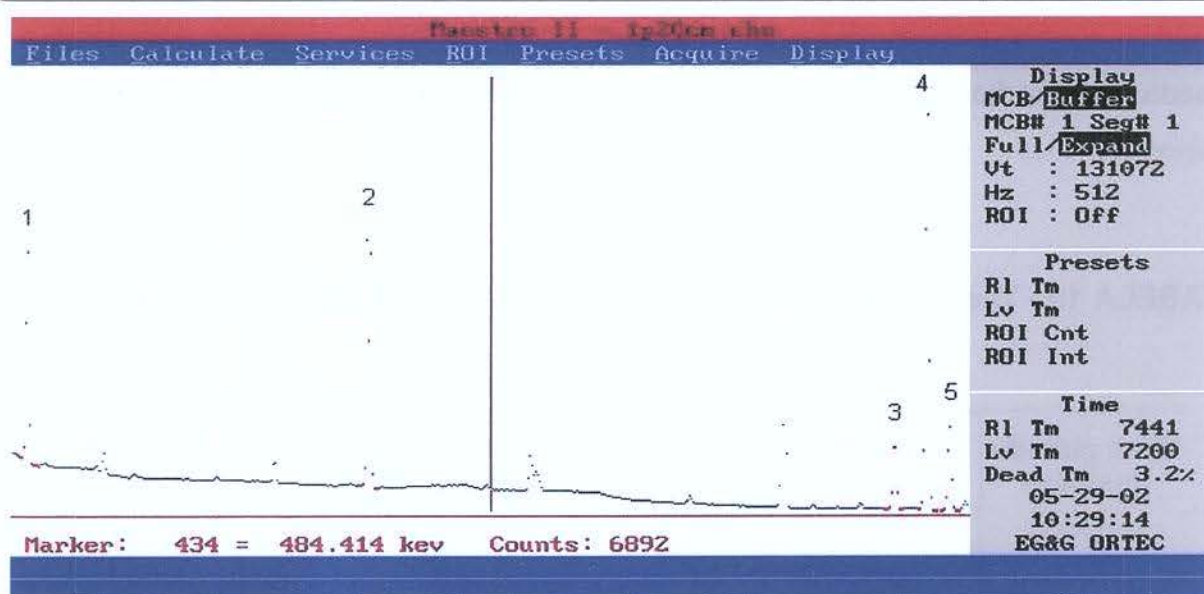


FIGURA 16: Espectro de Lu, Au e Zr para a posição 1 de irradiação em uma experiência na mesa giratória.

TABELA 11 - Energias, áreas, eficiências e as respectivas incertezas para os isótopos ^{177}Lu , ^{198}Au e ^{95}Zr e ^{97}Zr em uma das posições das experiências na mesa.

ROI	Isótopos	E(keV)	AI	u(AI)	ε_γ	$u^2(\varepsilon_\gamma)$
1	^{177}Lu	208,4	39205	222	0,001211	1,52804E-09
2	^{198}Au	411,8	32265	189	0,000699	3,85827E-09
3	^{95}Zr	724,2	3078	59	0,00036	1,4273E-08
4	^{97}Zr	743,3	10846	105	0,000351	1,53552E-08
5	^{95}Zr	756,7	3742	63	0,000346	1,61554E-08

TABELA 12 – Resumo de uma planilha de cálculo dos parâmetros na mesa.

Girando	alfa	f	térmico	epitérmico	ind esp	gLu
Posição1	0,027559	24,43511	6,18E+11	2,92E+10	0,0278	1,497906
Posição6	0,025569	22,60458	6,08E+11	3,29E+10	0,0336	1,548612
Posição11	0,0254	22,68688	6,56E+11	2,45E+10	0,0384	1,522668
Posição16	0,02814	26,40217	5,52E+11	2,09E+10	0,0331	1,621428
Posição21	0,025463	24,02107	6,33E+11	2,22E+10	0,0363	1,636991
Posição26	0,025736	25,90852	5,68E+11	2,11E+10	0,0344	1,625187
Posição31	0,026006	23,48665	6,77E+11	2,18E+10	0,033	1,572277
Posição36	0,028837	25,66212	5,47E+11	2,13E+10	0,034	1,623684
Média	0,026589	24,40089	6,07E+11	2,42E+10	0,033816	1,581094
Desvio	0,001373	1,464562	4,82E+10	4,46E+09	0,003043	0,05342
Parada	alfa	f	térmico	epitérmico	ind esp	gLu
Posição29	0,04163	24,47589	5,91E+11	2,49E+10	0,0356	1,592067
Posição30	0,033695	26,13952	5,66E+11	2,33E+10	0,0334	1,640907
Posição31	0,059942	22,61629	5,96E+11	2,46E+10	0,0385	1,449446
Posição32	0,045951	24,2316	5,82E+11	2,32E+10	0,036	1,580888
Posição33	0,001874	30,35276	5,66E+11	2,87E+10	0,0288	1,617121
Posição34	0,046654	24,2355	5,67E+11	2,54E+10	0,036	1,569
Posição35	0,046946	23,84863	5,80E+11	2,35E+10	0,0365	1,676881
Posição36	0,065325	21,76275	5,95E+11	2,55E+10	0,04	1,629297
Média	0,042752	24,70787	5,80E+11	2,49E+10	0,035598	1,594451
Desvio	0,019281	2,624199	1,27E+10	1,78E+09	0,003386	0,068186

TABELA 13 – Resumo de uma planilha de cálculo dos parâmetros no tubo central.

	alfa	f	térmico	epitérmico	ind esp
Tubo 1	-0,01978	16,51377	2,83E+12	1,65E+11	0,0523
Tubo 2	-0,01039	15,79464	2,96E+12	1,68E+11	0,0546
Tubo 3	-0,02858	27,59185	2,88E+12	1,08E+11	0,0316
Tubo 4	-0,0291	24,07755	2,76E+12	1,15E+11	0,0361
Tubo 5	-0,01823	24,74859	2,98E+12	1,12E+11	0,0352
Tubo 6	-0,02069	25,10185	2,82E+12	1,12E+11	0,0347
Tubo 7	-0,00483	21,30238	2,82E+12	1,14E+11	0,0408
Tubo 8	-0,02061	24,17142	2,81E+12	2,18E+11	0,036
Média	-0,01609	23,83106	2,85E+12	1,39E+11	0,036668
Desvio	0,007593	1,728858	8,11E+10	5,25E+10	0,002799

As FIGURAS 17, 18, 19, 20 e 21 apresentam graficamente os resultados dos parâmetros calculados nas várias posições de irradiação na mesa e no tubo central.

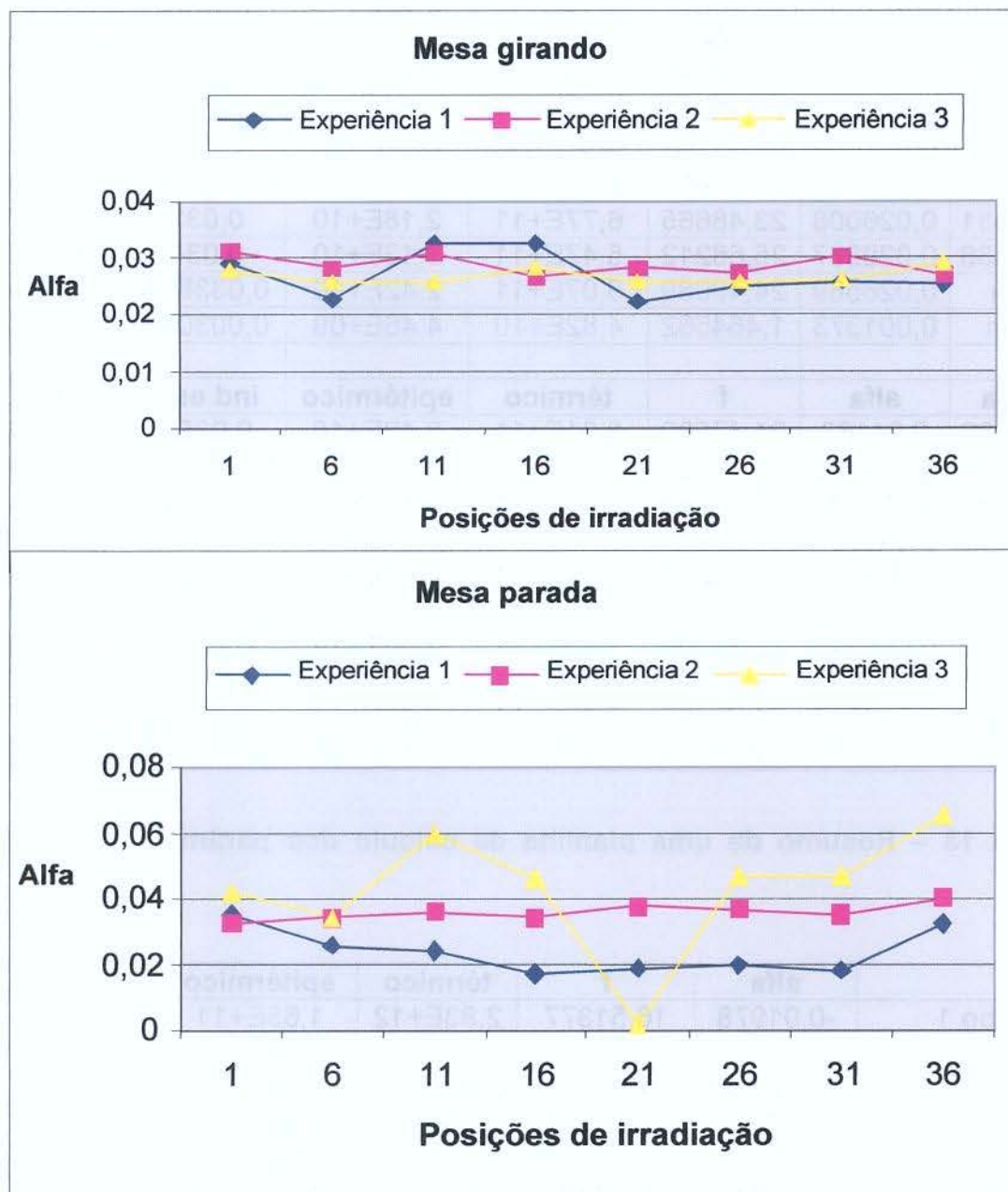


FIGURA 17 - Valores de alfa para a mesa parada e girando.

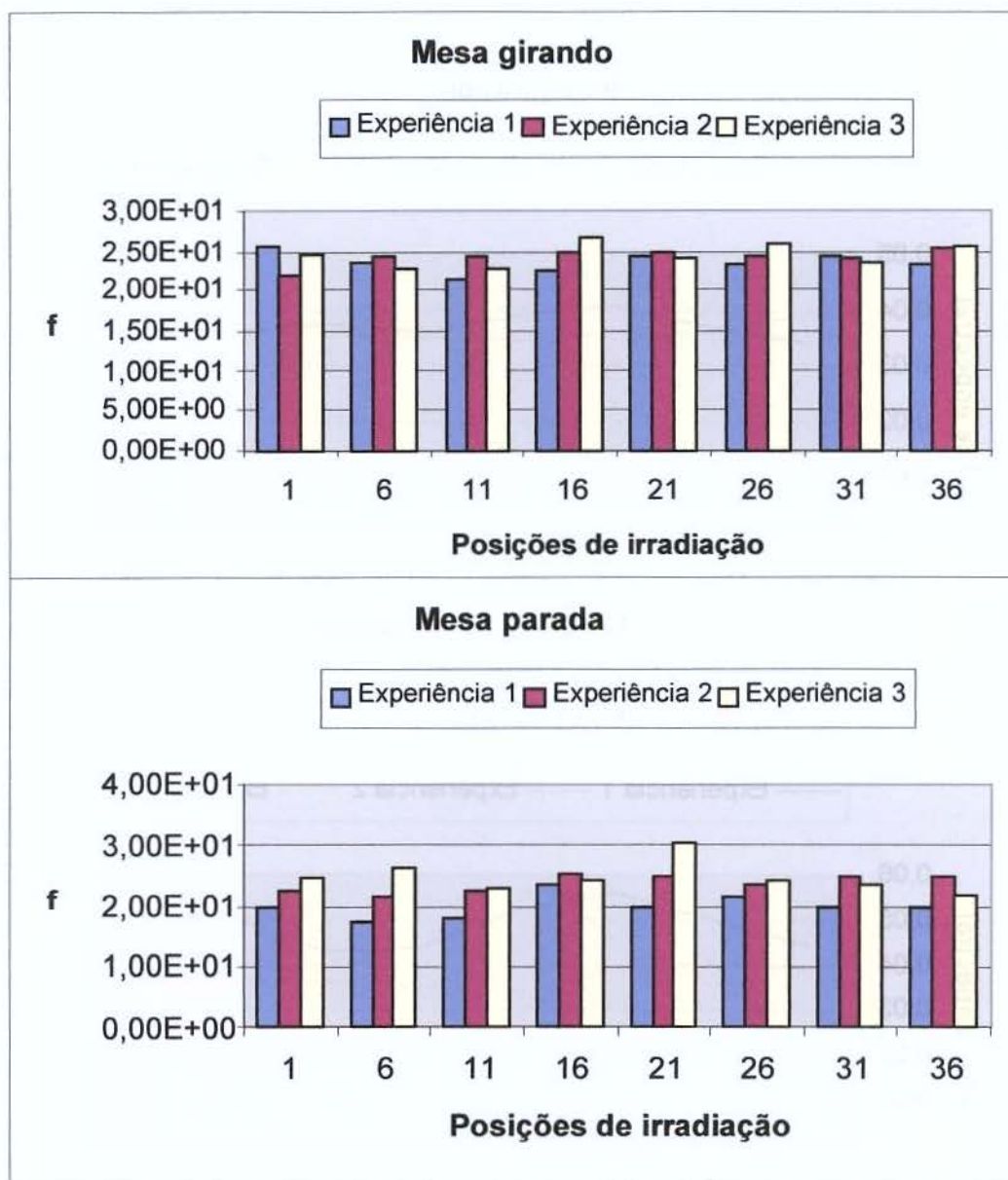


FIGURA 18 - Valores de f, mesa parada e girando.

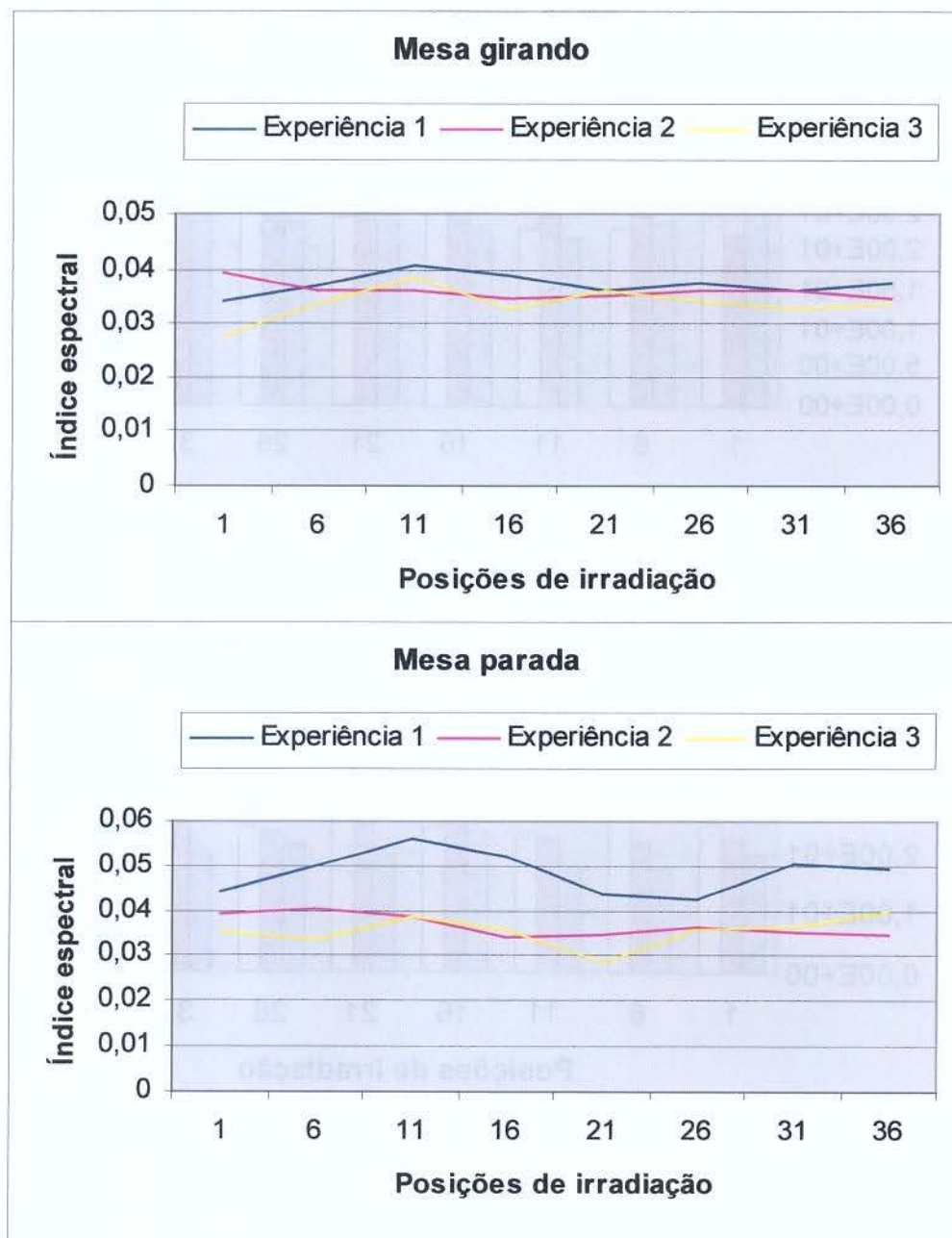


FIGURA 19 - Índice espectral, mesa parada e girando.

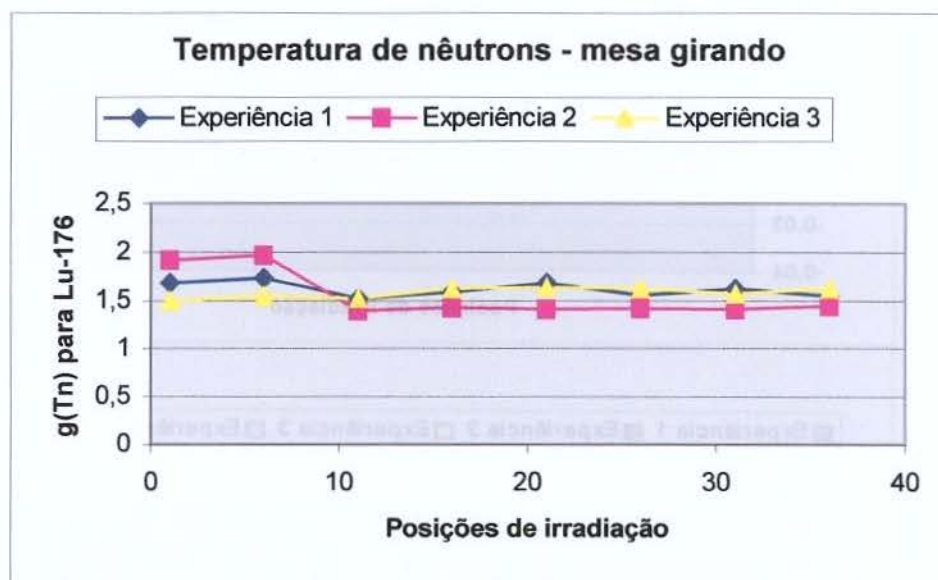


FIGURA 20 - g(Tn), mesa girando.

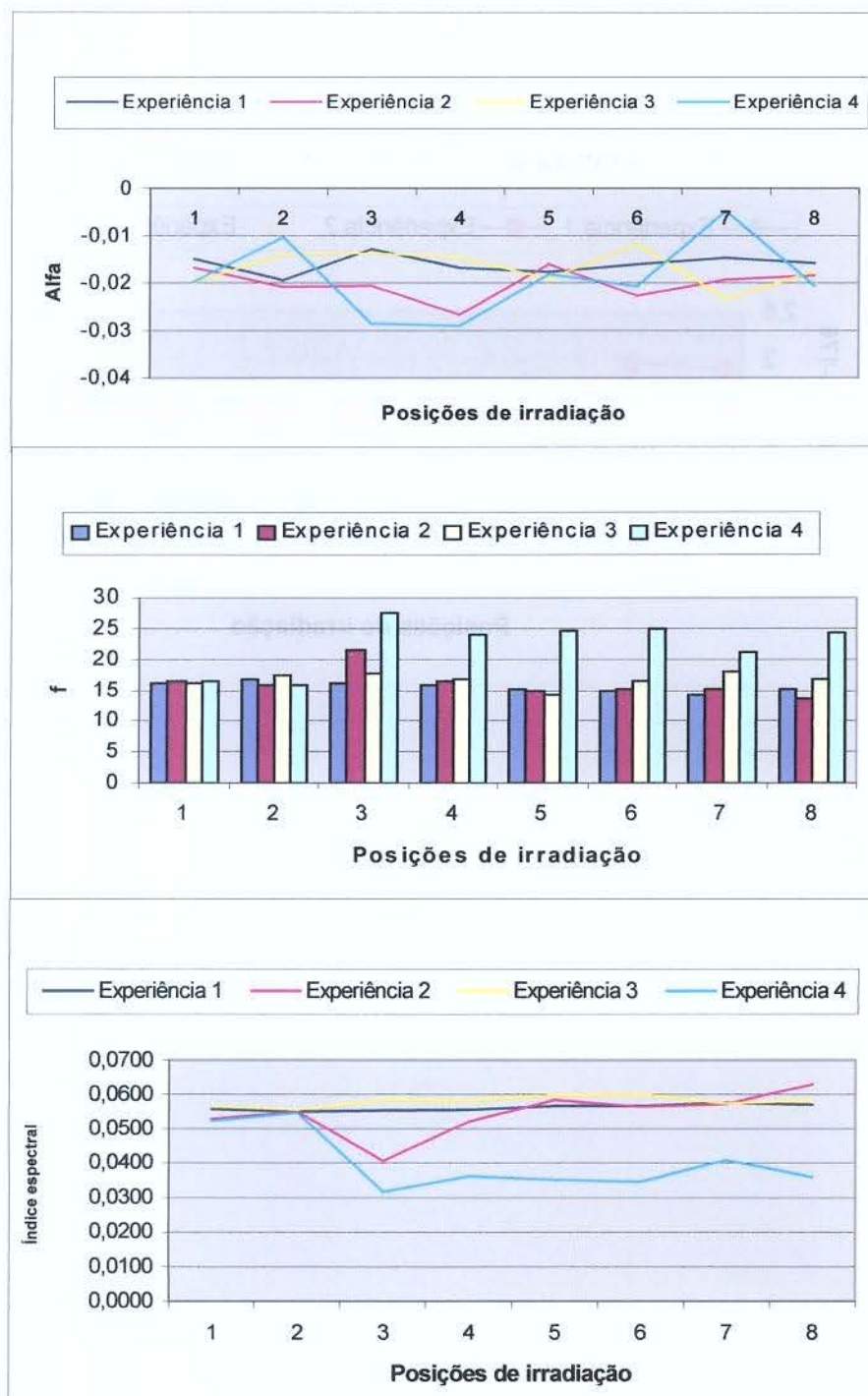


FIGURA 21 - Alfa, f e índice espectral calculados no tubo central.

Os resultados relativos aos experimentos estão apresentados na TABELA 14.

TABELA 14 - Parâmetros determinados no reator TRIGA IPR R1, considerando os valores de α

Parâmetros	α	β $(\frac{\phi_i}{\phi_e})$	Razão de cádmio (R_{Cd})	Fluxo térmico (ϕ_t)	Fluxo epitérmico (ϕ_e)	Índice espectral	g_{Lu}	Temperatura de nêutrons ($T_n, ^\circ C$)
Mesa Girando	$0,027 \pm 0,003$	24 ± 2	$2,6 \pm 0,1$	$6,0 \times 10^{11} \pm 7,0 \times 10^{10}$	$2,5 \times 10^{10} \pm 2,9 \times 10^9$	$0,036 \pm 0,002$	$1,58 \pm 0,09$	40 ± 3
Mesa Parada	$0,034 \pm 0,06$	22 ± 4	$2,5 \pm 0,3$	$5,9 \times 10^{11} \pm 1,0 \times 10^{11}$	$2,7 \times 10^{10} \pm 4,4 \times 10^9$	$0,040 \pm 0,008$		
Tubo Central	$-0,017 \pm 0,003$	18 ± 4	$2,1 \pm 0,2$	$2,9 \times 10^{12} \pm 9,8 \times 10^{11}$	$1,6 \times 10^{11} \pm 4,0 \times 10^{10}$	$0,051 \pm 0,009$		

4.3. Análise de materiais de referência

Para testar a metodologia várias amostras de referência e padrões mistos foram analisados, além de amostras de dois exercícios de intercomparação. Os resultados são apresentados nas TABELAS 15 a 23.

As amostras GXR-2, GXR-5 e GXR-6, apresentam dados de concentrações de 73 constituintes individuais em materiais de referência de exploração geoquímica. São valores médios de 131 laboratórios em todo o mundo, com incertezas expressas como um desvio padrão. Os valores recomendados estão baseados em critérios usados pelo NIST (National Institute of Standards and Technology) (BECKER et al., 1992; GLADNEY e ROELANDTS, 1990).

As amostras SL-1, Soil-5 e Soil-7, são sedimento e solos produzidos e distribuídos pela AIEA (Agência Internacional de Energia Atômica) através do programa AQCS (Analytical Quality Control Services) (INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2000).

Os resultados são as médias aritméticas de três medidas separadas das amostras em duplicatas. A precisão é representada pelo desvio padrão, s , e/ou coeficiente de variação ou desvio padrão relativo, $CV = 100s/\bar{x}$. Essa precisão, aqui apresentada, constitui a componente de repetitividade da incerteza do método analítico. Uma estimativa dos valores das outras fontes de incerteza será objeto do futuro processo de validação do método e está fora do escopo do presente trabalho.

A exatidão é expressa como a diferença entre o valor observado e o certificado, relativo ao valor certificado, $E(\%) = (V_{\text{encontrado}} - V_{\text{certificado}})100 / V_{\text{certificado}}$. Para a maioria dos elementos analisados foram obtidos coeficientes de variação em torno de 10% ou menores. A precisão e exatidão obtidas no método k_0 são similares àsquelas dos métodos comparativos de análise por ativação, e se ajustam perfeitamente a determinações em baixos e até mesmo a altos teores.

TABELA 15 - Exatidão e precisão do método de análise por Ativação Neutrônica k_0 : concentração dos elementos na amostra GXR-5, comparados com os valores certificados.

Isótopo	Energia (keV)	Valor encontrado Mesa giratória ($\mu\text{g/g}$)			Valor encontrado Tubo central ($\mu\text{g/g}$)			Valor certificado ($\mu\text{g/g}$)
		$\bar{x} \pm s$	$\pm \text{CV}$	E (%)	$\bar{x} \pm s$	$\pm \text{CV}$	E (%)	
$^{28}\text{Al}(\%)$	1779	23 $\pm$ 3	10	+13				20,2 $\pm$ 0,6
$^{139}\text{Ba}(\mu\text{g/g})$	496	2050 $\pm$ 150	7,3	+2,5				2000 $\pm$ 150
$^{82}\text{Br}(\mu\text{g/g})$	777	6,1 $\pm$ 0,7	11	-18				7,8 $\pm$ 0,4
$^{60}\text{Co}(\mu\text{g/g})$	1332	27 $\pm$ 3	11	-9,7	31 $\pm$ 3	9,7	+3,7	29,9 $\pm$ 1,2
$^{51}\text{Cr}(\mu\text{g/g})$	320	89 $\pm$ 10	11	-12	105 $\pm$ 5	4,8	+3,9	101 $\pm$ 5
$^{51}\text{Cs}(\mu\text{g/g})$	796	1,9 $\pm$ 0,2	10	-12	2,6 $\pm$ 0,3	11	+20	2,16 $\pm$ 0,16
$^{152}\text{Eu}(\mu\text{g/g})$	778	0,94 $\pm$ 0,09	9,6	-1,1				0,95 $\pm$ 0,06
$^{59}\text{Fe}(\%)$	1099	3,0 $\pm$ 0,3	10	-12	3,4 $\pm$ 0,3	8,8	+0,59	3,38 $\pm$ 0,27
$^{181}\text{Hf}(\mu\text{g/g})$	482	4,3 $\pm$ 0,4	9,3	-6,5				4,6 $\pm$ 0,3
$^{232}\text{Th}(\mu\text{g/g})$	312	4,7 $\pm$ 0,5	10					5,3 $\pm$ 0,3
$^{42}\text{K}(\%)$	1525	0,98 $\pm$ 0,09	9,2	11	0,94 $\pm$ 0,09	10	+6,8	0,88 $\pm$ 0,02
$^{140}\text{La}(\mu\text{g/g})$	1596	18 $\pm$ 2	11	-9,5	22 $\pm$ 3	13	10	19,9 $\pm$ 1
$^{56}\text{Mn}(\mu\text{g/g})$	1811	298 $\pm$ 15	5,0	+1,7				293 $\pm$ 17
$^{24}\text{Na}(\%)$	1368	0,73 $\pm$ 0,07	8,9	-7,1	0,86 $\pm$ 0,09	9,3	10	0,78 $\pm$ 0,07
$^{86}\text{Rb}(\mu\text{g/g})$	1077	28 $\pm$ 3	10	-32				41 $\pm$ 3
$^{182}\text{Ta}(\mu\text{g/g})$	1230	0,48 $\pm$ 0,05	10	0	0,61 $\pm$ 0,09	15	27	0,48 $\pm$ 0,05
$^{51}\text{Ti}(\mu\text{g/g})$	321	2025 $\pm$ 200	9,9	-7,9				2200 $\pm$ 100
$^{124}\text{Sb}(\mu\text{g/g})$	1691	1,5 $\pm$ 0,2	13	-7,9				1,63 $\pm$ 0,28
$^{46}\text{Sc}(\mu\text{g/g})$	889	6,9 $\pm$ 0,7	10	-6,7	8,0 $\pm$ 0,8	10	8,1	7,4 $\pm$ 0,4
$^{52}\text{V}(\mu\text{g/g})$	1434	53 $\pm$ 5	9,4	-5,3				56 $\pm$ 12
$^{175}\text{Yb}(\mu\text{g/g})$	396	2,3 $\pm$ 0,3	13	+31	2,0 $\pm$ 0,3	15	14	1,75 $\pm$ 0,26

$$\text{CV} = 100 s / \bar{x}$$

$$E(\%) = (V_{\text{encontrado}} - V_{\text{certificado}}) 100 / V_{\text{certificado}}$$

TABELA 16 - Exatidão e precisão do método de análise por Ativação
Neutrônica k_0 : concentração dos elementos na amostra GXR-6, comparados
com os valores certificados.

Isótopo	Energia (keV)	Valor. encontrado Mesa giratória			Valor encontrado Tubo central			Valor certificado
		$\bar{x} \pm s$	$\pm CV$	E (%)	$\bar{x} \pm s$	$\pm CV$	E (%)	
$^{28}\text{Al}(\%)$	1779	18 $\pm$ 2	5,0	+1,1				17,7 $\pm$ 0,6
$^{139}\text{Ba}(\mu\text{g/g})$	496	1374 $\pm$ 100	7,3	+5,4				1300 $\pm$ 100
$^{60}\text{Co}(\mu\text{g/g})$	1332	12,8 $\pm$ 1,3	10	-7,2	14,0 $\pm$ 1,0	7,1	+1,4	13,8 $\pm$ 1,0
$^{51}\text{Cr}(\mu\text{g/g})$	320	100 $\pm$ 10	10	+4,2	101 $\pm$ 10	9,9	+5,2	96 $\pm$ 7
$^{51}\text{Cs}(\mu\text{g/g})$	796	4,4 $\pm$ 0,4	9,1	+4,8	5,4 $\pm$ 0,5	9,3	+28	4,20 $\pm$ 0,21
$^{152}\text{Eu}(\mu\text{g/g})$	778	0,82 $\pm$ 0,09	11					*****
$^{59}\text{Fe}(\%)$	1099	5,6 $\pm$ 0,6	3,6	-3,1	5,9 $\pm$ 0,6	10	+1,7	5,58 $\pm$ 0,41
$^{181}\text{Hf}(\mu\text{g/g})$	482	4,3 $\pm$ 0,5	11	0				4,3 $\pm$ 0,7
$^{232}\text{Th}(\mu\text{g/g})$	312	5,2 $\pm$ 0,5	9,6					5,3 $\pm$ 0,22
$^{42}\text{K}(\%)$	1525	1,8 $\pm$ 0,2	11	-3,7				1,87 $\pm$ 0,04
$^{140}\text{La}(\mu\text{g/g})$	1596	13,2 $\pm$ 1,2	9,1	-5,0				13,9 $\pm$ 0,9
$^{56}\text{Mn}(\mu\text{g/g})$	1811	1172 $\pm$ 100	8,5	+12,7				1040 $\pm$ 50
$^{24}\text{Na}(\mu\text{g/g})$	1368	975 $\pm$ 95	9,7	-8,0				1060 $\pm$ 90
$^{86}\text{Rb}(\mu\text{g/g})$	1077	83 $\pm$ 9	11	-7,8				90 $\pm$ 4
$^{182}\text{Ta}(\mu\text{g/g})$	1230	0,51 $\pm$ 0,05	9,8	+5,1	0,60 $\pm$ 0,10	17	+24	0,485 $\pm$ 0,003
$^{51}\text{Ti}(\%)$	321	0,59 $\pm$ 0,08	10	+18				0,50 $\pm$ 0,01
$^{124}\text{Sb}(\mu\text{g/g})$	1691	3,8 $\pm$ 0,4	11	+5,6				3,6 $\pm$ 1,0
$^{46}\text{Sc}(\mu\text{g/g})$	889	28 $\pm$ 3	11	+1,5	28 $\pm$ 3	11	+1,4	27,6 $\pm$ 2,6
$^{52}\text{V}(\mu\text{g/g})$	1434	197 $\pm$ 18	9,1	+5,9				186 $\pm$ 11
$^{175}\text{Yb}(\mu\text{g/g})$	396	2,5 $\pm$ 0,3	12	+4,1	2,4 $\pm$ 0,3	13	0	2,4 $\pm$ 0,4

$$CV = 100 s / \bar{x}$$

$$E(\%) = (V_{\text{encontrado}} - V_{\text{certificado}}) 100 / V_{\text{certificado}}$$

TABELA 17 - Exatidão e precisão do método de análise por Ativação Neutrônica k_0 : concentração dos elementos na amostra GXR-2, comparados com os valores certificados.

Isótopo	Energia (keV)	Valor encontrado Mesa giratória			Valor encontrado Tubo central			Valor certificado
		$\bar{x} \pm s$	$\pm CV$	E (%)	$\bar{x} \pm s$	$\pm CV$	E (%)	
$^{28}\text{Al}(\%)$	1779	20 $\pm$ 2	6,6	+5,8				18,57 $\pm$ 0,06
$^{139}\text{Ba}(\mu\text{g/g})$	496	2077 $\pm$ 200	9,6	-7,3				2240 $\pm$ 60
$^{82}\text{Br}(\mu\text{g/g})$	776	3,7 $\pm$ 0,4	11	+16				3,20
$^{60}\text{Co}(\mu\text{g/g})$	1332	7,5 $\pm$ 0,8	11	-13	8,4 $\pm$ 0,8	9,5	-2,3	8,6 $\pm$ 0,3
$^{51}\text{Cr}(\mu\text{g/g})$	320	38 $\pm$ 4	10	+5,6	38 $\pm$ 4	11	+5,6	36 $\pm$ 4
$^{51}\text{Cs}(\mu\text{g/g})$	796	5,1 $\pm$ 0,4	7,8	-1,9	6,0 $\pm$ 0,6	10	+15	5,2 $\pm$ 0,3
$^{152}\text{Eu}(\mu\text{g/g})$	778	0,81 $\pm$ 0,08	9,9	0				0,81 $\pm$ 0,10
$^{59}\text{Fe}(\%)$	1099	1,8 $\pm$ 0,2	3,9	-2,7	2,1 $\pm$ 0,2	10	+25	1,86 $\pm$ 0,06
$^{181}\text{Hf}(\mu\text{g/g})$	482	7,6 $\pm$ 0,8	10	-8,4				8,3 $\pm$ 0,9
$^{232}\text{Th}(\mu\text{g/g})$	312	8,5 $\pm$ 0,7	8,2	-3,4				8,8 $\pm$ 0,3
$^{42}\text{K}(\%)$	1525	1,4 $\pm$ 0,1	7,1	2,2				1,37 $\pm$ 0,09
$^{140}\text{La}(\mu\text{g/g})$	1596	25,8 $\pm$ 1,5	7,8	+0,78	32 $\pm$ 4	13	+20	25,6 $\pm$ 1,8
$^{56}\text{Mn}(\mu\text{g/g})$	1811	1057 $\pm$ 70	6,6	+4,6				1010 $\pm$ 40
$^{24}\text{Na}(\%)$	1368	0,55 $\pm$ 0,05	7,2	-1,1	0,67 $\pm$ 0,07	10	+22	0,56 $\pm$ 0,01
$^{124}\text{Sb}(\mu\text{g/g})$	1691	44 $\pm$ 4	9,1	-10				49 $\pm$ 5
$^{86}\text{Rb}(\mu\text{g/g})$	1077	87 $\pm$ 9	10					*****
$^{182}\text{Ta}(\mu\text{g/g})$	1230	0,70 $\pm$ 0,07	10	-22	1,1 $\pm$ 0,2	18	+22	0,90 $\pm$ 0,17
$^{51}\text{Ti}(\%)$	321	0,36 $\pm$ 0,04	11	+18				0,30 $\pm$ 0,03
$^{46}\text{Sc}(\mu\text{g/g})$	889	7,5 $\pm$ 0,8	11	+9,0	8,1 $\pm$ 0,8	9,9	+18	6,88 $\pm$ 0,09
$^{52}\text{V}(\mu\text{g/g})$	1434	53 $\pm$ 4	7,5	+1,9				52 $\pm$ 4
$^{175}\text{Yb}(\mu\text{g/g})$	396	1,7 $\pm$ 0,2	12	-17	2,2 $\pm$ 0,2	9,1	+7,8	2,04 $\pm$ 0,24

$$CV = 100 s / \bar{x}$$

$$E(\%) = (V_{\text{encontrado}} - V_{\text{certificado}}) 100 / V_{\text{certificado}}$$

TABELA 18 - Exatidão e precisão do método de análise por Ativação Neutrônica k_0 : concentração dos elementos na amostra SOLO-7, comparados com os valores certificados.

Isótopo	Energia (keV)	Valor. encontrado Mesa giratória			Valor encontrado Tubo central			Valor certificado
		$\bar{x} \pm s$	$\pm CV$	E (%)	$\bar{x} \pm s$	$\pm CV$	E (%)	
$^{28}\text{Al}(\%)$	1779	4,9 $\pm$ 0,5	5,9	+5,1				4,7 $\pm$ 0,4*
$^{76}\text{As}(\mu\text{g/g})$	559	14,2 $\pm$ 2,8	20	+5,9				13,4 $\pm$ 0,9
$^{82}\text{Br}(\mu\text{g/g})$	776	5,9 $\pm$ 0,9	15	-16				7 $\pm$ 3
$^{141}\text{Ce}(\mu\text{g/g})$	145				58 $\pm$ 5	8,6	-4,9	61 $\pm$ 6
$^{60}\text{Co}(\mu\text{g/g})$	1332	8,1 $\pm$ 0,7	8,6	-8,9	8,1 $\pm$ 0,8	9,9	-8,9	8,9 $\pm$ 0,2
$^{51}\text{Cr}(\mu\text{g/g})$	320	68 $\pm$ 7	10	+13	76 $\pm$ 8	11	+26	60 $\pm$ 12
$^{51}\text{Cs}(\mu\text{g/g})$	796	5,3 $\pm$ 0,4	7,5	-1,8	5,3 $\pm$ 0,5	9,4	-1,8	5,4 $\pm$ 0,5
$^{152}\text{Eu}(\mu\text{g/g})$	778	0,73 $\pm$ 0,07	9,2	-27				1,0 $\pm$ 0,2
$^{59}\text{Fe}(\%)$	1099	2,6 $\pm$ 0,3	1,9	-0,77	2,6 $\pm$ 0,3	7,7	+1,2	2,57 $\pm$ 0,07*
$^{181}\text{Hf}(\mu\text{g/g})$	482	5,3 $\pm$ 0,6	11	+3,9				5,1 $\pm$ 0,3
$^{232}\text{Th}(\mu\text{g/g})$	312	7,6 $\pm$ 0,7	9,2					8,2 $\pm$ 0,5
$^{42}\text{K}(\%)$	1525	1,2 $\pm$ 0,1	8,3	-0,83	1,2 $\pm$ 0,1	6,9	+4,1	1,21 $\pm$ 0,08
$^{140}\text{La}(\mu\text{g/g})$	1596	28 $\pm$ 3	11	0	28 $\pm$ 3	11	0	28 $\pm$ 5
$^{56}\text{Mn}(\mu\text{g/g})$	1811	691 $\pm$ 60	8,7	+9,5				631 $\pm$ 27
$^{24}\text{Na}(\mu\text{g/g})$	1368	2300 $\pm$ 210	9,1	-4,2				2400 $\pm$ 100*
$^{124}\text{Sb}(\mu\text{g/g})$	1691	1,7 $\pm$ 0,2	12	0				1,7 $\pm$ 0,2
$^{86}\text{Rb}(\mu\text{g/g})$	1077	50 $\pm$ 5	10	-1,9				51 $\pm$ 5
$^{182}\text{Ta}(\mu\text{g/g})$	1230	0,73 $\pm$ 0,07	9,6	-8,8	0,96 $\pm$ 0,09	9,4	+20	0,80 $\pm$ 0,02
$^{51}\text{Ti}(\mu\text{g/g})$	321	3170 $\pm$ 320	10	+5,6				3000 $\pm$ 400*
$^{46}\text{Sc}(\mu\text{g/g})$	889	8,7 $\pm$ 0,8	9,2	+4,8	9,0 $\pm$ 0,9	10	+8,4	8,3 $\pm$ 1,2
$^{52}\text{V}(\mu\text{g/g})$	1434	66 $\pm$ 5	7,6	0				66 $\pm$ 7
$^{175}\text{Yb}(\mu\text{g/g})$	396	2,8 $\pm$ 0,5	18	+17	2,6 $\pm$ 0,3	11	+8,3	2,4 $\pm$ 0,3

(*) Valor não certificado

$$CV = 100 s / \bar{x}$$

$$E(\%) = (V_{\text{encontrado}} - V_{\text{certificado}}) 100 / V_{\text{certificado}}$$

TABELA 19 - Exatidão e precisão do método de análise por Ativação Neutrônica k_0 : concentração dos elementos na amostra SOLO-5, comparados com os valores certificados.

Isótopo	Energia (keV)	Valor. Encontrado Mesa giratória			Valor encontrado Tubo central			Valor certificado
		$\bar{x} \pm s$	$\pm CV$	E (%)	$\bar{x} \pm s$	$\pm CV$	E (%)	
²⁸ Al(%)	1779	8,8±0,8	6,8	+7,5				8,19±0,28
¹³⁹ Ba(μg/g)	496	440±88	20	-21				560±53
⁸² Br(μg/g)	777	6,2±0,9	15	+15				5,4±1,0
⁵¹ Cr(μg/g)	320	29±3	10	+0,35	31±3	9,7	+7,3	28,9±2,8
⁶⁰ Co(μg/g)	1332	15±2	13	+1,4	13,8±1,3	9,4	-6,7	14,8±0,76
¹⁴¹ Ce(μg/g)	145				57±5	8,8	-4,5	59,7±3
¹⁶⁵ Dy(μg/g)	95	4,3±0,9	21	+7,5				4,0±1,0
⁵⁹ Fe(%)	1099	4,4±0,4	9,1	-1,1	4,7±0,4	4,3	+4,7	4,45±0,19
⁷² Ga(μg/g)	833	18±2	11	-2,2				18,4±1,6
⁴² K(%)	1525	1,9±0,2	2,3	-1,4				1,86±0,15
¹⁴⁰ La(μg/g)	1596	27±3	11	-3,9	29±3	10	+3,2	28,1±1,5
⁵⁶ Mn(μg/g)	1811	943±45	4,8	+11				852±37
²⁴ Na(%)	1368	1,7±0,2	9,2	-9,4	2,0±0,2	5,6	+3,1	1,92±0,11
¹²⁴ Sb(μg/g)	1691	14±1	7,1	-2,1				
⁴⁶ Sc(μg/g)	889	14±1	7,1	-5,4	16±2	13	8,1	14,8±0,66
⁵¹ Ti(μg/g)	321	5200±500	9,6	+11				4700*
⁵² V(μg/g)	1434	142±10	7,0	-5,9				151*
¹⁷⁵ Yb(μg/g)	396	2,8±0,5	18	+25	2,6±0,4	15	+16	2,24±0,20

(*) Valor não certificado

$$CV = 100 s / \bar{x}$$

$$E(\%) = (V_{\text{encontrado}} - V_{\text{certificado}}) 100 / V_{\text{certificado}}$$

TABELA 20 - Exatidão e precisão do método de análise por Ativação Neutrônica k_0 : concentração dos elementos na amostra SOLO-1, comparados com os valores certificados.

Isótopo	Energia (keV)	Valor encontrado Mesa giratória			Valor certificado
		$\bar{x} \pm s$	$\pm CV$	E(%)	
$^{82}\text{Br}(\mu\text{g/g})$	776	6,7 $\pm$ 1,0	15	-1,8	6,82 $\pm$ 1,73
$^{60}\text{Co}(\mu\text{g/g})$	1332	18,2 $\pm$ 2,0	11	-8,1	19,8 $\pm$ 1,5
$^{51}\text{Cr}(\mu\text{g/g})$	320	118 $\pm$ 12	10	+13	104 $\pm$ 9
$^{51}\text{Cs}(\mu\text{g/g})$	796	7,1 $\pm$ 0,5	7,0	+1,3	7,01 $\pm$ 0,88
$^{59}\text{Fe}(\%)$	1099	6,7 $\pm$ 0,7	1,9	+0,60	6,74 $\pm$ 0,17
$^{181}\text{Hf}(\mu\text{g/g})$	482	4,9 $\pm$ 0,7	14	+18	4,16 $\pm$ 0,58
$^{232}\text{Th}(\mu\text{g/g})$	312	14 $\pm$ 1	7,1	0	14 $\pm$ 1
$^{42}\text{K}(\%)$	1525	1,3 $\pm$ 0,1	10	-16	1,5*
$^{140}\text{La}(\mu\text{g/g})$	1596	49 $\pm$ 5	10	-6,8	52,6 $\pm$ 3,1
$^{24}\text{Na}(\mu\text{g/g})$	1368	1620 $\pm$ 150	9,3	-5,8	1720 $\pm$ 120
$^{124}\text{Sb}(\mu\text{g/g})$	1691	1,24 $\pm$ 0,12	9,7	-5,3	1,31 $\pm$ 0,12
$^{86}\text{Rb}(\mu\text{g/g})$	1077	113 $\pm$ 11	9,7	0	113 $\pm$ 11
$^{182}\text{Ta}(\mu\text{g/g})$	1230	0,92 $\pm$ 0,09	9,8	-43	1,6*
$^{46}\text{Sc}(\mu\text{g/g})$	889	18 $\pm$ 2	11	+4,0	17,3 $\pm$ 1,1
$^{175}\text{Yb}(\mu\text{g/g})$	396	4,5 $\pm$ 0,6	13	+5,2	3,42 $\pm$ 0,64

(*) Valor não certificado

$$CV = 100 s / \bar{x}$$

$$E(\%) = (V_{\text{encontrado}} - V_{\text{certificado}}) 100 / V_{\text{certificado}}$$

TABELA 21 - Determinação de elementos terras raras , usando o método k_0 e a convenção de Westcott.

Solução mista de rras raras ($\mu\text{g/g}$)	^{164}Eu ($\mu\text{g/g}$)		^{140}La ($\mu\text{g/g}$)		^{141}Ce ($\mu\text{g/g}$)	^{177}Lu ($\mu\text{g/g}$)		^{160}Tb ($\mu\text{g/g}$)		^{165}Dy ($\mu\text{g/g}$)	^{176}Yb ($\mu\text{g/g}$)	
	Mesa	TC	Mesa	TC	Mesa/TC	Mesa	TC	Mesa	TC	Mesa/TC	Mesa	TC
	$\bar{x} \pm s$	$\bar{x} \pm s$	$\bar{x} \pm s$	$\bar{x} \pm s$	$\bar{x} \pm s$	$\bar{x} \pm s$	$\bar{x} \pm s$	$\bar{x} \pm s$	$\bar{x} \pm s$	$\bar{x} \pm s$	$\bar{x} \pm s$	$\bar{x} \pm s$
10	11 $\pm$ 1	10 $\pm$ 1	9,3 $\pm$ 0,9	10 $\pm$ 1	11 $\pm$ 1	10 $\pm$ 1	10 $\pm$ 1	11 $\pm$ 1	11 $\pm$ 2		13 $\pm$ 2	12 $\pm$ 2
5	5,2 $\pm$ 0,5		4,3 $\pm$ 0,05			5,6 $\pm$ 0,06		5,2 $\pm$ 0,05		5,1 $\pm$ 0,5	4,7 $\pm$ 0,05	
1	0,99 $\pm$ 0,09	1,1 $\pm$ 0,1	0,99 $\pm$ 0,09	0,84 $\pm$ 0,09	0,95 $\pm$ 0,09	0,95 $\pm$ 0,09	1,1 $\pm$ 0,1		1,0 $\pm$ 0,1	0,98 $\pm$ 0,09	1,2 $\pm$ 0,2	1,4 $\pm$ 0,3
0,50	0,52 $\pm$ 0,05		0,46 $\pm$ 0,05		0,52 $\pm$ 0,05						0,52 $\pm$ 0,05	
0,10	0,097 $\pm$ 0,009					0,081 $\pm$ 0,009						
0,25	0,26 $\pm$ 0,03	0,25 $\pm$ 0,03				0,24 $\pm$ 0,03	0,24 $\pm$ 0,03		0,30 $\pm$ 0,03		0,22 $\pm$ 0,03	0,28 $\pm$ 0,03

Mesa = Mesa giratória, TC = Tubo central

4.4. Intercomparações

Na TABELA 22 estão apresentados resultados obtidos em amostra de intercomparação organizada pelo IPEN/SP (Instituto de Pesquisas Energéticas de São Paulo) e pelo Research Center of Jülich da Alemanha, em 1988/99.

TABELA 22 - Elementos traços em sedimento de rio.

Isótopo	Energia (keV)	Valor encontrado* Mesa giratória (µg/g)		Laboratórios** (µg/g)
		$\bar{x} \pm s$	$\pm CV$	
²⁸ Al(µg/g)	1779	61±5***	8,2	44,8±19,8 ***
⁷⁶ As(µg/g)	559	5,3±0,6	11	7,3±2,59
⁶⁰ Co(µg/g)	1332	16±2	12	15,9±1,6
⁵¹ Cr(µg/g)	320	653±50	7,7	622±53
⁵¹ Cs(µg/g)	796	5,9±0,5	8,5	5,04±1,03
⁶⁴ Cu(µg/g)	1039	63±5	7,9	65,8±10,8
⁵⁹ Fe(µg/g)	1099	32,9±3,3	10	34,0±4,9
⁴² K(µg/g)	1525	18,6±0,2	1,1	18,6±0,2
¹⁴⁰ La(µg/g)	1596	30±2	6,7	27,4±1,8
⁵⁶ Mn(µg/g)	1811	854±75	8,8	801±58
²⁴ Na(µg/g)	1369	12,1±0,3	2,5	10,9±0,6
⁸⁶ Rb(µg/g)	1077	110±15	13	99±20
⁴⁶ Sc(µg/g)	889	11,4±0,1	0,88	11,9±0,1
¹⁸² Ta(µg/g)	1230	0,9±0,2	22	0,91±0,17
⁵² V(µg/g)	1434	84±8	9,5	75±22

* Valores médios de 5 determinações, segundo recomendações dos organizadores

** Média e desvio padrão dos resultados dos laboratórios

*** mg/g.

A TABELA 23 apresenta resultados da amostra IAEA-SL-1, de intercomparação organizada pela Agência Internacional de Energia Atômica e a Comissão Chilena de Energia Nuclear em 2000.

TABELA 23 - Elementos menores e traços em sedimento de lago.

Isótopo	Energia (keV)	Valor encontrado Mesa giratória (µg/g)			Valor certificado (µg/g)
		$\bar{x} \pm s$	$\pm CV$	E (%)	
⁷⁶ As(µg/g)	559	30±2	3,3	+9,7	27,5 ± 3,1
¹³⁹ Ba(µg/g)	166	560±60	11	-1,2	639 ± 60
⁶⁰ Co(µg/g)	1332	16±1	6,3	-19	19,8 ± 1,5
⁵¹ Cr(µg/g)	320	114±3	2,6	+9,6	104 ± 9
⁵¹ Cs(µg/g)	7956	7,8±0,4	5,1	+11	7,01 ± 0,88
⁵⁹ Fe(%)	1099	6,4±0,4	1,8	-5,0	6,74± 0,17
⁷² Ga(µg/g)	834	23±1	4,3	-4,2	24 ± 5
⁴² K(%)	1525	1,3±0,1	3,8	-9,6	1,5*
¹⁴⁰ La(µg/g)	1596	50,5±0,5	0,99	-4,0	52,6 ± 3,1
⁵⁶ Mn(µg/g)	1811	3500±500	14	+1,2	3460 ± 160
²⁴ Na(µg/g)	1369	1590±30	1,9	-7,5	1720 ± 120
⁸⁶ Rb(µg/g)	1077	102±5	4,9	-9,7	113 ± 11
¹²⁴ Sb(µg/g)	1691	1,1±0,2	18	-16	1,31 ± 0,12
⁴⁶ Sc(µg/g)	888	17,3±0,3	1,7	0	17,3 ± 1,1

Valores médios de 5 determinações, segundo recomendações dos organizadores.

(*) Valor não certificado

4.5. Precisão do método

Os resultados analíticos das intercomparações e dos materiais de referência mostram uma boa precisão e exatidão do método, evidenciando que a metodologia se adapta perfeitamente ao nosso reator. A TABELA 24 a seguir apresenta resultados para vários elementos em três matrizes diferentes (GXR-2, GXR-6 e SOLO-5) analisadas pelos métodos k_0 e relativo. A FIGURA 22 apresenta uma comparação entre os valores médios das concentrações e das incertezas para os dois métodos. Pode-se observar que o método k_0 é um método mais preciso que o método relativo.

TABELA 24 - Resultados de análises pelos métodos de ativação neutrônica comparativa e k_0 na mesa giratória.
Comparação entre os valores encontrados, $\bar{x}$, desvios e a precisão, CV.

Isótopos	GXR-2						GXR-6						SOLO-5					
	k_0			Relativo			k_0			Relativo			k_0			Relativo		
	$\bar{x}$	$\pm s$	$\pm CV$	$\bar{x}$	$\pm s$	$\pm CV$	$\bar{x}$	$\pm s$	$\pm CV$	$\bar{x}$	$\pm s$	$\pm CV$	$\bar{x}$	$\pm s$	$\pm CV$	$\bar{x}$	$\pm s$	$\pm CV$
Al(%)	20	2	6,6	20	2	10	18	2	5,0	18,5	0,9	4,9						
Ba(μ_g/g)	2077	200	9,6	1700	200	12	1374	100	7,3	1100	100	9,1	440	88	20	572	60	11
Co(μ_g/g)	7,5	0,8	11	8	2	25	12,8	1,3	10	13	4	30	15	2	13	13	2	15
Cr(μ_g/g)	38	4	10	40	8	20	100	10	10	90	10	11	29	3	10	26	3	12
Eu(μ_g/g)	0,81	0,08	9,9	0,70	0,07	10	0,82	0,09	11	0,60	0,07	12						
Fe(%)	1,8	0,2	3,9	2,7	0,3	11	5,6	0,6	3,6	6,9	0,7	10	4,4	0,4	9,1	4,6	0,5	11
K(%)	1,4	0,1	7,1	1,5	0,1	6,7	1,8	0,2	11	2,0	0,2	10	1,9	0,2	2,3	2,0	0,2	10
La(μ_g/g)													27	3	11	27,6	2,5	9,1
Mn(μ_g/g)													943	45	4,8	852	80	9,4
Na(%)	0,55	0,05	9,1	0,55	0,05	9,1	0,098	0,009	9,7	0,12	0,01	8,3	1,7	0,2	9,2	2,0	0,2	10
Sb(μ_g/g)	44	4	9,1	36	4	11							14	1	7,1	13	1	7,7
Sc(μ_g/g)	7,5	0,8	11	6,5	0,5	7,7							14	1	7,1	14	2	14
Ti(%)	0,36	0,04	11	0,27	0,03	11	0,59	0,08	10	0,53	0,05	9,4						
V(μ_g/g)	53	4	7,5	55	5	9,1	197	18	9,1	200	20	10						

$$CV = 100s/\bar{x}$$

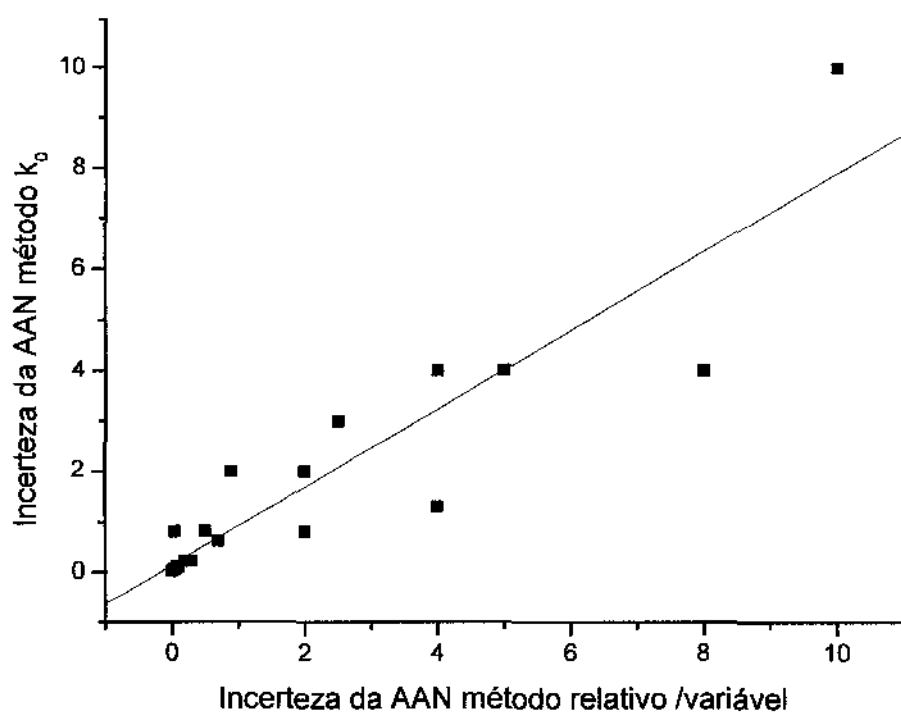
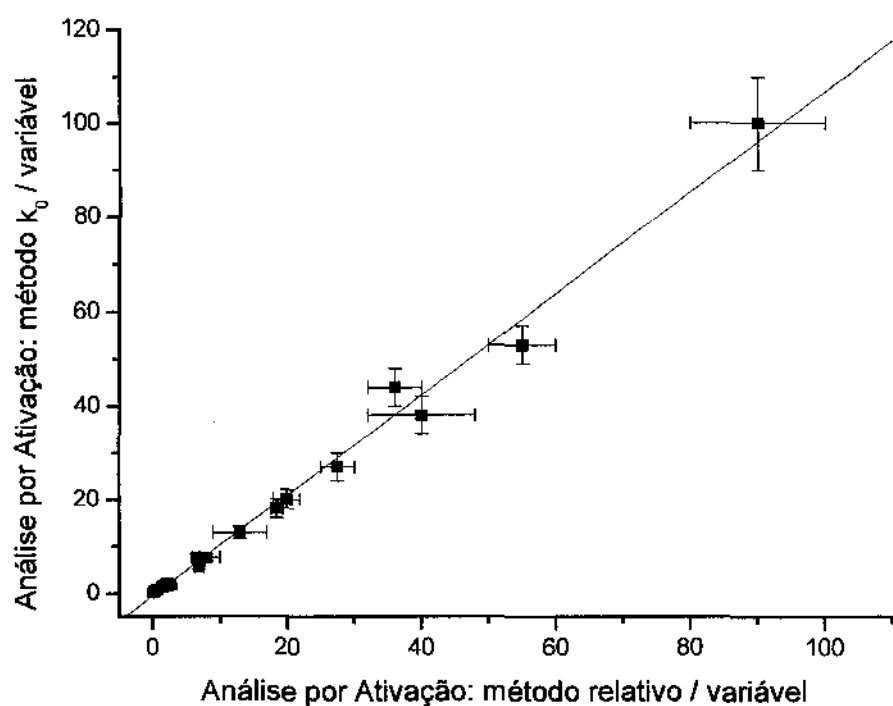


FIGURA 22 – Valores médios das concentrações e incertezas dos elementos analisados (TABELA 24): comparação entre os métodos relativos e k_0 .

4.6. Exatidão do método

Nas TABELAS 15, 16, 17, 18, 19, 20 e 23 são apresentadas as exatidões do método, para vários elementos determinados em amostras de materiais de referência de solo e sedimento de rio.

A concordância entre os valores experimentais e certificados em todos os casos é razoável, exceto, alguns desvios para mais ou para menos como nos casos do Ta e o Hf na mostra de SOLO-1, Ba na amostra de SOLO-5, Eu em SOLO-7, Co e Sb em sedimento de lago, Br, Ta e Ti na amostra GXR-2 e Ti na GXR-6, todos os casos em determinações na mesa giratória.

No tubo central os maiores desvios são: o Yb na mostra de SOLO-5, Cr e Ta em SOLO-7, Fe, La, Na, Ta, e Sc em GXR-2 e Cs e Ta na amostra GXR-6.

Essas discrepâncias em muito podem ser melhoradas. Não esquecer que esses são os primeiros, exercícios usando a metodologia. Outros fatores que concorrem para isso são: em alguns casos os valores certificados não possuem desvio padrão, a qualidade dos dados nucleares, energias gama escolhidas, etc. Os desvios são mais evidentes nas determinações no tubo central, justamente uma região de fluxo mais intenso com maiores possibilidades, portanto, de ativação de interferentes além dos problemas citados acima. As FIGURAS 23 e 24 mostram a distribuição de frequência das exatidões do método na mesa e no tubo central, evidenciando a maior precisão dos resultados na mesa.

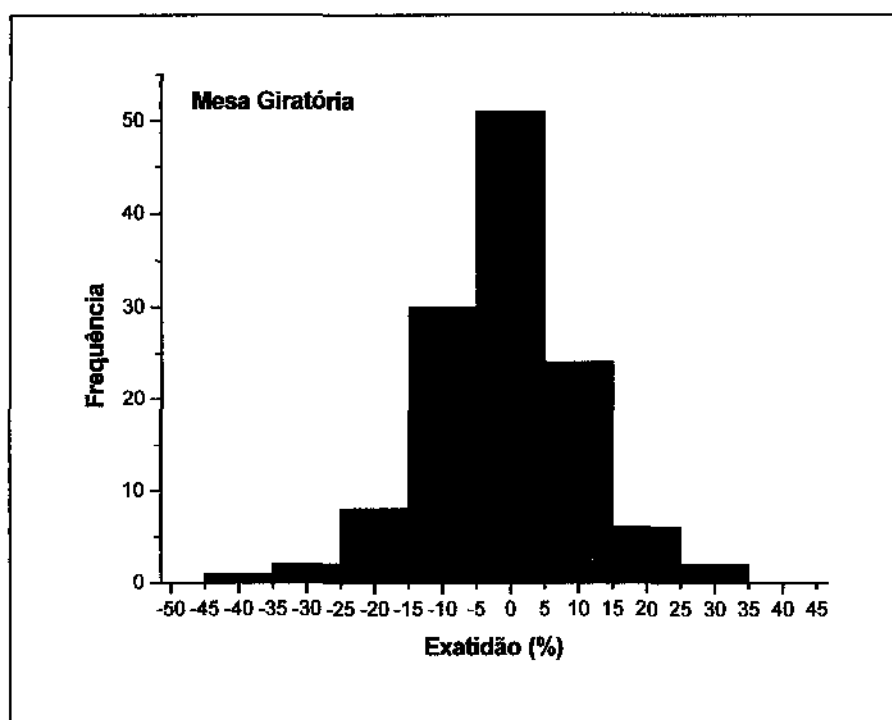


FIGURA 23 - Distribuição de frequência das exatidões do método k_0 na mesa giratória TABELAS 15,16,17,18,19,20 e 23.

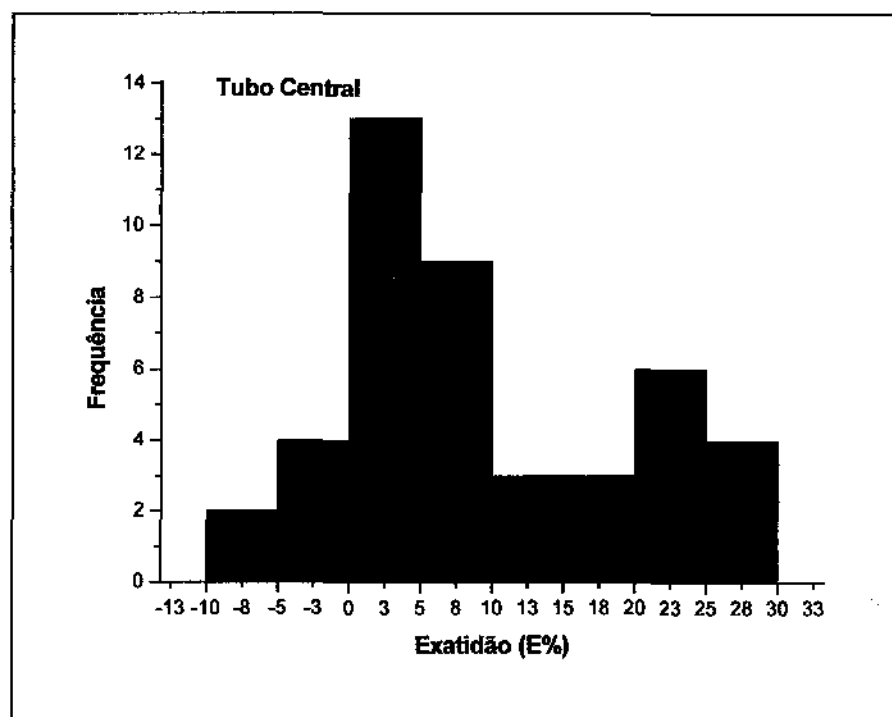


FIGURA 24 - Distribuição de frequência das exatidões do método k_0 no tubo central TABELAS 15,16,17, 18 e 19.

CAPÍTULO V - DISCUSSÕES, CONCLUSÕES E SUGESTÕES

5 DISCUSSÕES, CONCLUSÕES E SUGESTÕES

Os métodos paramétricos e particularmente o método k_0 são calculados diretamente dos valores de constantes nucleares e parâmetros pré-medidos. Esses métodos evitam às desvantagens dos métodos comparativos, mas são muitas vezes menos precisos devido às incertezas nos parâmetros envolvidos, e principalmente a problemas de instabilidade de fluxos na região de irradiação de amostras.

Os dados encontrados tabelados são: o período de semi-desintegração do radionuclídeo e a energia efetiva de ressonância. Dependendo do método utilizado são também a massa atômica relativa do elemento e a abundância isotópica do precursor, as seções de choque e as integrais de ressonância, as intensidades das radiações medidas e a relação integral de ressonância/secção de choque. Além deles os parâmetros experimentais: tempos de irradiação, medidas e decaimentos, a própria velocidade de contagem, a eficiência do detetor e os fluxos térmico e epitérmico do reator. A qualidade dos resultados analíticos depende essencialmente da qualidade dos dados tabelados, a melhora desses dados nas últimas décadas e a disponibilidade dos computadores tornaram esses métodos muito competitivos.

O método k_0 , além de oferecer a vantagem de determinação em faixas variadas de teores (ppb a %) e elementos adicionais se comparado ao método relativo, é capaz de elucidar problemas de interferências e limitações que possam ocorrer na determinação de qualquer elemento, garantindo dessa forma confiabilidade nos resultados produzidos. Outra vantagem do método é a possibilidade de mudança de um comparador de fluxo para outro se por ventura algum problema acontecer com aquele que estiver sendo usado (perda, esquecimento de contagem, etc). Isso pode ser feito desde que esteja usando uma amostra de referência acompanhando as análises o que é sempre recomendado.

Com relação à determinação dos parâmetros, o método de monitores nus [par isotópico do ^{94}Zr e ^{96}Zr e monitor biisotópico e ouro (^{198}Au , ^{95}Zr , ^{97}Zr) respectivamente] que foi usado apresenta vantagens e desvantagens. Embora o método sofra de altos fatores de propagação de erros, e desse modo, uma considerável incerteza na determinação de alfa, especialmente valores baixos e também em valores de f, essas determinações são mais práticas: a) são irradiações sem cobertura de cádmio, evitando assim depressões de fluxo e rejeitos nucleares; b) nenhum dos isótopos medido emite raios gama em cascata, evitando assim efeitos de empilhamento; c) o par isotópico do ^{94}Zr e ^{96}Zr , apresenta valores de Q_0 de 5,45 e 250 respectivamente e portanto uma diferença significativa entre eles. Além disso, o uso do ^{94}Zr como comparador é preferível em vista de seu valor de $Q_0=5,45$, valor próximo do valor médio de muitos isótopos.

Há também problemas com o valor de Q_0 do ^{96}Zr que apresenta grandes discrepâncias na literatura.

O uso desse método requer o uso de pelo menos dois cuidados para minimizar incertezas:

- escolha de monitores, com valores de k_0 e Q_0 bem conhecidos e exatos;
- cuidados experimentais de forma a minimizar erros grosseiros. Com relação a isso, a importância de pequenas correções para auto blindagens de nêutrons, atenuação gama e diferenças em geometria de contagens. Dentro do possível é interessante fazer uso de ligas contendo os três monitores, já disponíveis no mercado.

Uma das vantagens do reator TRIGA IPR-R1 para uso de metodologias paramétricas, entre elas o método k_0 , é a estabilidade de fluxo. Além disso, por ser um reator de pesquisa de baixa potência, o índice espectral apresenta um valor baixo, resultado justamente de fluxos menos energéticos, sendo minimizadas, por

esta razão, as chances de reações de limiar: (n, α) , (n, p) e de fissão (n, f) além de prováveis desvios do fluxo da idealidade (lei $1/E$). Os dados levantados ao longo do trabalho evidenciam essas excelentes características do reator e as boas perspectivas para utilização dessa metodologia no CDTN. A utilização do método k_0 pode e deve ser incrementada no reator IPR-R1, mas é recomendável que seja feita em irradiações com a mesa girando, prática normalmente utilizada no método comparativo clássico.

As experiências na determinação de todos os parâmetros mostraram que essa prática garante uma maior uniformidade dos fluxos, garantindo portanto melhor repetitividade dos dados. A evidência disso foram os excelentes resultados obtidos para os materiais de referência e as amostras de intercomparação mostrando que o método k_0 é tão exato e preciso quanto o método relativo convencional.

As medidas de concentração no tubo central não foram tão satisfatórias?

O tubo central é uma região de fluxos bem mais intensos que a mesa e portanto de grande potencial para ativação de núclídeos com seções de choque mais baixas ou mesmo elementos em quantidades muito pequenas. Apesar disso também são grandes as possibilidades de ocorrência de reações interferentes.

Vale a pena explorar o potencial analítico dessa região seja por métodos paramétricos ou comparativo. Para a utilização do método k_0 é recomendável a utilização de um monitor de fluxo junto com as amostras e para elementos que não seguem a lei $1/v$, fazer novas experiências para determinação de temperaturas de nêutrons ao longo da altura de irradiação.

Mesmo com o pouco espaço para irradiação de amostras, em determinados tipos de análises e para alguns tipos de amostras (amostras forenses, obras de artes etc) onde as quantidades são muito pequenas e necessidade também de preservação das mesmas, essa alternativa é muito importante.

O envolvimento de vários parâmetros e variáveis como vimos permite uma visão ampla do método e ao mesmo tempo exige um maior controle dos dados desde a preparação das amostras até o processamento de dados.

Foram feitas algumas experiências de determinação dos parâmetros na segunda camada da mesa. Embora seja uma região de fluxo menos intenso, é uma região de um potencial analítico muito grande também. As experiências foram muito animadoras e vão continuar, são o nosso próximo objetivo.

LISTA DE REFERÊNCIAS CITADAS E ANEXOS

6 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ALGHEM, L. et al. The development and application of k_0 -standardization method of neutron activation analysis at Es-Salam research reactor. **Nuclear Instruments and Method in Physics Research A** v. 556, p. 386-390, 2006.
- ALIAN, A.; BORN, H. J.; KIM, J. I. Thermal and epithermal neutron activation analysis using the monostandards methods. **Journal of Radioanalytical Chemistry**, v. 15, p. 535-546, 1973.
- ALIAN, A.; DJINGOVA, R. G.; KRÖNER, B.; SANSONI, B. The monostandard method in thermal neutron activation analysis of geological, biological and environmental materials. **Frezenius Journal of Analytical Chemistry**, v. 319, p. 47-53, 1984.
- ALIAN, A.; SANSONI, B. Instrumental neutron activation analysis of geological and pedological samples. further investigation of epithermal neutron activation analysis using monostandard method. **Journal of Radioanalytical and Chemistry**, v. 59, n.2, p. 511-543, 1980.
- ALIAN, A.; SANSONI, B. Review on the monostandard method in multielement neutron activation analysis. INIS18:001068. 1985.
- ANALYTICAL METHODS COMMITTEE. Principles of data quality control in chemical analysis. **Analyst**, v. 114, p. 1407-1503, Nov. 1989.
- AOTA, N. et al. Neutron activation analysis of fifteen GSJ igneous rock reference samples. **Geostandards Newsletter**, v. 18, n. 1, p. 65-84, avr. 1994a.
- AOTA, N. et al. Neutron activation analysis of nine GSJ sedimentary rock reference samples. **Geostandards Newsletter**, v. 18, n. p. 185-193, oct. 1994b.

- BECKER, D. et al. Use of NIST Standard Reference Materials for decisions on performance of analytical chemical methods and laboratories. Gaithersburgh: NIST, 1992. 27 p. (NIST special publications, 829).
- BEREZNAI, T.; BÓDIZS, D.; KEÖLEY, G. Investigations on the comparator technique used in epithermal neutron activation analysis. **Journal of Radioanalytical Chemistry**, v. 36, p. 509-524, 1977.
- BLAAUW, M. Comparison of the catalogus of the k_0 and the k_{zn} single comparator methods for standardization in INAA. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 191, n. 2, p. 387-401, Jan. 1995.
- BLAAUW, M. P.; BODE, P. Introduction to the k_1 concept for the interpretation of artificial peaks in k_0 based NAA. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 169, n. 1, p. 201-208, Mar. 1993.
- BLAAUW, M.; BODE, P.; DE BRUIN, M. An alternative convention describing the (n,γ) reaction rate suited for use in the k_0 -method of neutron activation analysis. **Journal of Radioanalytical Chemistry**. v. 157, n. 2, p. 435-455, 1991.
- BORNHORST, T. J.; BALAGNA, J. P. Instrumental neutron activation analysis of french geochemical reference samples. **Geostandards Newsletter**, v. 3, n. 2, p. 177-180, oct. 1979.
- CHUNG, Y. S. et al. Implementation of the k_0 -NAA method in the NAA#3 irradiation hole os the HANARO research reactor. **Nuclear Instruments and Method in Physics Research Section A: Acceleratoters, Spectrometers, Detectors and Associated Equipament**. v. 564, n. 2, p. 702-706, 2006.
- COHEN, I. M.; FURNARI, J. C. Considerations about the selection of nuclear data used in neutron activation analysis. **Applied Radiation and Isotopes**. V.50, n. 4, p 743-752, Apr. 1999.
- DE BEECK, J. OP. Energy dependence of the epithermal neutron spectrum

shape parameter α with respect to application of comparator type NAA. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, Articles, v. 90, n. 1, p. 167-187, 1985.

- DE CORTE, F. et al. The effect of the epithermal neutron flux distribution the accuracy of absolute and comparator standardization methods in (n,γ) activation analysis. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 72, n. 1-2, p. 275-286, July 1982a.
- DE CORTE, F. et al. A dedicated NAA method to determine the neutron spectrum monitor elements Co, Au and Lu with high accuracy in alloyed wires and foils. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 192, n. 1, p. 91-96, 1995.
- DE CORTE, F. et al. Applicability of the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal spectrum representation and the effective resonance energy E_r in NAA. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 102, n. 1, p. 37-57, Dec. 1986a.
- DE CORTE, F. et al. Instantaneous α determination without Cd-cover in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal neutron spectrum. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 52, n. 2, p. 295-304, Mar. 1979a.
- DE CORTE, F. et al. Modification and generalization of some methods to improve the accuracy of α determination in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal neutron spectrum. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 52, n. 2, p. 305-316, Mar. 1979b.
- DE CORTE, F. et al. Recent advances in the k_0 standardization of neutron activation analysis: extensions, applications, prospects. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 169, n. 1, p. 125-158, Nov. 1992b.
- DE CORTE, F. et al. The accuracy and precision of the experimental α -determination in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal reactor neutron spectrum. **Journal Radioanal. Nucl. Chem.**, v. 62, n. 1-2, p. 209-255, 1981.

- DE CORTE, F. et al. The reaction $^{117}\text{Sn}(n,n)^{117\text{m}}\text{Sn}$ as a primary interference in (n, γ) neutron activation analysis. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 179, n. 2, p. 255-263, Nov. 1982b.
- DE CORTE, F. et al. The use of a modified Westcott formalism in the k_0 standardization of NAA: the state of affair. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 179, p. 93-103, Nov. 1994.
- DE CORTE, F. et al. The Validation of Kayzero-assisted NAA in Budapest, Rez, and Ljubijana via the analysis of three BCR certified reference materials. **Fresenius` Journal of Analytical Chemistry**, v. 370, n. 1, p. 38-41, 2001b.
- DE CORTE, F. Problems and solutions in the standarization of reactor neutron activation analysis. **Journal of Radioanalytical Chemistry**. v.160, n. 1, p. 63-75, 1992a.
- DE CORTE, F. The k_0 standardization method; a move to the optimization of neutron activation analysis. Gent: Ryksuniversiteit Gent, Faculteit Van de Wetenschappen, 1986b. 464 p.
- DE CORTE, F. The standardization of standardless NAA. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 248, n. 1, p. 13-20, 2001a.
- DE CORTE, F. The traceability of the neutron activation analysis k_0 standardization methods. **Journal of Trace and Microprobe Techniques**, v. 5, n. 2-3, p. 115-133, 1989b.
- DE CORTE, F.; SIMONITS, A. k_0 - Mesurements and related nuclear data compilation for (n,γ) reactor neutron activation analysis, IIIa: experimental, IIIb: tabulation. **Journal of Radioanalytical Chemistry**, v. 133, n. 1, p. 3-130, 1989a.
- DE CORTE, F.; SIMONITS, A. Recommended nuclear data for use in k_0 standardization of neutron activation analysis. **Atomic Data and Nuclear Data Tables** v. 85, p. 47-67, 2003.

- DE CORTE, F.; SPEECKE, A.; HOSTE, J. Reactor neutron activation analysis by a triple comparator method. **Journal of Radioanalytical Chemistry**, v. 3 p. 205-215, 1971.
- DE CORTE, F.; VAN LIERDE, S. Determination and evaluation of fission k_0 -factors for correction of the ^{235}U (n,f) interference in k_0 -NAA. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 248, n. 1, p. 97-101, 2001c.
- DE REGGE, P.; FAJGELJ, A. (Eds) IAEA CONSULTANTS' MEETING ON QUANTIFYING UNCERTAINTY IN NUCLEAR ANALYTICAL MEASUREMENTS, 1998, Vienna. Proceedings. Vienna: IAEA, 1998.
- DE SOETE, D.; GISBELS, R.; HOSTE, J. **Neutron activation analysis**. London: Wiley-Interscience, 1972. (Chemical analysis, 34).
- DUBINSKAYA, N. A.; PELEKIS, L. L. The application of monitors in neutron activation analysis. **Journal of Radioanalytical Chemistry**. v. 9, p. 61-72, 1971.
- DUNG, H. M.; CHO, S. Y. A simple method for α determination. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 257, n. 3, p. 573-575, 2003a.
- DUNG, H. M.; HIEN, P. D. The Application and development of k_0 -standardization method of neutron activation analysis at Dalat research reactor. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 257, n. 3, p. 643-647, 2003b.
- EG&G ORTEC Maestro 2 software operator's manual: software versions 1.40. Oak Ridge: 1992, 251p. Em envelope conjunto de programas. 4 disquetes. 2 CD-ROM.
- EHMAN, W. D.; ROBERTSON, J. D.; YATES, S. W. Nuclear and radiochemical analysis, **Analytical Chemistry** v. 64, 1R-22R, 1992.
- EL NIMR, T. et al. Epicadmun neutron activation analysis (ENAA) based on the k_0 comparator method. **Journal of Radioanalytical Chemistry**, v. 67, n. 2, p. 421-

435, 1981.

- ERDTMANN, G.; PETRI, H.; KAYSSER, B. Application of INAA with Ghent k_0 factors to the analysis of high-purity metals and ceramics. **Transactions of the American Nuclear Society**, v. 56, p. 200-201, 1988.
- ERDTMANN, G.; PETRI, H. **Nuclear Activation Analysis: Fundamentals and techniques**, from TREATISE ON ANALYTICAL CHEMISTRY, Second Edition - Part I, v. 14, Edited by Elving J. Ph. 1996, N. Y., J. Wiley & Sons.
- FUKAI, R.; MEINKE, W. W. Some activation analysis of six Trace elements in marine biological ashes. **Nature**, v. 184, p. 815-816, 1959.
- GIRARDI, F.; GAUZZI, G.; PAULY, J. Reactor neutron activation analysis by the single comparador method. **Analytical Chemistry**, v. 37, n. 9, p. 1085-1092, 1965.
- GLADNEY, E. S.; ROELANDTS, I. 1988 compilation of elemental concentration data for USGS geochemical exploration reference materials GXR-1 to GXR-6. **Geostandards Newsletter**, v. 14, n.1, p.21-118, Apr. 1990.
- GRYNTAKIS, E. M.; KIM, J. I. Absorption, activation and fission $g(T_n)$ functions for non $1/V$ nuclides. **Radiochimica Acta**, v. 22, p. 128-147, Dec. 1975.
- HEYDORN, K.; DAMSGAARD, E. Utilization of k_0 factors for quality assurance in neutron activation analysis. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 179, n. 1, p. 87-91, 1994.
- HÖGDAHL, T. Radiochemical methods of analysis, proceeding series. **International Atomic Energy Agency**, Viena. V. 1, p. 23-40, 1965.
- INGELBRECHT, C. et al. Aluminium-gold reference material for the k_0 standardization of neutron activation analysis. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**, A, v. 303, p. 119-122, 1991.
- INMETRO, ABNT, Guia para a Expressão da Incerteza de Medição, 2ª edição,

INMETRO, ABNT, Rio de Janeiro, 1999. Tradução do "Guide for Expression of the Uncertainty in Measurements" ISSO, BIPM, 1993.

- INSTITUTO PERUANO DE ENERGIA NUCLEAR. Topicos selectos sobre aplicaciones del metodo del k-sub-cero y otros metodos parametricos en analisis por activacion neutronica. Lima:IPEN, 1995. 230 p.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Analytical Quality Control Services, **IAEA AQSC catalogue for reference materials and intercomparison exercises 1988/1999**. Vienna: IAEA (2000). 136p.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Set of 8 calibrated gamma-emitting sources (SEM-A2): certificate. Vienna: IAEA, 1982. 4p.
- JACIMOVIC, R.; SMODIS, B.; BUCAR, T.; STEGNAR, P. K_0 -NAA quality assessment by analysis of different certified reference materials using the KAYZERO/SOLKCOI software. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 257, n. 3, p. 659-663, 2003.
- JONAH, S. A. et al. Neutron spectrum parameters in irradiation channels of the Nigeria Research Reactor-1 (NIRR-1) FOR THE k_0 -NAA standardization. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 266, n. 1, p. 83-88, 2005.
- JOVANOVIC, S. et al. Epithermal neutron flux distribution and its Impact on (n,γ) activation analysis results – In: **BALKAN CONFERENCE ON ACTIVATION ANALYSIS**, 1. 19-24. **Proceedings**: Vienna IAEA, 1985 (INIS - mf - 11126).
- JOVANOVIC, S. et al. Some elucidations to the concept of the effective resonance energy $\hat{E}_r$. **Journal of Radioanalytical Chemistry**, v. 82, n. 2, p. 379-383, 1984.
- JOVANOVIC, S.; VUKOTIC, P. The k sub (0) **Method of NAA in Yugoslavia**: experiences and trends of further development and applications. Vienna: IAEA, 1989. (INIS - mf – 11557).

- KIM, J. I. Monostandard activation analysis: evaluation of the method and its accuracy, **Journal of Radioanalytical Chemistry**, v. 63, n. 1, p. 121-144, 1981.
- KIM, J. I., STARK, H. Proceeding in activation analysis in geochemistry and cosmochemistry, **NATO**, advanced study institute, Kjeller, Norway, 7-12 Sept. 1970.
- MESQUITA, A. Z. Investigação Experimental da Distribuição de Temperatura no Reator Nuclear de Pesquisa TRIGA IPR-R1. Campinas: Universidade Estadual de Campinas, 2005. 168p. Tese (Doutorado).
- MOENS, L. et al. k_0 measurement and related nuclear data comparison for (n, γ) reactor neutron activation analysis. **Journal of Radioanalytical Chemistry**, v. 82, n. 2, p. 385-452, 1984.
- MOENS, L.; DE CORTE, F.; SIMONITS, A. ; DE WISPELAERE, A. ; HOSTE, J. The effective resonance energy $\bar{E}_r$ as a parameter for the correction of resonance integrals in $1/E^{1+\alpha}$ epithermal neutron spectra; tabulation of $\bar{E}_r$ - values for 96 isotopes. **J. Radioanal. Nucl. Chem**, v. 52, n2, p. 379-387, 1979b.
- MOENS, L.; SIMONITS, A. ; DE CORTE, F.; HOSTE, J. Comparative study of measured and critically evaluated resonance integral to thermal cross-section ratios - Part I. **Journal of Radioanalytical Chemistry**, v. 54, n. 1, p. 377-390, 1979a.
- PETRI, H.; ERDTMANN, G. NAA with gamma-lived related (k_0) and isotope related (k_i) analytical factors. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles**, v. 179, n. 1, p. 113-118, Nov. 1993.
- PICCOT, D.; AYRAULT, S.; GAUDRY, A. determination os ^{237}Np by k_0 RNAA. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 254, n. 1, p. 213-215, 2002.
- POTTS, P. J., ROGERS, N. W. Determination of trace elements in selected geological reference materials by instrumental neutron activation analysis.

Geostandards Newsletter, v. 15, n. 1, p. 111-116, 1991.

- ROSSI, E. H. M. Evolucion y estadarizacion del analisis por activation neutronica segun el metod del k sub cero en el reactor nuclear PR-10; estudio preliminar empleando irradiaciones cortas. Lima: Universidad Peruana Cayetano Heredia, Escuela Peruana de Post Grado Victor A. Castro, 1995. 92 p.
- ROTH, S. et al. Determination of k_0 and Q_0 factors of short-lived nuclides. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 169, n. 1, p. 159-175, Nov. 1992.
- SASAJIMA, F. The effect of uncertainty of reactor parameters obtained using k_0 -NAA on result os analysis. In: WORKSHOP ON THE UTILIZATION OF RESEARCH REACTORS, Jan. 12-16, 2004, Palat, Vietnam. Japan Atomic Energy Agency.
- SILVA, K. M. C. **Estudo do método monopadrão na análise por ativação neutrônica**, Dissertação (Mestrado). Universidade Federal do Rio de Janeiro, Instituto de Química, 1991. 232p.
- SIMONITS, A. ; JOVANOVIC, S.; DE CORTE, F.; MOENS, L.; HOSTE, J. A method for experimental determination of effective ressonance energies related to (n, γ) reactions. **Journal of Radioanalytical Chemistry**. v. 82, n. 1, p. 169-179, 1984.
- SIMONITS, A. et al. The k_0 and Q_0 values for the Zr-isotopes: A re-investigation. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 245, n. 1, p. 199-203, 2000.
- SIMONITS, A.; DE CORTE, F.; HOSTE, J. Single comparison methods in reactor neutron activation analysis. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 24, p. 31-46, Mar. 1975.
- SIMONITS, A.; DE CORTE, F.; HOSTE, J. Zirconium as a multi-isotopic flux ratio monitor and a single comparator in reactor-neutron activation analysis.

Journal of Radioanalytical Chemistry, v. 31, p. 467-486, 1976.

- SIMONITS, A. et al. k_0 Measurements and related nuclear data compilation for (n, γ) reactor neutron activation analysis. **Journal of Radioanalytical Chemistry**, v. 60, p. 461-516, 1980.
- STOUGHTON, R. W.; HALPERIN, J. Heavy nuclide cross sections of particular interest to the thermal reactor operation: conventions, measurements and preferred values. **Nuclear Science & Engineering** v. 6, p. 100-118, 1959.
- SUTARNO, R.; STEGER, H. F. The use of certified reference materials in the verification of analytical data and methods. **Talanta**, v. 32, n. 6, p. 439-445, Feb. 1986.
- VAN DER LINDEN, R. et al. compilation of infinite dilution resonance integrals. **Journal of Radioanalytical Chemistry**. v. 11, p. 133-141, 1972.
- VAN DER LINDEN, R.; DE CORTE, F.; HOSTE, J. The multiplication of errors due to the application of a relative multiple comparator method. **Journal of Radioanalytical Chemistry**. v. 13, p. 169-179, 1973.
- WEIZHI, T., BANGFA, N. Further study on parametric standardization in reactor NAA. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, articles.**, China, v. 179, n. 1, p. 119-129, Nov. 1993.
- WESTCOTT, C. H.; WALKER, W. H.; ALEXANDER, T. K. Effective cross sections and cadmium ratios for the neutron spectra of thermal reactors. In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON PEACEFUL USES OF ATOMIC ENERGY, 2, 1958, Geneva. **Proceedings** Geneva: United Nations, 1958. v. 16, p. 70-76.
- XILEI, L. et al. Correction for neutron induced reaction interferences in the NAA k_0 standardization method. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 133, n. 1, p. 153-165, Mar. 1989.
- YUSUF, S. O.; FLEMING, R. F. Direct measurement of k_0 for monitor neutron

activation analysis. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 170, n. 1, p. 105-112, Nov. 1993.

- YVES, T. B.; PAUL, E. B. The construction and calibration of a standard thermal neutron flux facility at the National Physical Laboratory. **Journal of Nuclear Energy**, v. 22, p. 759-775, Mar. 1968.

CAPÍTULO VII - ANEXOS

7 ANEXOS

Anexo 1 – Cálculo de eficiências em diferentes geometrias e suas respectivas incertezas

Os cálculos de incertezas nas eficiências foram feitos através de equações de propagação de incertezas, sem levar em conta possíveis correlações entre os parâmetros. Para os parâmetros sem maiores informações foram feitas estimativas do tipo B usando funções de distribuição de probabilidades retangular, considerando como amplitude máxima de incerteza uma unidade do valor do parâmetro

Incerteza nas eficiências:

$$\varepsilon = \frac{C_i}{A_{hoje} t_m P_\gamma} f$$

$$\varepsilon_{20cm} = \frac{\varepsilon_\gamma}{f} = \frac{C_i}{A_{hoje} t_m P_\gamma} \quad (1)$$

mas

$$\varepsilon_{20cm} = \frac{\varepsilon_\gamma}{f} = \frac{C_i}{A_{hoje} t_m P_\gamma}$$

$$A_{hoje} = A_0 e^{-\frac{\ln 2}{t_{1/2}} t_d} \quad \text{então} \quad \varepsilon_{20cm} = \frac{\varepsilon_\gamma}{f} = \frac{C_i e^{\frac{\ln 2}{t_{1/2}} t_d}}{A_0 t_m P_\gamma} \quad (2)$$

com base em (1)

$$u^2(\varepsilon_{20cm}) = \left(\frac{1}{A_{hoje} t_m P_\gamma} \right)^2 u^2(C_1) + \left(\frac{C_1}{A_{hoje}^2 t_m P_\gamma} \right)^2 u^2(A_{hoje}) + \left(\frac{C_1}{A_{hoje} t_m^2 P_\gamma} \right)^2 u^2(t_m) +$$

$$+ \left(\frac{C_1}{A_{hoje} t_m P_\gamma^2} \right)^2 u^2(P_\gamma)$$

Assim

$$u^2(\varepsilon_{20cm}) = \left(\frac{e^{\frac{\ln 2}{t_{1/2}} t_d}}{A_0 p_\gamma t_m} \right)^2 u^2(C_1) + \left(-\frac{e^{\frac{\ln 2}{t_{1/2}} t_d}}{A_0^2 p_\gamma t_m} \right)^2 u^2(A_0) + \left(\frac{e^{\frac{\ln 2}{t_{1/2}} t_d} \ln 2 / t_{1/2} C_1}{A_0 p_\gamma t_m} \right)^2 u^2(t_d) +$$

$$+ \left(\frac{e^{\frac{\ln 2}{t_{1/2}} t_d} C_1 (-t_{1/2}^{-2} \ln 2 t_d)}{A_0 p_\gamma t_m} \right)^2 u^2(t_{1/2}) + \left(-\frac{e^{\frac{\ln 2}{t_{1/2}} t_d} C_1}{A_0 p_\gamma t_m^2} \right)^2 u^2(t_m) + \left(-\frac{e^{\frac{\ln 2}{t_{1/2}} t_d} C_1}{A_0 p_\gamma^2 t_m} \right)^2 u^2(P_\gamma)$$

Onde:

- A_0 atividade quando da calibração da fonte padrão ($t_d = 0$);
 t_d tempo de decaimento da fonte padrão desde sua calibração;
 C_1 área líquida do pico;
 A_{hoje} atividade do padrão hoje, a um tempo t_d após sua calibração;
 t_m tempo de medida, tempo vivo;
 P_γ probabilidade de emissão.

Anexo 1 - Planilha de cálculo da eficiência do detector de HPGe em tres geometrias diferentes

Distância : 10 cm

Isótopo	Energia (Kev)	% Gama	u (%Gama)	Atividade Inicial (kBq)	u (Ativ. Ini.)	T (1/2) (s)	u (T1/2)	T. de Contagem (T.C.) (s)	u (T.C.)	Atividade Atual (kBq)	Área Líquida (cont)
Am-241	59.537	0.359	0.00299	393.5	3.935	1.365E+10	17200512	600	0.0617	381.26	335439
Eu-152	121.78	0.2837	0.00240	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	2246961
Eu-152	244.69	0.0751	0.00060	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	406137
Ba-133	276.397	0.071	0.00100	321.4	4.821	332389440	96392.9376	1200	0.2356	87.79	23708
Ba-133	302.85	0.184	0.00221	321.4	4.821	332389440	96392.9376	1200	0.2356	87.79	55058
Eu-152	344.29	0.2658	0.00180	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	1044437
Ba-133	356	0.621	0.00698	321.4	4.821	332389440	96392.9376	1200	0.2356	87.79	161115
Ba-133	383.84	0.0891	0.00090	321.4	4.821	332389440	96392.9376	1200	0.2356	87.79	21600
Eu-152	443.979	0.03075	0.00018	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	94981
Cs-137	661.85	0.9	0.00532	345.4	3.454	946080000	946080	600	0.1543	218.93	146772
Eu-152	778.92	0.13	0.00070	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	233206
Eu-152	867.38	0.042	0.00061	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	62248
Eu-152	964.11	0.145	0.00060	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	220430
Eu-152	1112.07	0.136	0.00060	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	181943
Co-60	1173.24	0.999	0.00060	418.7	4.187	166226256	33245.2512	1200	0.0455	31.25	33121
Co-60	1332.5	1	0.00009	418.7	4.187	166226256	33245.2512	1200	0.0455	31.25	29523
Eu-152	1408	0.208	0.00091	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	226193
Mn-56	1810.7	0.272	0.00000	6588.17		9252		1864.6		6588.17	33841

u (Área Lq.)	Eficiência	u (Eficiência)	u Efic.(Área Lq.)	u Efic.(Ativ. Ini.)	u Efic.(Tempo Decaimento)	u Efic. (T1/2)	u Efic. (T.C.)	u Efic. (%Gama)	u (Eficiência)
1207.58	0.00408	5.51661E-05	1.4704E-05	4.0846E-05	5.1728E-09	1.6263E-07	4.2011E-07	3.4037E-05	5.5166E-05
3595.14	0.00512	0.000112667	8.1934E-06	1.0242E-04	2.1060E-07	1.5765E-05	3.4617E-06	4.3323E-05	1.1267E-04
1827.62	0.00350	7.77155E-05	1.5734E-05	6.9931E-05	1.4380E-07	1.0764E-05	2.3637E-06	2.7934E-05	7.7715E-05
265.53	0.00317	7.42699E-05	3.5502E-05	4.7547E-05	1.6487E-07	1.1930E-06	6.2245E-07	4.4644E-05	7.4270E-05
319.34	0.00284	5.70142E-05	1.6475E-05	4.2608E-05	1.4774E-07	1.0691E-06	5.5779E-07	3.4092E-05	5.7014E-05
2193.32	0.00260	5.45018E-05	5.3352E-06	5.0812E-05	1.0448E-07	7.8212E-06	1.7174E-06	1.7205E-05	5.4502E-05
418.90	0.00246	4.66121E-05	6.4035E-06	3.6943E-05	1.2810E-07	9.2693E-07	4.8363E-07	2.7673E-05	4.6612E-05
151.20	0.00230	4.46221E-05	1.6109E-05	3.4519E-05	1.1969E-07	8.6612E-07	4.5190E-07	2.3218E-05	4.4622E-05
1120.78	0.00200	4.81972E-05	2.3566E-05	3.9942E-05	8.2132E-08	6.1480E-06	1.3500E-06	1.1517E-05	4.8197E-05
572.41	0.00124	1.52261E-05	4.8419E-06	1.2415E-05	2.2687E-08	5.6607E-07	3.1922E-07	7.3373E-06	1.5226E-05
1142.71	0.00116	2.49602E-05	5.6833E-06	2.3197E-05	4.7700E-08	3.5706E-06	7.8406E-07	6.2644E-06	2.4960E-05
697.18	0.00096	2.61273E-05	1.0733E-05	1.9165E-05	3.9409E-08	2.9500E-06	6.4778E-07	1.3821E-05	2.6127E-05
1080.11	0.00098	2.08687E-05	4.8162E-06	1.9658E-05	4.0422E-08	3.0258E-06	6.6444E-07	4.0338E-06	2.0869E-05
909.72	0.00086	1.84407E-05	4.3249E-06	1.7300E-05	3.5573E-08	2.6628E-06	5.8472E-07	3.8275E-06	1.8441E-05
205.35	0.00088	1.04261E-05	5.4813E-06	8.8407E-06	9.1947E-08	4.5885E-07	3.3556E-08	5.3044E-07	1.0426E-05
171.23	0.00079	9.11065E-06	4.5660E-06	7.8725E-06	8.1877E-08	4.0860E-07	2.9881E-08	7.0852E-08	9.1107E-06
859.53	0.00070	1.48071E-05	2.6718E-06	1.4062E-05	2.8916E-08	2.1645E-06	4.7530E-07	3.0747E-06	1.4807E-05
0.00	0.00052	0.000970886	0.0000E+00	0.0000E+00	9.7089E-04	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	9.7089E-04

Distancia: 20 cm

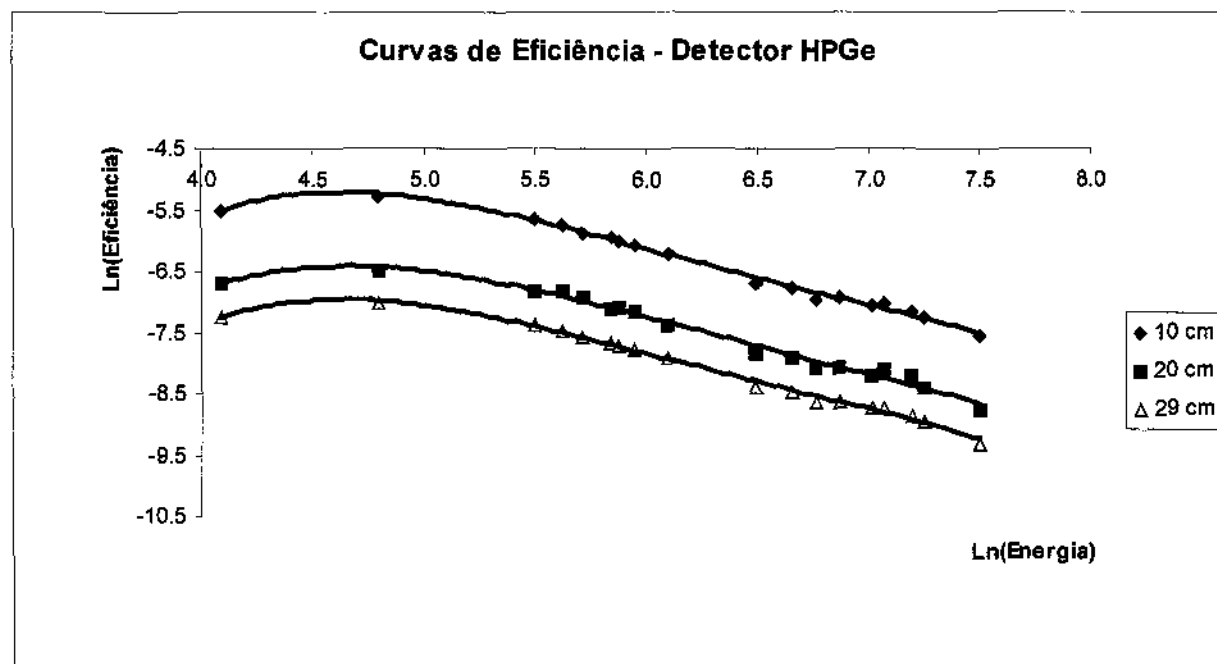
Isótopo	Energia (Kev)	% Gama	u (%Gama)	Atividade Inicial (kBq)	u (Ativ. Ini.)	T (1/2) (s)	u (T1/2)	T. de Contagem (T.C.) (s)	u (T.C.)	Atividade Atual (kBq)	Área Líquida (cont)
Eu-152	121.78	0.2837	0.00240	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	654590
Eu-152	244.69	0.0751	0.00060	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	126064
Ba-133	276.397	0.071	0.00100	321.4	4.821	332389440	96392.9376	3600	0.7057	87.79	24355
Ba-133	302.85	0.184	0.00221	321.4	4.821	332389440	96392.9376	3600	0.7057	87.79	57368
Eu-152	344.29	0.26	0.00176	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	328403
Ba-133	356	0.621	0.00698	321.4	4.821	332389440	96392.9376	3600	0.7057	87.79	164558
Ba-133	383.84	0.0891	0.00090	321.4	4.821	332389440	96392.9376	3600	0.7057	87.79	22020
Eu-152	443.979	0.03075	0.00018	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	29685
Cs-137	661.85	0.9	0.00532	345.4	3.454	946080000	946080	900	0.2309	218.93	69294
Eu-152	778.92	0.13	0.00070	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	74288
Eu-152	867.38	0.042	0.00061	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	19927
Eu-152	964.11	0.145	0.00060	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	70036
Eu-152	1112.07	0.136	0.00060	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	58358
Co-60	1173.24	0.999	0.00060	418.7	4.187	166226256	33245.2512	3600	0.1304	31.25	34212
Co-60	1332.5	1	0.00009	418.7	4.187	166226256	33245.2512	3600	0.1304	31.25	30755
Eu-152	1408	0.208	0.00091	399.6	7.992	420374880	1261124.64	10800	7.3008	143.21	72102
Mn-56	1810.7	0.272	0.00000	1420.41		9252		3000.00		1420.41	1.27E+04

u (Área Lq.)	u Eficiência	u (Eficiência)	u Efic.(Área Lq.)	u Efic.(Ativ. Ini.)	u Efic.(Tempo Decaimento)	u Efic.(T1/2)	u Efic.(T.C.)	u Efic.(%Gama)	u (Eficiência)
1047.34	0.00149	3.28224E-05	2.3869E-06	2.9836E-05	6.1352E-08	4.5926E-06	1.0085E-06	1.2621E-05	3.2822E-05
567.29	0.00109	2.41227E-05	4.8839E-06	2.1706E-05	4.4634E-08	3.3411E-06	7.3368E-07	8.6706E-06	2.4123E-05
272.78	0.00109	2.54322E-05	1.2157E-05	1.6282E-05	5.6456E-08	4.0852E-07	2.1279E-07	1.5287E-05	2.5432E-05
332.73	0.00099	1.98021E-05	5.7221E-06	1.4799E-05	5.1313E-08	3.7131E-07	1.9341E-07	1.1841E-05	1.9802E-05
689.65	0.00082	1.75193E-05	1.7150E-06	1.6333E-05	3.3586E-08	2.5141E-06	5.5206E-07	5.5304E-06	1.7519E-05
427.85	0.00084	1.58694E-05	2.1801E-06	1.2578E-05	4.3612E-08	3.1558E-07	1.6438E-07	9.4214E-06	1.5869E-05
154.14	0.00078	1.51633E-05	5.4741E-06	1.1730E-05	4.0674E-08	2.9432E-07	1.5331E-07	7.8898E-06	1.5163E-05
350.28	0.00062	1.50634E-05	7.3651E-06	1.2483E-05	2.5669E-08	1.9215E-06	4.2194E-07	3.5996E-06	1.5063E-05
270.25	0.00039	4.79236E-06	1.5240E-06	3.9076E-06	7.1405E-09	1.7817E-07	1.0023E-07	2.3094E-06	4.7924E-06
364.01	0.00037	7.95111E-06	1.8104E-06	7.3895E-06	1.5195E-08	1.1374E-06	2.4976E-07	1.9955E-06	7.9511E-06
223.18	0.00031	8.36394E-06	3.4357E-06	6.1352E-06	1.2616E-08	9.4436E-07	2.0737E-07	4.4244E-06	8.3639E-06
343.18	0.00031	6.63051E-06	1.5302E-06	6.2458E-06	1.2843E-08	9.6139E-07	2.1111E-07	1.2816E-06	6.6305E-06
291.79	0.00028	5.91485E-06	1.3872E-06	5.5488E-06	1.1410E-08	8.5409E-07	1.8755E-07	1.2277E-06	5.9148E-06
212.11	0.00030	3.58986E-06	1.8873E-06	3.0440E-06	3.1659E-08	1.5799E-07	1.1026E-08	1.8264E-07	3.5899E-06
178.38	0.00027	3.16361E-06	1.5855E-06	2.7337E-06	2.8431E-08	1.4188E-07	9.9020E-09	2.4603E-08	3.1636E-06
273.99	0.00022	4.71995E-06	8.5168E-07	4.4825E-06	9.2173E-09	6.8997E-07	1.5151E-07	9.8010E-07	4.7200E-06
0.00	0.00016	0.000293034	0.0000E+00	0.0000E+00	2.9303E-04	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	2.9303E-04

Distância: 29 cm

Isótopo	Energia (Kev)	% Gama	u (%Gama)	Atividade Inicial (kBq)	u (Ativ. Ini.)	T (1/2) (s)	u (T1/2)	T. de Contagem (T.C.) (s)	u (T.C.)	Atividade Atual (kBq)	Área Líquida (cont)
Am-241	59.537	0.359	0.00299	393.5	3.935	1.365E+10	17200512	1000	0.1010	381.26	97635
Eu-152	121.78	0.2837	0.00240	399.6	7.992	420374880	1261124.64	53701	36.3019	143.21	1932636
Eu-152	244.69	0.0751	0.00060	399.6	7.992	420374880	1261124.64	53701	36.3019	143.21	357600
Ba-133	276.397	0.071	0.00100	321.4	4.821	332389440	96392.9376	18000	3.5280	87.79	64047
Ba-133	302.85	0.184	0.00221	321.4	4.821	332389440	96392.9376	18000	3.5280	87.79	148002
Eu-152	344.29	0.26	0.00176	399.6	7.992	420374880	1261124.64	53701	36.3019	143.21	935121
Ba-133	356	0.621	0.00698	321.4	4.821	332389440	96392.9376	18000	3.5280	87.79	434816
Ba-133	383.84	0.0891	0.00090	321.4	4.821	332389440	96392.9376	18000	3.5280	87.79	58088
Eu-152	443.979	0.03075	0.00018	399.6	7.992	420374880	1261124.64	53701	36.3019	143.21	86816
Cs-137	661.85	0.9	0.00532	345.4	3.454	946080000	946080	1500	0.3843	218.93	66320
Eu-152	778.92	0.13	0.00070	399.6	7.992	420374880	1261124.64	53701	36.3019	143.21	213311
Eu-152	867.38	0.042	0.00061	399.6	7.992	420374880	1261124.64	53701	36.3019	143.21	58586
Eu-152	964.11	0.145	0.00060	399.6	7.992	420374880	1261124.64	53701	36.3019	143.21	200553
Eu-152	1112.07	0.136	0.00060	399.6	7.992	420374880	1261124.64	53701	36.3019	143.21	167693
Co-60	1173.24	0.999	0.00060	418.7	4.187	166226256	33245.2512	10800	0.3891	31.25	54618
Co-60	1332.5	1	0.00009	418.7	4.187	166226256	33245.2512	10800	0.3891	31.25	48475
Eu-152	1408	0.208	0.00091	399.6	7.992	420374880	1261124.64	53701	36.3019	143.21	207795
Mn-56	1810.7	0.272	0.00000	6438.01		9252		3001.10		6438.01	1.00E+04

u (Área Lq.)	Eficiência	u (Eficiência)	u Efic.(Área Lq.)	u Efic.(Ativ. Ini.)	u Efic.(Tempo Decaimento)	u Efic.(T1/2)	u Efic.(T.C.)	u Efic.(%Gama)	u (Eficiência)
351.49	0.00071	9.63419E-06	2.5680E-06	7.1333E-06	9.0337E-10	2.8402E-08	7.2072E-08	5.9442E-06	9.6342E-06
3092.22	0.00089	1.94891E-05	1.4173E-06	1.7716E-05	3.6429E-08	2.7269E-06	5.9881E-07	7.4939E-06	1.9489E-05
1609.20	0.00062	1.37618E-05	2.7862E-06	1.2383E-05	2.5463E-08	1.9061E-06	4.1856E-07	4.9465E-06	1.3762E-05
717.33	0.00057	1.3376E-05	6.3939E-06	8.5632E-06	2.9693E-08	2.1486E-07	1.1189E-07	8.0403E-06	1.3376E-05
858.41	0.00051	1.02174E-05	2.9525E-06	7.6357E-06	2.6476E-08	1.9158E-07	9.9774E-08	6.1096E-06	1.0217E-05
1963.75	0.00047	1.00327E-05	9.8211E-07	9.3535E-06	1.9233E-08	1.4397E-06	3.1615E-07	3.1671E-06	1.0033E-05
1130.52	0.00044	8.38642E-06	1.1521E-06	6.6468E-06	2.3047E-08	1.6677E-07	8.6852E-08	4.9789E-06	8.3864E-06
406.62	0.00041	8.00003E-06	2.8881E-06	6.1888E-06	2.1459E-08	1.5528E-07	8.0868E-08	4.1626E-06	8.0000E-06
1024.43	0.00037	8.85985E-06	4.3320E-06	7.3423E-06	1.5098E-08	1.1302E-06	2.4817E-07	2.1172E-06	8.8599E-06
258.65	0.00022	2.75201E-06	8.7513E-07	2.2439E-06	4.1004E-09	1.0231E-07	5.7485E-08	1.3262E-06	2.7520E-06
1045.22	0.00021	4.5916E-06	1.0455E-06	4.2673E-06	8.7747E-09	6.5683E-07	1.4423E-07	1.1524E-06	4.5916E-06
656.16	0.00018	4.94543E-06	2.0315E-06	3.6276E-06	7.4594E-09	5.5838E-07	1.2261E-07	2.6161E-06	4.9454E-06
982.71	0.00018	3.81853E-06	8.8126E-07	3.5970E-06	7.3964E-09	5.5366E-07	1.2158E-07	7.3810E-07	3.8185E-06
838.47	0.00016	3.41821E-06	8.0167E-07	3.2067E-06	6.5938E-09	4.9358E-07	1.0839E-07	7.0948E-07	3.4182E-06
338.63	0.00016	1.91035E-06	1.0043E-06	1.6199E-06	1.6847E-08	8.4074E-08	5.8355E-09	9.7192E-08	1.9104E-06
281.16	0.00014	1.66213E-06	8.3302E-07	1.4362E-06	1.4937E-08	7.4543E-08	5.1740E-09	1.2926E-08	1.6621E-06
789.62	0.00013	2.73569E-06	4.9363E-07	2.5981E-06	5.3423E-09	3.9991E-07	8.7815E-08	5.6807E-07	2.7357E-06
0.00	0.00009	0.000169794	0.0000E+00	0.0000E+00	1.6979E-04	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	1.6979E-04



$$\text{Ln}(E_f-10\text{cm}) = -0,0425 \cdot \text{Ln}(\text{Ene})^4 + 1,1108 \cdot \text{Ln}(\text{Ene})^3 - 10,8001 \cdot \text{Ln}(\text{Ene})^2 + 45,4708 \cdot \text{Ln}(\text{Ene}) - 74,8998$$

$$R^2 = 0,995168$$

$$\text{Ln}(E_f-20\text{cm}) = -0,0304 \cdot \text{Ln}(\text{ENE})^4 + 0,8141 \cdot \text{Ln}(\text{ENE})^3 - 8,1502 \cdot \text{Ln}(\text{EnE})^2 + 35,2253 \cdot \text{Ln}(\text{Ene}) - 61,6180$$

$$R^2 = 0,9852$$

$$\text{Ln}(E_f-29\text{cm}) = -0,0469 \cdot \text{Ln}(\text{Ene})^4 + 1,1969 \cdot \text{Ln}(\text{Ene})^3 - 11,4155 \cdot \text{Ln}(\text{Ene})^2 + 47,3613 \cdot \text{Ln}(\text{Ene}) - 78,7617$$

$$R^2 = 0,9946$$

ANEXOS

Anexo 2 – Planilha de cálculo dos parâmetros em uma das experiências na mesa.

PLANILHA DE CÁLCULO DOS PARÂMETROS NA MESA: TERCEIRA EXPERIÊNCIA (MESA PARADA)

Irradiação: Tempo 4:00 h
 Potência: 100kW
 Contagem: Tempo: 10800 s
 Geometria: 20 cm

Materiais:
 Massa de Lu: 40 Ug
 Massa de Au: 6 Ug.
 Massa de Zr: 600 mg

Posição	Isotopo	Energia (keV)	Área (cont)	T. C. (s)	T. R. (s)	T.D. (s)	Lambda	S	D	C	W (g)	Tesp	Efic.
1	Lu-177	208.36	140952	10800	10988.5	327562	1.19553E-06	0.016	0.676	0.993	4.00E-05	3.05E+07	0.001359
	Au-198	411.8	177671	10800	10988.5	327562	2.97682E-06	0.039	0.377	0.984	6.00E-06	1.88E+08	0.000710
	Zr-95	724.2	75067	10800	10988.5	327562	1.25E-07	0.002	0.960	0.999	6.00E-01	7.18E+03	0.000414
	Zr-97	743.32	173458	10800	10988.5	327562	1.15E-05	0.141	0.023	0.939	6.00E-01	8.60E+03	0.000406
	Zr-95	756.73	93975	10800	10988.5	327562	1.25E-07	0.002	0.960	0.999	6.00E-01	8.99E+03	0.000401
6	Lu-177	208.36	143807	10800	10981.2	345978	1.19553E-06	0.016	0.661	0.993	4.00E-05	3.18E+07	0.001359
	Au-198	411.8	178934	10800	10981.2	345978	2.97682E-06	0.039	0.357	0.984	6.00E-06	2.01E+08	0.000710
	Zr-95	724.2	77245	10800	10981.2	345978	1.25E-07	0.002	0.958	0.999	6.00E-01	7.41E+03	0.000414
	Zr-97	743.32	153147	10800	10981.2	345978	1.15E-05	0.141	0.019	0.939	6.00E-01	9.39E+03	0.000406
	Zr-95	756.73	95910	10800	10981.2	345978	1.25E-07	0.002	0.958	0.999	6.00E-01	9.20E+03	0.000401
11	Lu-177	208.36	143478	10800	10974.4	359808	1.19553E-06	0.016	0.650	0.993	4.00E-05	3.23E+07	0.001359
	Au-198	411.8	173199	10800	10974.4	359808	2.97682E-06	0.039	0.343	0.984	6.00E-06	2.03E+08	0.000710
	Zr-95	724.2	79393	10800	10974.4	359808	1.25E-07	0.002	0.956	0.999	6.00E-01	7.64E+03	0.000414
	Zr-97	743.32	140289	10800	10974.4	359808	1.15E-05	0.141	0.016	0.939	6.00E-01	1.01E+04	0.000406
	Zr-95	756.73	98776	10800	10974.4	359808	1.25E-07	0.002	0.956	0.999	6.00E-01	9.50E+03	0.000401

K0	sigma 0	lo	Er	alfa	Qo	Qo(alfa)	lo(alfa)	so	so (alfa)	a	b	eq	num f	den f
-	2.10E-21	-	0					1.67000	1.77781	1.1284	1.1940	-3.29E-04	19.60	0.8423
1	9.87E-23	1.55E-21	6		15.71	14.81964	1.55E-21	17.24282	16.25961					
9.32E-05	5.30E-26	2.87E-25	6260	0.029	5.05	3.84567	2.68E-25	5.21431	3.87681					
1.30E-05	2.13E-26	5.28E-24	338		248	203.62562	5.28E-24	279.35371	229.30408					
1.15E-04	5.30E-26	2.87E-25	6260		5.05	3.84567	2.68E-25	5.21431	3.87681					
-	2.10E-21	-	0					1.67000	1.75158	1.1262	1.1882	-6.24E-05	20.21	0.9061
1	9.87E-23	1.55E-21	6		15.71	15.02637	1.55E-21	17.24282	16.48805					
9.32E-05	5.30E-26	2.87E-25	6260	0.035	5.05	4.10066	2.68E-25	5.21431	4.15971					
1.30E-05	2.13E-26	5.28E-24	338		248	213.39099	5.28E-24	279.35371	240.31829					
1.15E-04	5.30E-26	2.87E-25	6260		5.05	4.10066	2.68E-25	5.21431	4.15971					
-	2.10E-21	-	0					1.67000	1.69191	1.1206	1.1748	-9.98E-05	22.15	0.9479
1	9.87E-23	1.55E-21	6		15.71	15.52005	1.55E-21	17.24282	17.03320					
9.32E-05	5.30E-26	2.87E-25	6260	0.039	5.05	4.76912	2.68E-25	5.21431	4.90208					
1.30E-05	2.13E-26	5.28E-24	338		248	238.01996	5.28E-24	279.35371	268.09718					
1.15E-04	5.30E-26	2.87E-25	6260		5.05	4.76912	2.68E-25	5.21431	4.90208					

f	R Cd	PM (g)	% gama	ab. Isotópica	R	Fluxo térmico (n.cm ⁻² .s ⁻¹)	Fluxo epitérmico (n.cm ⁻² .s ⁻¹)	Índice Espectral	R2	relação	gLu
23.27	2.57	174.97	0.11	0.0259	2.29033E-09	5.50E+11	2.36E+10	0.0374	6.57E+35	1.00E+00	1.8374
		196.97	0.9556	1	9.08937E-11				5.55E+35	1.18E+00	
		91.22	0.442	1.74E-01	3.41831E-14				3.88E+35	1.69E+00	
		91.22	0.979	0.028	1.17058E-13				3.31E+36	1.98E-01	
		91.22	0.548	0.1738	3.56992E-14				4.05E+35	1.62E+00	
22.31	2.48	174.97	0.11	0.0259	2.39032E-09	5.76E+11	2.58E+10	0.0390	6.85E+35	9.58E-01	1.7314
		196.97	0.9556	1	9.67615E-11				5.90E+35	1.11E+00	
		91.22	0.442	1.74E-01	3.52796E-14				4.01E+35	1.64E+00	
		91.22	0.979	0.028	1.27812E-13				3.61E+36	1.82E-01	
		91.22	0.548	0.1738	3.65427E-14				4.15E+35	1.58E+00	
23.37	2.51	174.97	0.11	0.0259	2.4261E-09	5.92E+11	2.53E+10	0.0373	6.95E+35	9.44E-01	1.7375
		196.97	0.9556	1	9.76561E-11				5.96E+35	1.10E+00	
		91.22	0.442	1.74E-01	3.6346E-14				4.13E+35	1.59E+00	
		91.22	0.979	0.028	1.37347E-13				3.88E+36	1.69E-01	
		91.22	0.548	0.1738	3.77233E-14				4.28E+35	1.53E+00	

Capítulo VII

Posição	Isotopo	Energia (keV)	Área (cont)	T. C. (s)	T. R. (s)	T.D. (s)	Lambda	S	D	C	W (g)	Tesp	Eff
16	Lu-177	208.36	139468	10800	10955.4	371527	1.19553E-06	0.016	0.641	0.993	4.00E-05	3.19E+07	0.001359
	Au-198	411.8	159200	10800	10955.5	371527	2.97682E-06	0.039	0.331	0.984	6.00E-06	1.93E+08	0.000710
	Zr-95	724.2	77365	10800	10955.6	371527	1.25E-07	0.002	0.955	0.999	6.00E-01	7.47E+03	0.000414
	Zr-97	743.32	109782	10800	10955.7	371527	1.15E-05	0.141	0.014	0.940	6.00E-01	9.05E+03	0.000406
	Zr-95	756.73	96606	10800	10955.8	371527	1.25E-07	0.002	0.955	0.999	6.00E-01	9.32E+03	0.000401
21	Lu-177	208.36	131046	10800	10922.4	422435	1.19553E-06	0.016	0.603	0.993	4.00E-05	3.20E+07	0.001359
	Au-198	411.8	137229	10800	10922.5	422435	2.97682E-06	0.039	0.284	0.984	6.00E-06	1.94E+08	0.000710
	Zr-95	724.2	76751	10800	10922.6	422435	1.25E-07	0.002	0.948	0.999	6.00E-01	7.48E+03	0.000414
	Zr-97	743.32	58387	10800	10922.7	422435	1.15E-05	0.141	0.008	0.940	6.00E-01	8.67E+03	0.000406
	Zr-95	756.73	95172	10800	10922.8	422435	1.25E-07	0.002	0.948	0.999	6.00E-01	9.27E+03	0.000401
26	Lu-177	208.36	137192	10800	10921.2	433417	1.19553E-06	0.016	0.596	0.994	4.00E-05	3.39E+07	0.001359
	Au-198	411.8	137284	10800	10921.3	433417	2.97682E-06	0.039	0.275	0.984	6.00E-06	2.01E+08	0.000710
	Zr-95	724.2	78490	10800	10921.4	433417	1.25E-07	0.002	0.947	0.999	6.00E-01	7.66E+03	0.000414
	Zr-97	743.32	54733	10800	10921.5	433417	1.15E-05	0.141	0.007	0.940	6.00E-01	9.22E+03	0.000406
	Zr-95	756.73	97283	10800	10921.6	433417	1.25E-07	0.002	0.947	0.999	6.00E-01	9.49E+03	0.000401
31	Lu-177	208.36	488144	43520	43925	458264	1.19553E-06	0.016	0.578	0.974	4.00E-05	3.15E+07	0.001359
	Au-198	411.8	482758	43520	43925	458264	2.97682E-06	0.039	0.256	0.937	6.00E-06	1.98E+08	0.000710
	Zr-95	724.2	309918	43520	43925	458264	1.25E-07	0.002	0.944	0.997	6.00E-01	7.56E+03	0.000414
	Zr-97	743.32	134488	43520	43925	458264	1.15E-05	0.141	0.005	0.785	6.00E-01	8.98E+03	0.000406
	Zr-95	756.73	388501	43520	43925	458264	1.25E-07	0.002	0.944	0.997	6.00E-01	9.47E+03	0.000401
36	Lu-177	208.36	124883	11201	11296	502301	1.19553E-06	0.016	0.549	0.993	4.00E-05	3.24E+07	0.001359
	Au-198	411.8	110090	11201	11296	502301	2.97682E-06	0.039	0.224	0.983	6.00E-06	1.91E+08	0.000710
	Zr-95	724.2	76600	11201	11296	502301	1.25E-07	0.002	0.939	0.999	6.00E-01	7.29E+03	0.000414
	Zr-97	743.32	23927	11201	11296	502301	1.15E-05	0.141	0.003	0.938	6.00E-01	8.63E+03	0.000406
	Zr-95	756.73	95990	11201	11296	502301	1.25E-07	0.002	0.939	0.999	6.00E-01	9.13E+03	0.000401

K0	sigma 0	lo	Er	alfa	Qo	Qo(alfa)	lo(alfa)	so	so (alfa)	a	b	eq	num f	den f
-	2.10E-21	-	0					1.67000	1.68892	1.1335	1.1879	-1.55E-04	22.70	0.8567
1	9.87E-23	1.55E-21	6		15.71	15.54564	1.55E-21	17.24282	17.06145					
9.32E-05	5.30E-26	2.87E-25	6260	0.029	5.05	4.80616	2.68E-25	5.21431	4.94326					
1.30E-05	2.13E-26	5.28E-24	338		248	239.34791	5.28E-24	279.35371	269.59497					
1.15E-04	5.30E-26	2.87E-25	6260		5.05	4.80616	2.68E-25	5.21431	4.94326	1.1393	1.1992	-7.11E-06	21.33	0.8209
-	2.10E-21	-	0					1.67000	1.72981					
1	9.87E-23	1.55E-21	6		15.71	15.20260	1.55E-21	17.24282	16.68271					
9.32E-05	5.30E-26	2.87E-25	6260	0.038	5.05	4.32940	2.68E-25	5.21431	4.41363					
1.30E-05	2.13E-26	5.28E-24	338		248	221.96873	5.28E-24	279.35371	249.99302	1.1333	1.1925	-4.39E-06	21.29	0.8575
1.15E-04	5.30E-26	2.87E-25	6260		5.05	4.32940	2.68E-25	5.21431	4.41363					
-	2.10E-21	-	0					1.67000	1.72639					
1	9.87E-23	1.55E-21	6		15.71	15.23067	1.55E-21	17.24282	16.71371					
9.32E-05	5.30E-26	2.87E-25	6260	0.039	5.05	4.36684	2.68E-25	5.21431	4.45519	1.1372	1.1960	-2.25E-06	21.55	0.8332
1.30E-05	2.13E-26	5.28E-24	338		248	223.35693	5.28E-24	279.35371	251.55877					
1.15E-04	5.30E-26	2.87E-25	6260		5.05	4.36684	2.68E-25	5.21431	4.45519					
-	2.10E-21	-	0					1.67000	1.72220					
1	9.87E-23	1.55E-21	6		15.71	15.26523	1.55E-21	17.24282	16.75187	1.1377	1.1967	-2.62E-06	21.53	0.8303
9.32E-05	5.30E-26	2.87E-25	6260	0.032	5.05	4.41329	2.68E-25	5.21431	4.50678					
1.30E-05	2.13E-26	5.28E-24	338		248	225.07395	5.28E-24	279.35371	253.49538					
1.15E-04	5.30E-26	2.87E-25	6260		5.05	4.41329	2.68E-25	5.21431	4.50678					
-	2.10E-21	-	0					1.67000	1.72310	1.1377	1.1967	-2.62E-06	21.53	0.8303
1	9.87E-23	1.55E-21	6		15.71	15.25780	1.55E-21	17.24282	16.74367					
9.32E-05	5.30E-26	2.87E-25	6260	0.031	5.05	4.40327	2.68E-25	5.21431	4.49566					
1.30E-05	2.13E-26	5.28E-24	338		248	224.70415	5.28E-24	279.35371	253.07829					
1.15E-04	5.30E-26	2.87E-25	6260		5.05	4.40327	2.68E-25	5.21431	4.49566					

f	R Cd	M (g)	% gama	ab. Isotópica	R	Fluxo térmico (n.cm ⁻² .s ⁻¹)	Fluxo epitérmico (n.cm ⁻² .s ⁻¹)	Índice Espectral	R2	relação	gLu
26.50	2.70	174.97	0.11	0.0259	2.39569E-09	5.93E+11	2.24E+10	0.0329	6.87E+35	9.56E-01	1.8268
		196.97	0.9556	1	9.31074E-11				5.68E+35	1.16E+00	
		91.22	0.442	1.74E-01	3.55305E-14				4.04E+35	1.63E+00	
		91.22	0.979	0.028	1.23184E-13				3.48E+36	1.89E-01	
		91.22	0.548	0.1738	3.70114E-14				4.20E+35	1.56E+00	
25.98	2.71	174.97	0.11	0.0259	2.39946E-09	5.92E+11	2.28E+10	0.0336	6.88E+35	9.55E-01	1.7992
		196.97	0.9556	1	9.36679E-11				5.72E+35	1.15E+00	
		91.22	0.442	1.74E-01	3.55812E-14				4.04E+35	1.62E+00	
		91.22	0.979	0.028	1.1799E-13				3.33E+36	1.97E-01	
		91.22	0.548	0.1738	3.68061E-14				4.18E+35	1.57E+00	
24.83	2.63	174.97	0.11	0.0259	2.54547E-09	6.01E+11	2.42E+10	0.0351	7.30E+35	9.00E-01	1.7396
		196.97	0.9556	1	9.68299E-11				5.91E+35	1.11E+00	
		91.22	0.442	1.74E-01	3.64415E-14				4.14E+35	1.59E+00	
		91.22	0.979	0.028	1.25509E-13				3.55E+36	1.85E-01	
		91.22	0.548	0.1738	3.76785E-14				4.28E+35	1.53E+00	
25.86	2.69	174.97	0.11	0.0259	2.36574E-09	6.03E+11	2.33E+10	0.0337	6.78E+35	9.68E-01	1.7628
		196.97	0.9556	1	9.56859E-11				5.84E+35	1.12E+00	
		91.22	0.442	1.74E-01	3.5862E-14				4.08E+35	1.61E+00	
		91.22	0.979	0.028	1.22148E-13				3.45E+36	1.90E-01	
		91.22	0.548	0.1738	3.76074E-14				4.27E+35	1.54E+00	
25.93	2.70	174.97	0.11	0.0259	2.43304E-09	5.82E+11	2.24E+10	0.0336	6.97E+35	9.41E-01	1.8313
		196.97	0.9556	1	9.22109E-11				5.63E+35	1.17E+00	
		91.22	0.442	1.74E-01	3.46835E-14				3.94E+35	1.67E+00	
		91.22	0.979	0.028	1.17396E-13				3.32E+36	1.98E-01	
		91.22	0.548	0.1738	3.62579E-14				4.12E+35	1.59E+00	

Alfa	a	b	f	Razão de Cd	Fluxo térmico (n.cm ⁻² .s ⁻¹)	Fluxo epitérmico (n.cm ⁻² .s ⁻¹)	Índice Espectral	gLu	
0.029	1.1284	1.1940	23.27	2.57	5.50E+11	2.36E+10	0.0374	1.8374	
0.035	1.1262	1.1882	22.31	2.48	5.76E+11	2.58E+10	0.0390	1.7314	
0.039	1.1206	1.1748	23.37	2.51	5.92E+11	2.53E+10	0.0373	1.7375	
0.029	1.1335	1.1879	26.50	2.70	5.93E+11	2.24E+10	0.0329	1.8268	
0.038	1.1393	1.1992	25.98	2.71	5.92E+11	2.28E+10	0.0336	1.7992	
0.039	1.1333	1.1925	24.83	2.63	6.01E+11	2.42E+10	0.0351	1.7396	
0.032	1.1372	1.1960	25.86	2.69	6.03E+11	2.33E+10	0.0337	1.7628	
0.031	1.1377	1.1967	25.93	2.70	5.82E+11	2.24E+10	0.0336	1.8313	
0.034	1.1320	1.1912	24.76	2.62	5.86E+11	2.37E+10	0.035325	1.7832	Média
0.004	0.0065	0.0077	1.57	0.09	1.72E+10	1.29E+09	0.002268	0.0455	Desvio