

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

**APLICAÇÃO DO MÉTODO k_0 -INAA NO LABORATÓRIO DE
ANÁLISE POR ATIVAÇÃO COM NÊUTRONS DO IPEN
UTILIZANDO O PROGRAMA k_0 -IAEA. ANÁLISE DE AMOSTRAS
BIOLÓGICAS**

DANIEL CORRÊA PUERTA

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

Orientadora:

Dra. Ana Maria Graciano Figueiredo

SÃO PAULO

2013

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

**APLICAÇÃO DO MÉTODO k_0 -INAA NO LABORATÓRIO DE
ANÁLISE POR ATIVAÇÃO COM NÊUTRONS DO IPEN
UTILIZANDO O PROGRAMA k_0 -IAEA. ANÁLISE DE AMOSTRAS
BIOLÓGICAS**

DANIEL CORRÊA PUERTA

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

Orientadora:

Dra. Ana Maria Graciano Figueiredo

SÃO PAULO
2013

*Ao meu filho Eduardo Frederico;
Aos meus pais Antonio e Lucia;
À minha namorada Vanessa*

DEDICO

AGRADECIMENTOS

À minha orientadora Dra. Ana Maria Graciano Figueiredo, pela paciência, amizade, confiança e pela inestimável e valiosa orientação durante toda a execução e elaboração das etapas desse trabalho.

Aos Co-orientadores Dr. Guilherme Soares Zahn e Dr. Renato Semmler, por toda ajuda concebida tanto na parte experimental como na teórica e também pela amizade.

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq), pela bolsa de mestrado que foi de suma importância para realização dessa pesquisa.

Ao Instituto de Pesquisas Energética e Nucleares (IPEN) e Universidade de São Paulo (USP), pela oportunidade concedida para execução desse trabalho.

À minha namorada Vanessa, mulher única, que através de seu amor e carinho, sempre me incentivou para realização desse trabalho.

Aos meus pais Antonio e Lucia, pelo amor e valores morais, pela dedicação, esforço e sacrifício no auxílio da minha formação.

Ao meu filho Eduardo Frederico, que por algumas vezes estive ausente em virtude desse trabalho.

À Regina Beck e à Dra. Mitiko Saiki, por toda ajuda no Laboratório de Análise por Ativação com Nêutrons.

Aos funcionários e colegas de trabalho do Laboratório de Análise por Ativação com Nêutrons do IPEN, em especial ao Davi que me repassou seu conhecimento adquirido no seu trabalho de mestrado e ao Rafael que sempre quando necessário me ajudou na parte experimental e nas disciplinas assistidas durante o curso.

APLICAÇÃO DO MÉTODO k_0 -INAA NO LABORATÓRIO DE ANÁLISE POR ATIVAÇÃO COM NÊUTRONS DO IPEN UTILIZANDO O PROGRAMA k_0 -IAEA. ANÁLISE DE AMOSTRAS BIOLÓGICAS

Daniel Corrêa Puerta

RESUMO

Este estudo apresenta os resultados obtidos na aplicação do método de padronização k_0 -INAA no LAN-IPEN, para a análise de amostras biológicas, utilizando o programa k_0 -IAEA, fornecido pela Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA). Os parâmetros de fluxo f e α do reator IEA-R1 do IPEN foram determinados na estação pneumática de irradiação e na posição de irradiação 24B/prateleira2, para irradiações curtas e longas, respectivamente. Para obter esses fatores, foi utilizado o chamado método *bare triple-monitor* com ^{197}Au - ^{96}Zr - ^{94}Zr . Para a verificação da precisão e exatidão do método, foram analisados os materiais biológicos de referência Peach Leaves (NIST SRM 1547), Mixed Polish Herbs (INCT-MPH-2) e Tomato Leaves (NIST SRM 1573a). Os critérios estatísticos Erro Relativo (*bias*, %), Coeficiente de Variação (CV) e *U-score* foram aplicados para avaliação dos resultados obtidos (média de seis replicatas). Os erros relativos (*bias*, %) ficaram, para maioria dos elementos, entre 0 e 30%, em relação aos valores certificados. Os Coeficientes de Variação foram inferiores a 20%, mostrando boa reprodutibilidade nos resultados obtidos experimentalmente. Os valores de *U-score* mostraram que todos os resultados, com exceção do valor para Na no Peach Leaves e no Tomato Leaves, estão dentro de um intervalo de confiança de 95%. Estes resultados apontam para uma promissora utilização do método k_0 -INAA no LAN-IPEN para a análise de amostras biológicas.

k_0 -INAA APPLICATION AT IPEN NEUTRON ACTIVATION LABORATORY BY USING THE K0-IAEA PROGRAM. BIOLOGICAL SAMPLE ANALYSIS

Daniel Corrêa Puerta

ABSTRACT

The results obtained in the application of the k_0 -standardization method at LAN-IPEN for biological matrices analysis, by using the k_0 -IAEA software, provided by the International Atomic Energy Agency (IAEA), are presented. The flux parameters f and α of the IEA-R1 reactor were determined for the pneumatic irradiation facility and for one selected irradiation position, 24B/shelf2, for short and long irradiations, respectively. In order to obtain these parameters, the bare triple-monitor method with ^{197}Au - ^{96}Zr - ^{94}Zr was used. In order to evaluate the accuracy and precision of the methodology, the biological reference materials Peach Leaves (NIST SRM 1547), Mixed Polish Herbs (INCT-MPH-2) e Tomato Leaves (NIST SRM 1573a) were analyzed. The statistical criteria Relative Errors (bias, %), Coefficient of Variation (CV) and *U-score* were applied to the obtained results (mean of six replicates). The relative errors (bias, %) in relation to certified values, were, for most elements, in the range of 0 e 30. The Coefficients of Variation were below 20%, showing a good reproducibility of the results. The *U-score* test showed that all results, except Na in Peach Leaves and in Tomato Leaves, were within 95% confidence interval. These results point out to a promising use of the k_0 -INAA method at LAN-IPEN for biological sample analysis.

SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO	1
1.1 Objetivo do Trabalho	6
2. FUNDAMENTOS TEÓRICOS.....	7
2.1 Interação da radiação gama com a matéria	7
2.1.1 Efeito fotoelétrico	7
2.1.2 O espalhamento Compton	9
2.1.3 Produção de pares	10
2.2 Interação do nêutron com a matéria	11
2.2.1 Secção de choque.....	12
2.3 O método de análise por ativação neutrônica	14
2.3.1 Método comparativo em análise por ativação neutrônica	17
2.4 Validação de métodos analíticos.....	18
3. MÉTODO k_0-INAA	20
3.1 Espectro de energia dos nêutrons do reator	23
3.2 Convenções utilizadas no cálculo da taxa de reação.....	26
3.2.1 Convenção de Westcott	26
3.2.2 Convenção de Högdal.....	29
3.3 Comparadores e parâmetros de fluxo	31
3.3.1 Estratégias na caracterização das instalações de irradiação – escolha do comparador.....	32
3.4 Determinação do parâmetro f	32
3.5 Determinação do parâmetro α	34
3.5.1 Método de razão de cádmio em multimonitores.....	35
3.5.2 Método de multimonitores cobertos com cádmio	35
3.5.3 Método dos três monitores descobertos	36
3.6 O programa k_0 -IAEA.....	37
4. MATERIAIS E MÉTODOS.....	40
4.1 Determinação das curvas de eficiência de detecção dos raios gama em detector de Ge hiperpuro.	40
4.2 Descrição do reator nuclear IEA-R1	45
4.2.1 Estação Pneumática de Irradiação.....	48
4.3 Determinação dos parâmetros de fluxo.....	51

4.4 Análise dos materiais de referência	55
4.5 Avaliação estatística dos resultados obtidos para os materiais de referencia.	58
4.5.1 <i>Erro relativo (bias,%), coeficiente de variação (CV) e teste U-score...</i>	58
5. RESULTADOS E DISCUSSÃO	62
5.1 Valores de f e α para as posições de irradiação utilizadas	62
5.2 Avaliação estatísticas dos resultados	64
6. CONCLUSÕES.....	70
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	72
ANEXO 1 – ROTEIRO: UTILIZAÇÃO DO PROGRAMA k_0-IAEA.....	80
ANEXO 2 – VÍDEO: UTILIZAÇÃO DO PROGRAMA k_0-IAEA.....	190

LISTA DE TABELAS

Tabela 3.1 - Dados nucleares dos radionuclídeos mais importantes usados como monitores para determinação dos parâmetros α e f	34
Tabela 4.1 - Dimensões do sistema de espectrometria gama Canberra3.....	43
Tabela 4.2 - Posição e tempo de contagem das fontes para calibração.....	44
Tabela 4.3 - Distância da fonte até o cristal nas diversas prateleiras do detector.....	44
Tabela 4.4 - Dados nucleares usados na caracterização do fluxo de nêutrons ...	52
Tabela 4.5 - Concentração dos monitores para irradiação na estação pneumática.....	53
Tabela 4.6 - Concentração dos monitores para irradiação na posição 24B/Prateleira 2.....	53
Tabela 4.7 - Condições de contagem dos elementos irradiados na estação pneumática.....	57
Tabela 4.8 - Condições de contagem dos elementos irradiados na posição 24B/prateleira 2	57
Tabela 4.9 – Valores de Horwitz para diferentes faixas de concentração.....	59
Tabela 5.1 – Dados nucleares da posição de irradiação de Estação Pneumática. Reator a potência crítica de 4,5MW. Obtidos com o programa k_0 -IAEA.....	62
Tabela 5.2 – Dados nucleares da posição de irradiação de Estação Pneumática. Reator a potência crítica de 4,5MW. Valores obtidos com o programa Kayzero for Windows.....	63
Tabela 5.3 - Dados nucleares da posição de irradiação da posição 24B prateleira 2. Reator a potência crítica de 4,5MW. Valores obtidos com o programa k_0 -IAEA.....	63
Tabela 5.4 – Valores médios de concentração obtidos para 6 determinações (N=6), para o material de referência SRM 1547 Peach Leaves.....	67
Tabela 5.5 - Valores médios de concentração obtidos para 6 determinações (N=6), para o material de referência INCT-MPH-2 Mixed Polish Herbs.....	68

Tabela 5.6 - Valores médios de concentração obtidos para 6 determinações (N=6), para o material de referência SRM 1573a Tomato Leaves.....	69
---	----

LISTA DE FIGURAS

Figura 2.1 - Diagrama esquemático do espalhamento Compton.....	9
Figura 2.2 – Produção de pares.....	11
Figura 2.3 – Reação nuclear do tipo (n,γ).....	15
Figura 3.1 - Distribuição do fluxo de nêutrons de um reator nuclear, $\phi(E)$ versus E, em escala log-log.....	23
Figura 4.1 - Sistema de espectrometria gama (Canberra 3).....	41
Figura 4.2 - Suporte utilizado nas medidas com diferentes posições/prateleiras de contagem.....	41
Figura 4.3 – Dimensões (mm) do suporte das prateleiras.....	42
Figura 4.4 - Porta amostras de lucite com degrau em mm.....	42
Figura 4.5 - Dimensões do detector.....	43
Figura 4.6 - Dimensões do sistema Canberra3 no programa do k_0 -IAEA	44
Figura 4.7 - Curva de eficiência para o sistema de espectrometria gama Canberra 3 (94,8 mm do detector) pelo programa k_0 -IAEA.....	45
Figura 4.8 - Reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP.....	47
Figura 4.9 - Recipiente de irradiação utilizado na para irradiações longas no núcleo do reator IEA-R1	47
Figura 4.10 - Mapa da configuração do núcleo do reator IEA-R1.....	48
Figura 4.11 - Sistema pneumático de irradiação de amostras no reator IEA-R1..	49
Figura 4.12 - Recipiente de irradiação utilizado na estação pneumática do reator IEA-R1.....	50
Figura 4.13 - Sequência para obter o “sanduíche” irradiado na estação pneumática do reator IEA-R1	50
Figura 4.14 - Vista interna do recipiente de aluminio com as amostras biológicas e os monitores de ouro.....	51

Figura 4.15 - Monitores de Au+Zr da estação pneumática cadastrados na base de dados permanente do programa k_0 -IAEA.....	54
Figura 4.16 - Monitores de Au+Zr da posição 24B/prateleira 2 cadastrados na base de dados permanente do programa k_0 -IAEA.....	54
Figura 4.17 - Materiais certificados biológicos e monitores pesados em envelopes de polietileno.....	56
Figura 4.18 - Sequência para obter o “sanduíche” irradiado na posição 24B/prateleira 2 do reator IEA-R1.....	56
Figura 4.19 - Vista interna do recipiente de alumínio com as amostras biológicas e os monitores de ouro.....	57
Figura 5.1 - Imagem do programa k_0 -IAEA com os dados nucleares da posição de irradiação da estação pneumática	63
Figura 5.2 - Imagem do programa k_0 -IAEA com os dados nucleares da prateleira 24B posição 2.....	64

1. INTRODUÇÃO

Com base nos fundamentos da Física Nuclear e da Química Inorgânica, a Análise por Ativação Neutrônica (NAA) (GUINN, 1980) foi descoberta em 1936, quando George de Hevesy e Hilde Levi verificaram que amostras contendo certo tipo de terras raras tornavam-se altamente radioativas após exposição a uma fonte de nêutrons. Anteriormente, em 1934, ocorreu a descoberta da radioatividade artificial, quando o casal Irene Curie e Frederic Joliot mostraram que as partículas, identificadas por Rutherford como parte dos núcleos atômicos, emitidas por elementos naturalmente radioativos, poderiam ser utilizadas para bombardear elementos não-radioativos e induzir esses elementos a serem radioativos.

Inicialmente, o desenvolvimento e a aplicação da Análise por Ativação Neutrônica foram dificultados pela limitação do baixo fluxo das fontes de nêutrons, desempenho limitado dos cíclotrons e falta de detectores de raios gama eficazes para espectrometria de raios gama. Nos anos 40 e 50, no entanto, esse método teve um crescimento muito rápido, devido à construção e distribuição de reatores nucleares de pesquisa com elevado fluxo de nêutrons térmicos em diversas localidades do mundo, o advento dos primeiros detectores de alta eficiência e as primeiras conferências internacionais dedicadas exclusivamente ou de forma significativa a estudos de NAA. Na década de 70, houve grande incentivo ao desenvolvimento da análise por ativação com nêutrons, com a invenção dos detectores de alta resolução de germânio (GUINN, 1980). Atualmente, é uma técnica analítica bem estabelecida, e é especialmente conveniente em diversos tipos de estudos, por ser uma técnica multielementar, não destrutiva, e requerer pequena quantidade de amostra na análise, da ordem de miligramas. Além disso, o aprimoramento da eletrônica nuclear e a utilização de computadores tornaram esta técnica de alta sensibilidade aplicável em muitos campos da ciência, sendo continuamente aprimorada e largamente utilizada para determinação de elementos traço em materiais diversos.

A determinação da concentração de elementos químicos em amostras é assunto de interesse em muitas áreas de pesquisa e conhecimento. Pela sua sensibilidade, seletividade e também pelo fato de cerca de 70% dos elementos químicos apresentarem núclídeos que possuem propriedades adequadas para a aplicação do método da análise por ativação com nêutrons, este método radioquímico mostrou-se um dos mais importantes para este tipo de análise (GLASCOCK, 2000).

Há muitos anos, o laboratório de Análise por Ativação com Nêutrons do IPEN (LAN-IPEN) vem analisando diferentes matrizes, geológicas, vegetais e animais, empregando o método de análise por ativação com nêutrons comparativo (FÁVARO *et al.*, 2000; FIGUEIREDO *et al.*, 2009 e 2011; SEMMLER, 2007) no reator de pesquisa IEA-R1. Esta técnica consiste na irradiação simultânea da amostra a ser analisada e de um padrão, com concentração bem conhecida do elemento a ser analisado. A irradiação do padrão e da amostra é efetuada sob as mesmas condições, durante o mesmo tempo e sob o mesmo fluxo de nêutrons; posteriormente, amostras e padrões são medidos na mesma geometria experimental. Nesse processo, todos os parâmetros associados à irradiação e detecção são iguais, tanto para a amostra como para o padrão, tornando possível a determinação da concentração de um elemento na amostra por meio de uma comparação entre as atividades induzidas na amostra e no padrão.

A estratégia funciona bem quando se quer determinar apenas um ou alguns elementos. No entanto, quando se quer determinar um grande número de elementos de uma amostra, o preparo dos padrões sintéticos, que inclui dissolução de reagentes químicos, preparo de soluções e tomada de alíquotas para contagem, é muito complicado e demorado, além da dificuldade que surge devido à irradiação de um grande número de padrões e amostras num só recipiente de irradiação. O uso de materiais de referência como padrões acarreta alguns problemas como alto custo e disponibilidade limitada.

Para solucionar essas dificuldades, foi desenvolvido, no final dos anos setenta e início dos anos oitenta, pelos professores Frans De Corte (Universidade de Gent, Bélgica) e Dr. Andras Simonits (KFKI-AEKI, Budapeste, Hungria) e muitos outros colegas de trabalho, o método de ativação neutrônica k_0 (k_0 -INAA)

(DE CORTE *et al.*, 2000; SIMONITS *et al.*, 1975; KOLOTOV e DE CORTE, 2004). O método de padronização k_0 depende da determinação exata das eficiências de pico para as energias gama de interesse, em um espectrômetro gama; da relação entre fluxo de nêutrons térmicos e epitérmicos (valor de f) e do parâmetro relacionado à distribuição de energia dos nêutrons epitérmicos (valor de α). Requer também maior reprodutibilidade nas instalações de irradiação e detecção, além de constantes nucleares obtidas da literatura (DE CORTE, 1987b e 2001; SMODIS *et al.*, 1990).

O procedimento usado para aplicação do método de padronização k_0 consiste em irradiar cada amostra juntamente com um monitor de fluxo, também chamado como comparador, no mesmo canal de irradiação. Várias amostras podem ser irradiadas simultaneamente quando empilhadas dentro do recipiente de irradiação (coelho), intercaladas com monitores de fluxo (na forma de sanduíche). A concentração dos elementos é calculada em relação ao monitor, que é usualmente o ouro, eliminando a necessidade de padrões.

A partir de 1992, mais de 50 laboratórios de todo o mundo passaram a utilizar o método k_0 -INAA em seus laboratórios, e centenas de trabalhos sobre o tema têm sido publicados (IAEA). No Brasil, o método k_0 -INAA tem sido aplicado com sucesso no CDTN / CNEN (Centro de Desenvolvimento de Tecnologia Nuclear / Comissão Nacional de Energia Nuclear, Belo Horizonte, Minas Gerais) (MENEZES e JACIMOVIC, 2008; MENEZES *et al.*, 2003).e no CENA (Centro de Energia Nuclear e Agricultura, Piracicaba, São Paulo (BACCHI e FERNANDES, 2003a; BACCHI *et al.*, 2003b; BACCHI *et al.*, 2004). Nas duas últimas décadas houve um significativo desenvolvimento na determinação das constantes físicas envolvidas, assim como na melhoria de programas de computação utilizados nos cálculos necessários, possibilitando a obtenção de resultados confiáveis, comparáveis aos obtidos pelo método comparativo.

Em 1995, a análise por ativação com nêutrons instrumental k_0 -INAA, foi introduzida no CDTN. Testes confirmaram que o reator TRIGA MARK IIPR-RI apresentava as características adequadas para aplicação do método, principalmente devido à sua estabilidade e fluxo de nêutrons homogêneo. Em 2003, o método foi otimizado com a introdução do software KayWin, o qual se

mostrou mais apropriado para análise dos espectros e das concentrações elementares (MENEZES *et al.*, 2003; MENEZES e JAĆIMOVIĆ, 2008).

O método k_0 -INAA, utilizando o programa k_0 -IAEA, para análise de materiais geológicos foi empregado no LAN-IPEN. Para obter os parâmetros de f e α , foi utilizado o método *bare triple-monitor* com ^{197}Au - ^{96}Zr - ^{94}Zr . Os resultados obtidos para até 30 elementos nos materiais de referência basalto JB-1 (GSJ) e BE-N (IWG-GIT), andesito AGV-1 (USGS), granito GS-N (ANRT), SOIL-7 (IAEA) e sedimento Buffalo River Sediment (NIST-BRS-8704) concordaram com os valores recomendados, com erros relativos (*bias*) menores que 10%. Os critérios estatísticos *z-score*, *zeta-score* e *U-score* foram aplicados para avaliação dos resultados (MARIANO, 2012).

No Egito, na cidade do Cairo, foi implementado, recentemente, o método k_0 -INAA no reator de pesquisa ETRR-2, em operação desde 1998 (SOLIMAN *et al.*, 2011). Este método de padronização tem sido responsável por toda a demanda de Análise por Ativação com Nêutrons, atendendo às necessidades dos clientes externos e internos. Os parâmetros foram determinados em cada posição de irradiação utilizando Zr e Au como monitores de fluxo de nêutrons. Para validação do método, foram analisados os materiais de referência carvão NIST 1632c e solo IAEA-Soil-7. O método “bare triple monitor” (SIMONITS *et al.*, 1975; DE CORTE *et al.*, 1981; DE CORTE e SIMONITS, 2003) foi aplicado nesse trabalho para a determinação dos parâmetros do espectro de nêutrons (f e α) que são necessários para os cálculos das concentrações. Os critérios estatísticos utilizados foram o desvio em relação ao valor certificado (*bias*, %) e *zeta-score*. Uma boa concordância entre os valores experimentais e os valores certificados foi obtida. Os resultados obtidos por Soliman *et al.*, (2011), revelaram que o método do k_0 -INAA estabelecido no reator de pesquisa ETRR-2 pode ser considerado como um método de padronização confiável de INAA e como método analítico disponível para análise química de amostras, especialmente para aquelas para as quais é difícil encontrar um material de referência adequado. O autor do trabalho sugere que os valores podem ser melhorados se o método do k_0 -INAA for aplicado conforme a convenção de Westcott.

Com base no Método k_0 -INAA determinaram-se elementos maiores e traços em alguns minerais presentes na mina de Allchar, República da Macedônia (JACIMOVIĆ *et al.*, 2002). A concentração de U e Th em todos os minerais investigados foi considerada menor que 1 mg kg^{-1} . Os dados obtidos para outros elementos traço (Ce, Co, Cr, Cs, Sc, Se, Te e Tb) mostraram que as concentrações dos minerais investigados foram também baixas ($0,6 - 2 \text{ mg kg}^{-1}$ para Ce; $0,1 - 17 \text{ mg kg}^{-1}$ para Co; $0,4 - 6,7 \text{ mg kg}^{-1}$ para Cr; $0,04 - 52 \text{ mg kg}^{-1}$ para Cs; $0,006 - 3,5 \text{ mg kg}^{-1}$ para Sc; $0,4 - 0,9 \text{ mg kg}^{-1}$ para Se e $2,6 \text{ mg kg}^{-1}$ para Te). As concentrações de Fe, Ca, Mg, As e Sb encontradas nestes minerais foram relativamente elevadas ($0,02 - 40\%$ de Fe; $0,3 - 21\%$ de Ca; $0,03 - 13\%$ de Mg; $0,4 - 53\%$ de As e $8 - 270 \text{ mg kg}^{-1}$ de Sb). Para determinar os parâmetros α e f foi utilizado o Método da Razão de Cádmiu com Monitores Múltiplos. Para obtenção das concentrações dos elementos químicos, utilizou-se de um software chamado KAYZERO/SOLCOI®, operado em um computador compatível da IBM. Os resultados obtidos mostraram-se concordantes com os valores estequiometricamente obtidos para todos os minerais.

Hoje em dia, o método k_0 -INAA tem sido responsável por 90% da demanda analítica dos Laboratórios de Análise por Ativação Neutrônica. Vários elementos são determinados (Ag, Al, Au, As, Ba, Br, Ca, Cd, Ce, Cl, Co, Cr, Cs, Cu, Dy, Eu, Fe, Ga, Hf, Hg, Ho, I, K, La, Mg, Mn, Mo, Na, Nd, Rb, Sb, Sc, Se, Sm, Sr, Ta, Tb, Th, Ti, U, V, W, Yb, Zn e Zr) em diversos tipos de matrizes, tais como biomateriais (alimentos, plantas, leveduras, tecidos humanos e animais, medicamentos, etc); amostras ambientais (solos, sedimentos, água, efluentes líquidos, partículas no ar, etc); produtos industriais (ligas, plásticos, etc.). Em 2006, os Laboratórios de Análise por Ativação Neutrônica produziram 20.000 resultados aplicando-se o método k_0 (MENEZES, 2009).

Existem alguns programas computacionais disponíveis dedicados ao método de padronização k_0 , tais como k_0 -IAEA (ROSSBACH *et al.*, 2007) e o KayWin (Kayzero para Windows, 2008) (MENEZES *et al.*, 2003; MENEZES e JACIMOVIĆ, 2008), que é comercializado. A Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA) distribuiu gratuitamente aos laboratórios de Análise por Ativação com Nêutrons o programa k_0 -IAEA, que vem sendo continuamente aprimorado, e que já vem sendo utilizado em laboratórios como o do *Interfaculty Reactor*

Institute of Technology (IRT), da Delft University of Technology, Holanda, e o Instituto Nuclear Tecnológico (ITN), em Portugal (DUNG et al., 2008).

1.1 Objetivo do Trabalho

O objetivo do projeto foi propor o método k_0 -INAA como uma nova alternativa para o método comparativo de análise por ativação com nêutrons, usualmente utilizado no LAN-IPEN.

Devido às vantagens apresentadas pelo método k_0 -INAA, utilizando-se do programa k_0 -IAEA, espera-se otimizar o processo de obtenção dos resultados no LAN-IPEN. Deste modo, pretende-se: eliminar os erros relacionados aos cálculos do método comparativo; eliminar o uso de padrões diversos; aumentar a quantidade de amostras analisadas e determinar o maior número de elementos presentes em cada material irradiado.

2. FUNDAMENTOS TEÓRICOS

2.1 Interação da radiação gama com a matéria

Os raios gama podem interagir com a matéria através de vários processos diferentes. Dentre estes processos de interação, os mais importantes, do ponto de vista de detecção da radiação gama, são o efeito fotoelétrico, o efeito Compton e a produção de pares. Os outros efeitos como o espalhamento Thomson, espalhamento Raleigh e outros, podem ser considerados como sendo desprezíveis para o processo de detecção dos raios gama (RESNICK e EISBERG, 1979).

2.1.1 Efeito Fotoelétrico

Efeito fotoelétrico é o processo pelo qual um fóton de energia $h\nu$ interage com um elétron ligado, transferindo a ele toda a sua energia. Como resultado dessa interação, o elétron é ejetado do átomo com uma energia cinética (T_o) dada por:

$$T_o = h\nu - B_i \quad (1)$$

onde:

$h\nu$ é a energia do fóton incidente;

B_i é a energia de ligação do elétron na i -ésima camada.

A lacuna criada na camada pela saída do elétron, como um resultado do efeito fotoelétrico, é preenchida por elétrons de órbitas mais externas. Este processo é geralmente acompanhado pela emissão de raios X ou elétrons Auger (quando o átomo excitado transfere diretamente a sua energia para um dos seus elétrons).

O efeito fotoelétrico não pode ocorrer para um elétron livre. Este fato decorre da incompatibilidade das leis de conservação de energia e momento ao considerarmos a interação de um fóton com um elétron livre. Portanto, para a ocorrência do foto-efeito, é muito importante que o elétron esteja ligado a um átomo na qual parte da energia do fóton deve ser transferida. Ainda, pode-se concluir que, quanto menor for a energia de ligação do elétron quando comparada com a energia do fóton, menos provável é a ocorrência do fenômeno.

A probabilidade de ocorrência do efeito fotoelétrico depende muito fortemente do número atômico Z do átomo no qual o efeito é observado, e pode ser representada por (2):

$$\sigma_{phot} \propto Z^5 \quad (2)$$

Em elementos leves (pequeno Z), os elétrons estão ligados mais fracamente pelas forças coulombianas do núcleo do que nos elementos pesados e, portanto, a probabilidade de ocorrência do efeito deve ser menor.

De uma maneira geral, a secção de choque para o efeito fotoelétrico (σ_{phot}) tem a seguinte dependência com a energia $h\nu$ da radiação gama e a carga Z do meio (MUKKIN, 1987):

$$\sigma_{phot} \propto \frac{Z^5}{(h\nu)^{7/2}} \quad \text{para } h\nu > B_k \quad (3)$$

onde:

B_k é a energia de ligação do elétron na camada k.

O efeito fotoelétrico é, portanto, especialmente significativo em baixas energias e para materiais pesados onde a probabilidade é relativamente grande mesmo para fótons de altas energias. Em materiais leves, por outro lado, este efeito é importante apenas para fótons de baixas energias. Desta forma podemos concluir que o efeito fotoelétrico é o principal mecanismo de interação da radiação gama com a matéria em baixas energias (até algumas centenas de keV).

2.1.2 O espalhamento Compton

Esse fenômeno investigado por Arthur Compton em 1923, (COMPTON, 1923a e 1923b) ocorre envolvendo uma colisão entre fótons e elétrons, podendo provocar a ionização de um átomo. À medida que a energia aumenta, os fótons comportam-se como partículas que colidem com os elétrons dos átomos. Dessa forma, não só o elétron atingido é liberado, como o fóton repulsado também emerge da colisão, sendo importante na faixa de energia típica dos raios-X (energias maiores que algumas dezenas de keV) (RESNICK e EISBERG, 1979). Além da geração de um elétron livre, no espalhamento Compton ainda resta parte da energia do fóton incidente sob a forma de um fóton remanescente, embora de menor energia (FIG. 2.1).

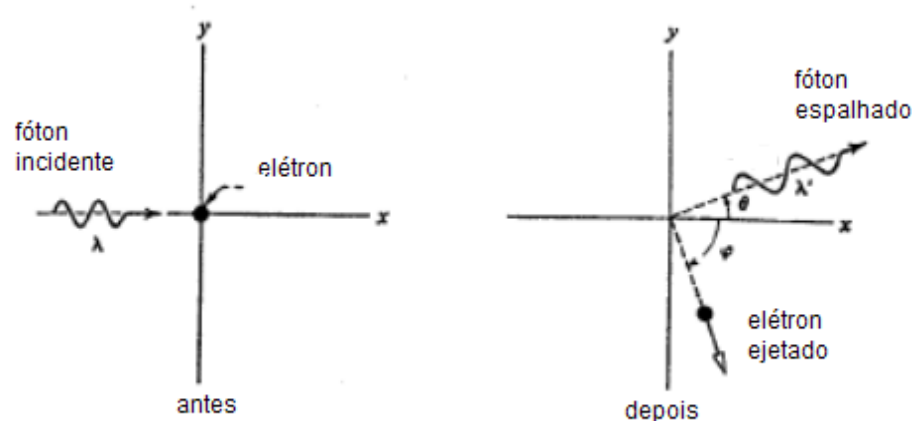


Figura 2.1 - Diagrama esquemático do espalhamento Compton (RESNICK e EISBERG, 1979).

A probabilidade de interação de um fóton de alta energia através de espalhamento Compton é proporcional à densidade de elétrons em um dado material; da mesma forma que no efeito fotoelétrico, o efeito Compton é proporcional à densidade do meio. No entanto, à medida que a energia do fóton incidente aumenta, diminui a probabilidade dessa interação (aproximadamente $1/E$).

A característica principal do espalhamento Compton está na relação entre a fração da energia do fóton incidente subtraída no processo, e os ângulos de espalhamento do fóton e do elétron produzidos. Em uma grande transferência

de energia, o ângulo de espalhamento do fóton Compton poderá ser de até 180° , sendo que, nesses casos, o elétron produzido será ejetado em uma direção próxima à direção original do fóton incidente.

No caso inverso, quanto maior a fração da energia transferida para o fóton Compton, mais próxima será sua direção à do fóton de alta energia incidente. De fato, como o fóton Compton espalhado tende a apresentar uma energia próxima do fóton incidente, pode-se considerar que, nesses casos, ocorreu um espalhamento com uma pequena mudança de direção e de energia. Nesses casos, o ângulo de espalhamento do elétron Compton gerado tende a ser máximo – nunca porém maior que 90° relativo à direção do fóton incidente.

Quanto menor a energia do fóton incidente, menor a chance de que uma interação proporcione uma grande transferência de energia. Fótons de energia mais baixa resultam em uma emissão de fótons Compton num padrão praticamente isotrópico. No entanto, à medida que a energia do fóton incidente aumenta, o padrão de emissão começa a favorecer a emissão de fótons Compton na direção do feixe incidente.

2.1.3 Produção de pares (RESNICK e EISBERG, 1979)

Nesse processo, ocorre a interação dos fótons de um feixe de alta energia com a matéria, que não envolve diretamente a ionização de átomos do meio. Desde que haja a presença de um núcleo atômico em sua trajetória, um fóton que possua energia acima de 1,022 MeV pode dar origem a um par elétron/anti-elétron.

A existência do anti-elétron (elétron de carga positiva denominado pósitron) é prevista pela fórmula $E = mc^2$, que nada mais significa que matéria e anti-matéria ao se encontrarem se aniquilam (massa se transforma em energia), o processo inverso (onde energia se transforma em massa, como na produção de par) é igualmente possível.

A massa de repouso de um elétron e do pósitron é $0,511 \text{ MeV}/c^2$. Através do fenômeno produção de pares, um fóton com energia pouco acima de

1,022 MeV poderá interagir com o campo elétrico do núcleo de um átomo, resultando em um par elétron/pósitron (FIG. 2.2).

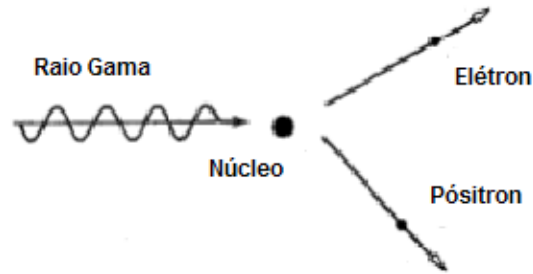


Figura 2.2 – Produção de pares (RESNICK e EISBERG, 1979)

Dessa forma, o processo de criação de pares é possível apenas para fótons de energia acima de 1,022 MeV. Como a interação se dá entre o campo eletromagnético associado ao fóton de alta energia e o campo eletrostático do núcleo do átomo, a probabilidade de interação através de produção de pares cresce com o número atômico, aproximadamente linearmente com Z .

Caso o fóton que sofreu interação tenha mais do que 1,022 MeV, o excedente de energia será convertido, em geral de maneira não equânime, em energia cinética para cada uma das partículas do par elétron/pósitron recém-criado.

Entre ambas as partículas produzidas, haverá um ângulo inversamente proporcional à energia do fóton incidente. No caso particular onde a energia do fóton seja muito próxima de 1,022 MeV, o elétron e o pósitron resultantes serão produzidos em direções praticamente opostas.

2.2 Interação do nêutron com a matéria (BYRNE, 1995)

Embora, o nêutron não apresente carga elétrica líquida e, portanto, seja insensível à força Coulombiana, pode interagir com a matéria via colisões ou interações nucleares.

A principal forma de interação dos nêutrons com a matéria é através de espalhamento, principalmente o espalhamento elástico. Nesse tipo de

espalhamento, a energia cinética total do sistema se mantém após a colisão; após diversas colisões, a tendência do nêutron é de perder progressivamente praticamente toda a sua energia, entrando em equilíbrio térmico com o meio. Esses nêutrons são chamados de nêutrons térmicos, e sua distribuição de energia ocorre conforme a distribuição de Maxwell-Boltzmann:

$$E_{th} = \frac{3}{2}kT \quad (4)$$

onde:

k é a constante de Boltzmann;

T é a temperatura do meio

Outra forma de interação do nêutron com a matéria é por meio de reações nucleares, uma vez que não sentem a interação eletromagnética. Na maior parte das vezes, nessa interação, os núcleos produzidos nessas reações são instáveis, ou seja, vão sofrer algum decaimento radioativo antes de atingir um estado de equilíbrio; essa característica serve como base para uma série de processos, como por exemplo os que ocorrem na NAA.

2.2.1 Secção de choque (σ) (BYRNE, 1995)

A grandeza física que quantifica a probabilidade de ocorrência das reações nucleares é denominada secção de choque (σ). Considerando $n(x)$ a intensidade de um feixe de nêutrons após cruzar uma espessura x de um dado material e N o número de átomos por centímetro cúbico do alvo, supondo que o alvo seja composto por átomos de um único isótopo, então:

$$\frac{dn}{dx} = -N\sigma dx \quad (5)$$

onde σ tem dimensões de área e é uma medida da probabilidade de interação dos nêutrons incidentes com o meio.

A secção de choque varia de acordo com o meio, uma vez que o nêutron interage diretamente com as forças nucleares internas ao núcleo. Nesse caso, a secção de choque não varia apenas conforme o elemento químico de que o meio é composto, mas também de isótopo para isótopo; isto é uma característica fundamental da interação dos nêutrons com a matéria. Além disso, a secção de choque também depende da energia do nêutron e a interação predominante varia de acordo com a faixa de energia do nêutron.

Para a maior parte dos isótopos, os nêutrons de baixa energia ao interagirem com o núcleo permanecem em algum estado de ligação disponível, e a energia restante dessa interação é devolvida sob a forma de uma emissão gama. Essa é a chamada captura neutrônica ou absorção neutrônica, representada pela forma:



onde:

X - é o símbolo químico do elemento;

A - é o número de massa do isótopo em questão.

Neste tipo de reação, em geral, a secção de choque até uma dada energia segue a Lei do $1/v$, ou seja, a secção de choque é inversamente proporcional à velocidade do nêutron incidente. A Lei do $1/v$ vale até energias que variam de núcleo para núcleo, mas em geral estão em torno de 1 eV – 10 keV; a partir dessa energia, frequentemente, notam-se ressonâncias bastante pronunciadas na secção de choque, que ocorrem quando o nêutron incidente tem energia correspondente a algum nível disponível no núcleo alvo.

Os nêutrons também podem induzir reações nucleares com a ejeção de uma ou mais partículas, por exemplo, reações (n,p), (n,d), (n,2n) ou (n, α). Para essas reações, em geral, há um limiar de energia abaixo do qual o nêutron é incapaz de iniciar a reação – essas reações são conhecidas como *reações limiares*. Além dessas reações apresentadas, os nêutrons podem também disparar uma reação violenta e radical a alguns núcleos. Núcleos pesados, como no caso do ${}^{235}\text{U}$ ou ${}^{239}\text{Pu}$ podem, ao interagir com um nêutron, sofrer o processo

conhecido como fissão nuclear, onde o nêutron incidente sobre o núcleo o rompe totalmente de forma extremamente exotérmica, sendo o produto, na maioria das vezes, dois núcleos menores e dois ou três nêutrons avulsos.

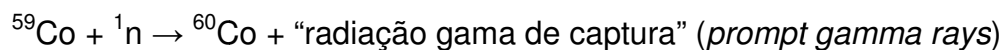
2.3 O método de análise por ativação neutrônica

O princípio da análise por ativação consiste em expor o material a ser analisado a um bombardeio de partículas carregadas, fótons ou nêutrons, de modo que ocorra a formação de núcleos radioativos por meio de reações nucleares. Desta forma, a partir da medida da radiação emitida por esses núcleos radioativos, é possível realizar análises qualitativa e quantitativa dos elementos químicos presentes na amostra.

No emprego de nêutrons no processo de ativação, a grande vantagem vem do fato de o nêutron ser praticamente insensível à interação coulombiana, uma vez que não tem carga elétrica líquida, e ter um momento magnético muito pequeno. Os nêutrons mesmo com baixa energia podem provocar diversas reações nucleares tais como: (n,γ) ; (n,p) ; (n,α) ; (n,n) ; $(n,2n)$, etc. Como essas reações dependem tanto da energia do nêutron incidente (térmico, epitérmico ou rápido) como das características do elemento alvo (principalmente da seção de choque e da abundância isotópica), vários radioisótopos podem ser formados. Quanto mais elevados forem esses valores, maior será a atividade do radioisótopo produzido. Os nêutrons térmicos e epitérmicos, em geral, interagem com a matéria por espalhamento elástico (n,n) ou por captura radioativa (n,γ) ; os nêutrons rápidos interagem, principalmente, por espalhamento inelástico (n,n') ou por emissão de partículas carregadas pelo núcleo composto, via reações do tipo (n,p) , (n,α) , etc (KNOLL, 1979).

Quando um nêutron interage com um núcleo alvo por meio de uma colisão inelástica, forma-se um núcleo composto em um estado altamente excitado. Este núcleo pode perder sua energia por vários processos de desintegração, que duram da ordem de 10^{-16} a 10^{-14} s. Esses processos normalmente envolvem emissão de partículas ou os chamados raios gama pronto. Na maioria dos casos, o núcleo produto instável começa a decair

buscando uma configuração de estabilidade através da emissão de radiação pelos seguintes processos: decaimento alfa, decaimento β^- , decaimento β^+ e captura eletrônica. Na maioria dos casos, raios X e radiação gama (*delayed gamma rays*) são também emitidos. O método de análise por ativação com nêutrons consiste na medida desses raios gama característicos para identificação dos elementos e determinação dos seus teores. A reação nuclear mais comum utilizada em NAA é a reação de captura de nêutrons térmicos, ou a reação (n,γ) . Normalmente, os produtos dessa reação, ao decaírem, emitem raios gama característicos, que podem ser eficientemente detectados, permitindo a identificação da composição da amostra e sua quantificação. Como exemplo, uma reação típica de captura de nêutrons térmicos por um núcleo atômico é mostrada a seguir:



O núcleo produto ^{60}Co é radioativo e decai pela emissão de partículas β^- e pela emissão de radiação gama, formando, por fim, um núcleo estável. Por meio da energia da radiação gama de decaimento e da respectiva meia-vida, o radionuclídeo formado (núcleo produto) na reação nuclear pode ser identificado, permitindo assim realizar análises qualitativas e quantitativas do elemento contido na amostra. A reação nuclear citada é, em geral, representada de uma forma mais compacta: $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$. A FIG. 2.3 (IAEA, 1990) mostra uma representação esquemática do processo.

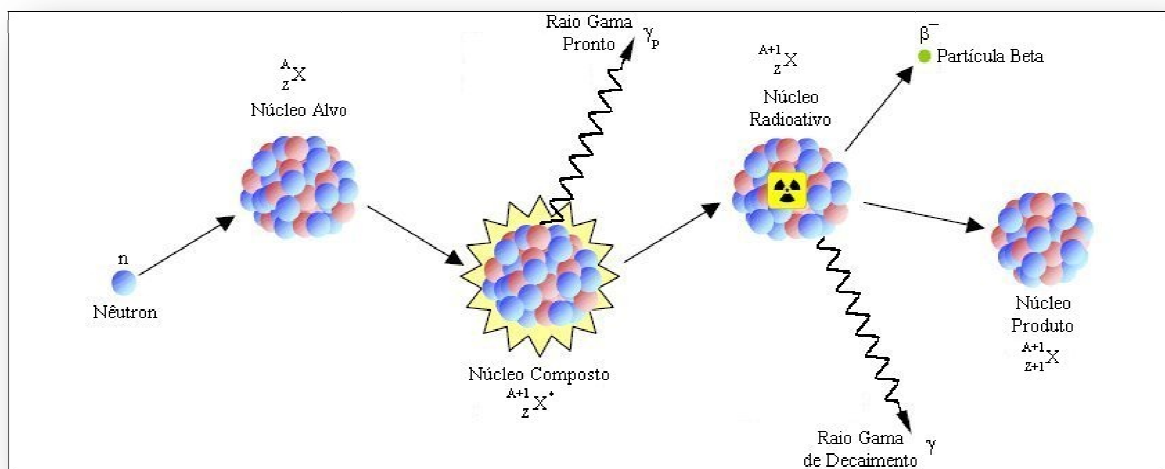


Figura 2.3 – Típica reação nuclear do tipo (n,γ) .

A técnica NAA pode pertencer a duas categorias:

- ✓ Análise por ativação com nêutrons de raios gama pronto (*prompt gamma rays*), na qual a medição se dá durante a irradiação. Esta técnica é conhecida por PGNAA.
- ✓ Análise por ativação com nêutrons de raios gama de decaimento (*delayed gamma rays*). Esta técnica é conhecida por DGNAA (método usualmente empregado em reatores nucleares).

Na prática, o procedimento mais utilizado é com raios gama de decaimento, pois, num processo comparativo entre as duas técnicas, o fluxo de nêutrons que a amostra recebe sendo submetida à irradiação dentro do reator é muito maior do que o produzido pela extração de um feixe no reator. A PGAA é menos sensível que a NAA e tem aplicação na determinação de elementos de elevada secção de choque para captura de nêutrons, como o B, Cd, Sm, Gd; elementos que decaem muito rapidamente para serem medidos por NAA; elementos que produzem apenas radionuclídeos estáveis ou para elementos com intensidades de decaimento de raios gama fracas (ZAMBONI, 2007; TRAVESI, 1975).

Parâmetros como as energias e o tipo das radiações emitidas por esses nuclídeos e a meia-vida do nuclídeo formado, interferem na sensibilidade da análise. A determinação qualitativa e quantitativa dos nuclídeos formados é feita por espectrometria de raios gama, com detectores semicondutores de alta resolução (Ge hiperpuro), pois cada nuclídeo radioativo tem características peculiares para estas emissões (meia-vida e energia), o que permite que se realizem análises multielementares.

Os pulsos gerados da interação da radiação incidente com o cristal do detector de Ge hiperpuro são amplificados e coletados na memória de analisadores de altura de pulsos, na forma de um espectro de energias. O espectro é interpretado por programas de computação, que localizam os picos de raios gama, determinam sua energia e calculam as suas áreas.

A relação entre a radiação emitida e aquela realmente detectada dependerá de algumas características dos instrumentos disponíveis para a realização das medidas. Essas características se referem à eficiência de medida,

arranjo geométrico para contagem, efeitos de espalhamento e absorção da radiação.

2.3.1 Método comparativo em análise por ativação neutrônica

Neste processo de ativação, a amostra e o padrão são irradiados sob a mesma intensidade do feixe de nêutrons; além disso, o padrão precisa ser feito do mesmo material da amostra, uma vez que o freamento que a partícula sofre no alvo e no padrão está diretamente relacionado à composição química de ambos.

No emprego do método via padrão interno o procedimento consiste em irradiar uma mistura homogênea de amostra e padrão que contenha um elemento com meia-vida próxima à meia-vida do elemento a ser analisado na amostra. Utilizando padrão externo, prática utilizada no LAN-IPEN, a amostra e o padrão são irradiados simultaneamente, garantindo assim as mesmas condições de irradiação. A massa é então determinada a partir da relação das atividades da amostra e do padrão. A equação geral que fornece a atividade induzida por um fluxo de nêutrons é expressa por (TRAVESI, 1975):

$$A = \frac{N_A \phi \sigma m f F}{M} (1 - e^{-\lambda T_i}) \quad (7)$$

onde:

N_A - constante de Avogadro;

ϕ - fluxo de nêutrons;

σ - secção de choque;

m - massa do elemento na amostra;

f - fração do isótopo que irá sofrer a ativação;

F - fração do elemento ativado;

T_i - tempo de irradiação;

M - massa atômica do elemento;

λ - constante de decaimento.

Desta forma, a razão entre as atividades da amostra e do padrão, para o mesmo tempo de decaimento, reduz-se a:

$$\frac{A_a}{A_p} = \frac{m_a}{m_p} \quad (8)$$

onde :

A_a - atividade do radioisótopo na amostra;

A_p - atividade do radioisótopo no padrão;

m_a - massa do elemento na amostra;

m_p - massa do elemento no padrão;

Após a irradiação, amostra e padrão são submetidos à contagem utilizando o mesmo arranjo experimental. Assim, a atividade passa a ser expressa pela taxa de contagem.

2.4 Validação de métodos analíticos

O desenvolvimento de um método analítico, a adaptação ou implementação de um método conhecido, envolvem processos de avaliação que estimem sua eficiência na rotina do laboratório. A esses processos costuma-se dar o nome de validação. Várias definições estão descritas na literatura para validação, tratando-se, portanto de termo não-específico. Determinado método é considerado validado se suas características estiverem de acordo com os pré-requisitos estabelecidos. Portanto, existe diferença entre a execução de experimentos que determinam os diversos parâmetros (coleta dos dados experimentais) e a validação. Essa deve avaliar a relação entre os resultados experimentais e as questões que o método se propõe a responder (BRITO *et al.*, 2005). O objetivo da validação consiste em demonstrar que o método analítico é adequado para o seu propósito (WALSH, 1999). A validação deve ser considerada quando se desenvolve ou efetua adaptações em metodologias já validadas, inclusão de novas técnicas ou uso de diferentes equipamentos.

A literatura dispõe de vários trabalhos que relatam a validação de métodos analíticos (CAUSON, 1997; CURRIE e SVEHLA, 1994; HUMBERT *et al.*, 1999; FEINBERG e RAGUÈNÈS, 1999; MCDOWALL, 1999; WIELING *et al.*, 1996) e definem os critérios que devem ser seguidos durante seu desenvolvimento. Dentre esses trabalhos muitos são da área biológica (CAUSON, 1997; HUMBERT *et al.*, 1999; WIELING *et al.*, 1996).

Os materiais de referência Peach Leaves (SRM 1547), Mixed Polish Herbs (INCT-MPH-2) e Tomato Leaves (SRM 1573a) são destinados, principalmente, para uso na avaliação da confiabilidade de métodos analíticos para a determinação de elementos maiores, menores e traço em materiais botânicos, produtos agro-alimentares e matérias de matriz similar.

Os valores dos materiais de referência são baseados sobre o acordo de pelo menos dois métodos analíticos independentes ou a média de um método de precisão conhecido. No caso de dois ou mais métodos, cada incerteza é a soma de um limite de confiança de 95% ($\pm 2s$) e uma margem de erro sistemático entre os métodos utilizados. No caso de um método de precisão conhecido, cada incerteza é a soma de um limite de confiança de 95% (NIST, 1993).

Em algumas publicações (DE CORTE *et al.*, 1987b; FREITAS e MARTINHO, 1989a; FREITAS, 1989b), a comparação entre os métodos de análise por ativação com nêutrons k_0 -INAA e o método comparativo foi realizada utilizando materiais de referência certificados e precisões similares foram encontradas para ambas as técnicas (SMODIS *et al.*, 1992).

3. MÉTODO k_0 -INAA

Desenvolvido no Nuclear Sciences Institute, em Gent, Bélgica e proposto por Simonits em 1975 (SIMONITS *et al.*, 1975), o método de análise por ativação k_0 , surgiu como alternativa aos métodos de análise por ativação absoluto e comparativo. Esse método consiste em parametrizar os conjuntos de dados nucleares experimentais ou teóricos que aparecem na expressão do método absoluto, em uma única grandeza, que por sua vez pode ser determinada com relativa facilidade. Este método combina a simplicidade experimental do método absoluto, com a precisão do método relativo, de maneira que, com a utilização de um único monitor, a concentração do elemento possa ser determinada.

Este método exclui as incertezas relacionadas ao uso de um padrão, mas por outro lado, inclui as incertezas de k_0 , que são menores que as primeiras, não excedendo 3,5%. Outra vantagem do método é que as amostras e o comparador de Au podem ter diferentes formas e diferentes características de absorção de nêutrons e raios gama.

A determinação experimental do conjunto de dados nucleares necessários aos cálculos da atividade é feita pela irradiação de monitores de fluxo. A concentração dos elementos é calculada em relação a um elemento, geralmente ouro, eliminando a necessidade de padrões.

As constantes k_0 foram medidas em alguns institutos de pesquisa especializados, entre eles o Instituto de Ciência Nuclear em Gent, o Instituto KFKI em Budapest e o Instituto Riso na Dinamarca, sendo que atualmente já existem valores para 140 reações (n, γ) (DE CORTE *et al.*, 2003).

O fator k_0 de um isótopo a ser analisado pode ser definido, com referência ao comparador de ouro, como (SIMONITS *et al.*, 1975):

$$k_{0,Au}(a) = \frac{M_{Au} \theta_a I_{\gamma_a} \sigma_{0,a}}{M_a \theta_{Au} I_{\gamma_{Au}} \sigma_{0,Au}} \quad (9)$$

onde:

o índice “a” é para o analito (elemento da amostra a ser analisado);

o índice “Au” é para o ouro (e refere-se à reação $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$, $E_\gamma = 411,8 \text{ keV}$ e $k_{0,Au} = 1$);

M – massa atômica do elemento irradiado;

θ – a abundância isotópica;

I_γ – probabilidade de emissão gama por decaimento para a transição considerada;

σ_0 – a secção de choque para nêutrons térmicos (2200 m s^{-1}).

Os fatores k_0 para a maioria dos elementos que podem ser analisados por meio da análise por ativação com nêutrons têm sido determinados experimentalmente com boa exatidão e são encontrados na literatura (SIMONITS *et al.*, 1975 e DE CORTE *et al.*, 1987a).

O método k_0 foi desenvolvido utilizando a convenção de Högdahl (HÖGDAHL *et al.*, 1962), a qual assume que a secção de choque (n, γ) varia com a lei $1/v$ na região térmica, isto é, até $\sim 1,5 \text{ eV}$, para o qual o fator de Westcott é igual a 1 ($g=1$). Para os núclídeos que não seguem a lei $1/v$, o formalismo de Westcott (DE CORTE *et al.*, 1993) é adotado e requer a determinação do índice espectral modificado $r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0}$ e do fator de Westcott $g(T_n)$, com $T_0 = 293,6\text{K}$ correspondendo à velocidade do nêutron de 2200 m/s , e T_n é a temperatura do nêutron para uma distribuição Maxwelliana.

No método k_0 é necessária a caracterização das instalações de irradiação e detecção, a utilização de constantes nucleares da literatura (fatores k_0 , Q_0 e constantes de desintegração) assim como a determinação de parâmetros necessários para o cálculo da atividade das amostras irradiadas (eficiências de detecção e intensidades gama).

A caracterização precisa da instalação de irradiação requer a determinação da razão entre os fluxos de nêutrons térmico e epitérmico (f) e do parâmetro α relacionado com a distribuição de fluxo de nêutrons epitérmicos, aproximadamente dada por $1/E^{1+\alpha}$. É uma medida de quanto se afasta o fluxo de nêutrons epitérmicos do comportamento ideal $1/E$. Estes parâmetros são característicos de cada posição de irradiação no reator nuclear.

Na caracterização do sistema de detecção, um parâmetro de grande importância a ser determinado é a eficiência de detecção no intervalo de energia de interesse e a geometria do arranjo experimental.

Além disso, as constantes nucleares k_0 e $Q_0 = I_0/\sigma_0$, onde I_0 é a integral de ressonância para a reação (n,γ) , precisam ser conhecidas para a determinação da concentração de um determinado elemento na amostra.

Usando o método k_0 , a concentração (ρ) pode ser calculada por (10):

$$\rho_a = \frac{A_{sp,a}}{A_{sp,Au}} \cdot \frac{\varepsilon_{p,Au}}{\varepsilon_{p,a}} \cdot \frac{1}{k_{0,Au}(a)} \cdot \frac{G_{th,Au} \cdot f + G_{e,Au} \cdot Q_{0,Au}(\alpha)}{G_{th,a} \cdot f + G_{e,a} \cdot Q_{0,a}(\alpha)} \quad (10)$$

sendo

$$A_{sp} = \frac{C_L}{m \cdot t_m \cdot S \cdot D \cdot C} \quad (11)$$

onde:

A_{sp} – taxa de contagem específica;

C_L – número de contagens líquidas sob o pico de absorção total para a energia gama considerada durante o tempo de medida t_m .

m – massa do elemento na amostra ou do comparador irradiados;

t_m – tempo de medida;

S – fator de saturação: $S = (1 - e^{-\lambda t_i})$;

λ – a constante de decaimento;

t_i – tempo de irradiação, em segundos;

D – fator de decaimento: $D = e^{-\lambda t_d}$;

t_d – tempo de decaimento, em segundos;

C – fator de contagem: $C = \frac{(1 - e^{-\lambda t_m})}{\lambda t_m}$;

t_m – tempo de medida, em segundos;

ε – eficiência de detecção de pico da energia E_γ ;

$k_{0,Au}(a)$ – fator k_0 para o isótopo analisado, com referência ao comparador ouro;

G_{th} – fator de correção para auto-blindagem para os nêutrons térmicos;

G_e – fator de correção para auto-blindagem para os nêutrons epitérmicos;

f – razão entre os fluxos de nêutron térmico e epitérmico;

Q_0 – razão entre a integral de ressonância (I_0) e a secção de choque para nêutrons térmicos (σ_0), ou seja, $Q_0 = I_0/\sigma_0$, onde $\sigma_0(n,\gamma)$ é a secção de choque para nêutrons térmicos.

Os subscritos “a” e “Au” referem-se à amostra e ao ouro, respectivamente.

3.1 Espectro de energia dos nêutrons do reator

Os feixes de nêutrons abrangem um intervalo bastante amplo de energia, podendo variar desde frações de eV até algumas dezenas de MeV. Para uma análise mais detalhada do comportamento dos nêutrons dentro de um reator nuclear, é conveniente dividir o intervalo de energias em subintervalos (FIG. 3.1). Também é importante evidenciar que nos limites extremos desses subintervalos há superposições de categorias adjacentes.

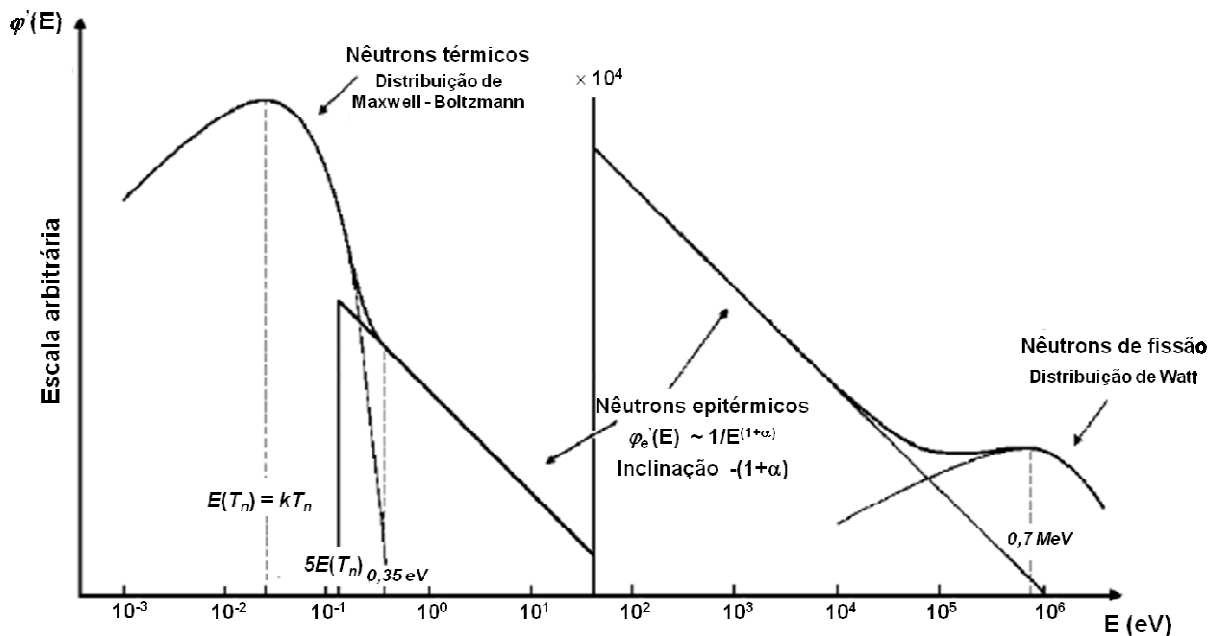


Figura 3.1 – Distribuição do fluxo de nêutrons de um reator nuclear, $\phi(E)$ versus E , em escala log-log (RIZO *et al.*, 1993).

A classificação dos nêutrons pode ser apresentada da seguinte forma:

Nêutrons Térmicos: são nêutrons com energias inferiores a 1eV, e que atingem o equilíbrio térmico com os núcleos do meio, após perderem energia durante a moderação. De acordo com a distribuição de Maxwell, o número de nêutrons por cm³ com energia entre ***E*** e ***E+dE*** é dado por (KAFALA e MACMAHON, 1993):

$$dn = n(E)dE = \frac{2\pi n}{(\pi kT)^{3/2}} E^{1/2} e^{-E/kT} dE \quad (12)$$

e

$$\frac{n(E)}{n} = \frac{2\pi}{(\pi kT)^{3/2}} E^{1/2} e^{-E/kT} \quad (13)$$

onde:

dn – número de nêutrons, em cm⁻³, com energia entre *E* e *E + dE*;

n – número total de nêutrons, em cm⁻³;

n(E) – número de nêutrons por unidade de energia, em cm⁻³·eV⁻¹, para a energia *E* do nêutron;

k – constante de Boltzmann = 1,3807×10⁻²³ J·K⁻¹ (Physical Reference Data, NIST 2013);

T – temperatura, em K.

Sendo *v* a velocidade do nêutron e *n(v)* o número de nêutrons por unidade de velocidade, em cm⁻⁴s, para a velocidade *v* do nêutron, a distribuição representada pela equação (13) é dada por GLASSTONE e EDLUND (1952).

$$\frac{n(v)}{n} = 4\pi \left(\frac{m}{2\pi kT} \right)^{3/2} v^2 e^{-\frac{mv^2}{2kT}} \quad (14)$$

onde: *T*₀ = 293,16K e *m* = 1,6749×10⁻²⁷kg (massa do nêutron) temos que

$$E_0 = kT_0 = 0,0253\text{eV} \quad (15)$$

e

$$v_0 = \sqrt{\frac{2E}{m}} \approx 2200 \text{ m/s} \quad (16)$$

Nêutrons epitérmicos: são nêutrons com energias variando entre 0,5 eV e 2 MeV, e que se encontram num processo de moderação por meio de colisões elásticas. O espectro desses nêutrons em condições ideais (teóricas) pode ser descrito pela expressão (17):

$$\phi(E) \sim \frac{1}{E} \quad (17)$$

No entanto, os espectros de nêutrons epitérmicos de irradiações reais podem se afastar desse comportamento (HALUK e MUSTAFA, 2004). Foi demonstrado que o comportamento desses espectros segue aproximadamente a expressão (18):

$$\phi(E) \sim \frac{1}{E^{1+\alpha}} \quad (18)$$

onde o parâmetro α caracteriza a inclinação na distribuição de nêutrons nessa região de energias.

O limite inferior dessa região é μkT , onde μ é uma constante característica do moderador usado no reator.

Nêutrons rápidos: são nêutrons com energia variando entre 500keV e 20MeV e que ainda não sofreram nenhum processo de moderação, pois acabaram de ser produzidos na fissão. A distribuição energética característica destes nêutrons é denominada espectro de fissão. É possível encontrar na literatura (BLATT e WEISSKOPF, 1952) expressões empíricas que apresentam uma boa aproximação para a distribuição dos nêutrons de fissão para reatores térmicos, como é o caso do reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP. A mais comumente usada é a de Watt dada pela expressão (19):

$$\phi(E) = 0,484 e^{-E} \sinh(\sqrt{2E}) \quad (19)$$

onde E é a energia no nêutron em MeV.

3.2 Convenções utilizadas no cálculo da taxa de reação

3.2.1 Convenção de Westcott (WESTCOTT *et al.*, 1958)

No ano de 1958, C. H. Westcott propôs a convenção que corresponde a um método para calcular a taxa de reação, a partir de características do espectro e do valor da secção de choque para a reação considerada.

Esse formalismo proposto por Westcott é um modelo detalhista e muito rigoroso que se aplica aos espectros neutrônicos bem termalizados, ou seja, quando a razão entre o fluxo térmico e o fluxo epitérmico for muito maior do que a unidade ($f \gg 1$). A sua principal vantagem é que não requer que os radionuclídeos sigam a lei $1/v$ em todo o intervalo de energia do espectro do nêutron.

No caso ideal em que se tem um material com secção de choque puramente $1/v$, pode-se colocar a dependência com a velocidade do nêutron em termos da secção de choque térmica:

$$\sigma(v) = \frac{\sigma_0 V_0}{v} \quad (20)$$

A magnitude da secção de choque de captura varia muito com a energia do nêutron incidente. Dessa forma, a taxa R em que uma dada reação de captura ocorre é dada pela equação (21):

$$R = \int_0^{\infty} \sigma(v) \phi(v) dv = \int_0^{\infty} \sigma(E) \phi(E) dE \quad (21)$$

Assim, a taxa de reação por núcleo alvo, representada pela equação (21), pode ser escrita por (22):

$$R = \int_0^{\infty} \sigma(v) \phi(v) dv = \int_0^{\infty} \sigma(v) n(v) v dv = \sigma_0 v_0 \int_0^{\infty} n(v) dv = \sigma_0 v_0 n_{th} = \sigma_0 \phi_0 \quad (22)$$

onde:

$$\phi(v) = n(v) v, \quad (23)$$

$$n_{th} = \int_0^{\infty} n(v) dv \quad (24)$$

e

$$\phi_0 = v_0 n_{th} \quad (25)$$

sendo ϕ_0 o fluxo de nêutrons térmicos, em $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, para a distribuição de nêutrons com velocidade $v_0 = 2200 \text{ m s}^{-1}$, e n_{th} o número total de nêutrons térmicos, em cm^{-3} .

O fluxo na temperatura real do meio moderador obedece à expressão:

$$\phi_{th} = \bar{v} n_{th} \quad (26)$$

onde \bar{v} é a velocidade média dos nêutrons. Em uma distribuição de Maxwell com temperatura T, a velocidade média \bar{v} se relaciona com a velocidade v_0 pela expressão:

$$\bar{v} = \sqrt{\frac{4}{\pi} \frac{T}{T_0}} v_0 \quad (27)$$

Substituindo as equações (27) e (25) na equação (26) temos:

$$\phi_{th} = \phi_0 \sqrt{\frac{4}{\pi} \frac{T}{T_0}} \quad (28)$$

O que ocorre na prática é que as secções de choque nem sempre seguem o comportamento $1/v$. Nessas condições, a expressão (28) não corresponde a uma aproximação do caso real, tornando-se necessária a aplicação de correções para o desvio de $1/v$. Essas correções são obtidas de uma maneira adequada pela utilização do formalismo de Westcott.

Para aplicação deste formalismo, considera-se que o espectro de nêutrons segue uma distribuição Maxwelliana na região térmica e uma distribuição $1/E$ na região epitérmica. A FIG. 3.1 mostra o comportamento destas duas distribuições. A componente $1/E$ se sobrepõe a Maxwelliana e tem início numa certa energia de corte E_c . Essas duas componentes estão relacionadas entre si por meio de *uma função de junção*, ou função de corte. As expressões apropriadas para essa função, que tem a finalidade de tornar o espectro contínuo na região de junção, podem ser encontradas na literatura.

Assim, pela convenção de Westcott, a taxa de reação é dada por (29):

$$R = nv_0 \hat{\sigma} = nv_0 \sigma_0 (g + rs) \quad (29)$$

onde:

$\hat{\sigma}$ – secção de choque efetiva;

g – fator de Westcott;

r – fração de nêutrons epitérmicos;

s – fator s .

A secção de choque efetiva $\hat{\sigma}$ representa a soma de uma componente térmica (Maxwelliana) e a contribuição do fluxo epitérmico. No caso em que não haja contribuição epitérmica (fração de nêutrons epitérmicos f igual a zero), o espectro é denominado puramente Maxwelliano e a taxa de reação é dada por (30):

$$R = nv_0 \hat{\sigma}_m = nv_0 \sigma_0 g \quad (30)$$

e $\hat{\sigma}_m$ é a secção de choque efetiva Maxwelliana ($\hat{\sigma}_m = \sigma_0 g$). No caso em que o espectro não seja puramente Maxwelliano, em que existe uma certa fração do

espectro epitérmico sobreposto ao térmico, a taxa de reação é a dada pela equação (29).

Com o formalismo de Westcott, é possível definir um fator de correção g (fator de Westcott) que permite obter a secção de choque Maxwelliana efetiva $\hat{\sigma}_m$. Este fator g tem a finalidade de corrigir a secção de choque efetiva $\hat{\sigma}_m$ para a influência da temperatura e para a variação da secção de choque na região Maxwelliana. Os valores de g para diversos materiais e temperaturas podem ser encontrados na literatura, assim como é possível se encontrar valores para σ_0 .

O parâmetro r representa a fração de nêutrons epitérmicos e o fator S é uma quantidade dependente da temperatura relacionada com a integral de ressonância reduzida.

Através do formalismo de Westcott, para se obter o fluxo convencional, basta isolar o fator nv_0 da equação (29):

$$\phi = \frac{R}{\sigma_0(g + rs)} \quad (31)$$

3.2.2 Convenção de Högdal

A introdução desta convenção nos parâmetros do k_0 -INAA foi realizada por De Corte e Simonits em 1989 (DE CORTE e SIMONITS, 1989). Apesar de as convenções de Westcott e Stoughton-Halpering serem mais gerais, Högdal considerou que realmente são poucos os radionuclídeos que não cumprem a lei $\sigma \sim \frac{1}{v}$. Esta convenção baseia-se no fato experimental de 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 taxa de reação por núcleo, de acordo com Högdal, é dada por:

$$R = \int_0^{\infty} \sigma(v) \phi(v) dv = \int_0^{v_{Cd}} \sigma(v) \phi(v) dv + \int_{v_{Cd}}^{\infty} \sigma(v) \phi(v) dv \quad (32)$$

onde $v_{Cd} = \sqrt{\frac{2E_{Cd}}{m_n}}$ é velocidade do nêutron correspondente à energia de corte do cádmio ($E_{Cd} = 0,55\text{eV}$). Para reações (n, γ) sem ressonâncias abaixo de $0,55\text{eV}$ (o que significa fator de Westcott $g = 1$) a dependência com a relação $1/v$, descrita na equação (20) pode ser aplicada para a velocidade do nêutron abaixo de v_{Cd} . Substituindo as equações (20) e (23) na equação (32) temos:

$$\int_0^{v_{Cd}} \sigma(v) \phi(v) dv = \int_0^{v_{Cd}} \frac{\sigma_0 v_0}{v} \phi(v) dv = \sigma_0 v_0 \int_0^{v_{Cd}} n(v) dv = \sigma_0 \phi_{th} = R_{th} \quad (33)$$

onde o fluxo de nêutrons térmicos convencional, ϕ_{th} , em $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, é dado por:

$$\phi_{th} = v_0 \int_0^{v_{Cd}} n(v) dv \quad (34)$$

A última integral da equação (32) pode ser escrita por:

$$\int_{v_{Cd}}^{\infty} \sigma(v) \phi(v) dv = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \phi(E) dE = R_e \quad (35)$$

Considerando-se, da equação (18), que $\phi(E) \sim \frac{1}{E^{1+\alpha}}$, para energias maiores que $0,35\text{eV}$, o fluxo de nêutrons epitérmico é descrito por (DE CORTE, 1987b):

$$\phi_e(E) = \phi_e(E_{ref}) \frac{(E_{ref})^{1+\alpha}}{E^{1+\alpha}} \quad (36)$$

onde E_{ref} é uma energia de referência escolhida arbitrariamente (usualmente, por convenção, 1eV). Substituindo a equação (36) na equação (35) vem:

$$\int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \phi(E) dE = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{(E_{ref})^\alpha}{E^{1+\alpha}} \phi_e(E_{ref}) E_{ref} dE = I_0(\alpha) \phi_e = R_e \quad (37)$$

onde:

$I_0(\alpha)$ – integral de ressonância;

ϕ_e – fluxo de nêutrons epitérmicos convencional, em $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$.

com

$$I_0(\alpha) = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{(E_{ref})^\alpha}{E^{1+\alpha}} dE \quad (38)$$

e

$$\phi_e = \phi_e(E_{ref}) E_{ref} \quad (39)$$

Substituindo as equações (44) e (48) na equação (43) é possível escrever a taxa de reação por núcleo alvo por:

$$R = R_{th} + R_e = \phi_{th} \sigma_0 + \phi_e I_0(\alpha) \quad (40)$$

Assim, a taxa de reação é uma composição das contribuições dos nêutrons térmicos e epitérmicos.

3.3 Comparadores e parâmetros de fluxo (k₀-IAEA, 2007)

No método k₀-INAA, os seguintes parâmetros de fluxo são necessários para caracterizar uma estação de irradiação e as taxas de reação (n, gama):

- ✓ O primeiro parâmetro é a razão entre o fluxo térmico e epitérmico (ϕ_{th}/ϕ_e) chamada de f. Quanto maior a termalização, maior será o valor de f.
- ✓ O segundo parâmetro é o α , que é o índice de não-idealidade do espectro de nêutrons epitérmicos.
- ✓ O terceiro parâmetro é a temperatura da velocidade de distribuição de Maxwell-Boltzmann, que descreve a componente térmica do espectro de nêutrons.

No programa k₀-IAEA, existe um quarto parâmetro, o fluxo rápido. Além disso, o significado de alguns dos parâmetros é um pouco diferente do que no método k₀ original.

3.3.1 Estratégias na caracterização das instalações de irradiação – escolha do comparador

Pode-se considerar que o fluxo de nêutrons rápidos e o fluxo de nêutrons térmicos são proporcionais um ao outro num recipiente de irradiação - ambos podem variar de um dia para o outro e de um ponto para outro. Além disso, pode-se admitir que os valores de f e α não variam no recipiente de irradiação, e nem mesmo em diferentes dias. Isto significa que é muito seguro determinar f , e α , a relação de nêutrons rápidos por térmicos, apenas periodicamente. O fluxo térmico, no entanto, deve ser determinado toda vez, a cada irradiação, com os comparadores de cada lado da amostra a ser analisada. Um comparador apropriado para uma caracterização completa do espectro de nêutrons necessita conter um certo número de isótopos (k_0 -IAEA, 2007). Uma mistura clássica contém Au, Zr, Lu e Fe. Para determinar apenas o fluxo térmico, qualquer elemento que dê origem a um radioisótopo apropriado pode ser usado. Os elementos mais utilizados são Au, Zn e Fe. No presente trabalho, o comparador utilizado foi o Au (Al-0,1%Au - Certified Reference Material IRMM-530R). Outros laboratórios têm utilizado outros elementos, como Zn na forma de solução (BLAAUW *et al.*, 1993). No Instituto Peruano de Energia Nuclear (IPEN), desde a implementação do método do k_0 -INAA, uma solução de sódio tem sido utilizada como comparador, devido ao seu melhor desempenho ao comportamento não-ideal do fluxo de nêutrons epitérmicos (BEDEGRAL *et al.*, 2010).

3.4 Determinação do parâmetro f

Dos 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: são os métodos da razão de cádmio e o multi-isotópico.

a) Método da razão de cádmio:

$$f = (F_{Cd} R_{Cd} - 1) Q_0(\alpha) \frac{G_e}{G_{th}} \quad (41)$$

onde

R_{Cd} – a razão de cádmio (razão entre a atividade específica do radionuclídeo irradiado sem cobertura de cádmio e a atividade específica do radionuclídeo irradiado com cobertura de cádmio);

F_{Cd} – fator de transmissão epitérmica do cádmio.

com

$$R_{Cd} = \frac{R}{R_e} \quad (42)$$

Para obtenção das taxas de reação R e R_e , as amostras não devem ser irradiadas simultaneamente, uma vez que o cádmio pode causar perturbações significativas em suas vizinhança, alterando o fluxo de nêutrons.

b) Método dos monitores bi-isotópicos descobertos

$$f = \frac{G_{e,1} \frac{k_{0,c(1)}}{k_{0,c(2)}} \frac{\epsilon_{p,1}}{\epsilon_{p,2}} Q_{0,1}(\alpha) - G_{e,2} \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} Q_{0,2}(\alpha)}{G_{th,2} \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} - G_{th,1} \frac{k_{0,c(1)}}{k_{0,c(2)}} \frac{\epsilon_{p,1}}{\epsilon_{p,2}}} \quad (43)$$

onde

$G_{e,1}$, $G_{th,1}$, $k_{0,c(1)}$ e $A_{sp,1}$ referem-se ao $^{97}\text{Zr}/^{97m}\text{Nb}$ (743,3keV);

$G_{e,2}$, $G_{th,2}$, $k_{0,c(2)}$ e $A_{sp,2}$ referem-se ao ^{95}Zr (724,2keV);

$G_{e,3}$, $G_{th,3}$, $k_{0,c(3)}$ e $A_{sp,3}$ referem-se ao ^{198}Au (411,8keV);

A TAB. 3.1 mostra os monitores mais usados para determinação da relação f pelo método do monitor bi-isotópico sem cádmio, necessária para a aplicação do método de padronização k_0 .

Tabela 3.1 – Dados nucleares dos radionuclídeos mais importantes usados como monitores para determinação dos parâmetros α e f (DE CORTE e SIMONITS, 2003).

Radionuclídeo	σ_0 (barn)	I_0 (barn)	$Q_0(I_0/\sigma_0)$	$T_{1/2}$
^{198}Au	98,65	1550	15,71	2,695 (d)
^{60}Co	37,2	72,6	1,952	5,271 (a)
^{95}Zr	0,053	0,268	5,057	64,03 (d)
^{97}Zr	0,021	5,28	251,42	16,74 (h)
^{51}Cr	15,2	8,1	0,53	27,69 (d)
$^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$	0,131	6,96	53,13	66,02 (h)

3.5 Determinação do parâmetro α

Os métodos experimentais para determinação do parâmetro α (DE CORTE *et al.*, 1987a; DE CORTE, 1987b) podem ser classificados em três grupos: *Método da Razão de Cádmio com Monitores Múltiplos* (“Cd-ratio multi-monitor method”), *Método de Monitores Múltiplos Cobertos Com Cádmio* (“Cd-covered multi-monitor method”) e o *Método dos três monitores descobertos* (“Bare triple monitor method”).

O comportamento ideal do fluxo de nêutrons epitérmicos é descrito pela função $1/E$ onde E é a energia do nêutron, mas distorções podem alterar esse comportamento, para um caso real. Apesar disto, o espectro ainda pode ser descrito aproximadamente pela função $1/E^{1+\alpha}$, onde α é uma medida do quanto se afasta o fluxo de nêutrons epitérmicos do comportamento ideal e é característico de cada posição de irradiação do reator. Na literatura internacional, se reportam tanto valores positivos como negativos de α (DE CORTE *et al.*, 1984) comparados com o caso ideal, como se ilustra na FIG. 3.1.

A representação $1/E^{1+\alpha}$ induz à necessidade de se realizar determinadas correções à integral de ressonância (e aos resultados analíticos) para um fluxo de nêutrons epitérmicos não ideal (DE CORTE *et al.*, 1986). Dessa

forma, para manter a precisão e exatidão da análise, o parâmetro α deve ser conhecido, quando se realiza o cálculo da concentração de um elemento em uma determinada amostra.

3.5.1 Método de razão de cádmio em multimonitores

Neste método, dois conjuntos de n monitores são irradiados: um conjunto com uma cobertura de cádmio e outro conjunto sem cobertura de cádmio, nas mesmas condições de fluxo de nêutrons. Após as irradiações, a razão de cádmio dos monitores é determinada para cada um dos monitores e o parâmetro α é obtido pela inclinação ($-\alpha$) da curva dada por (DE CORTE, 1987b):

$$Y_i = a + \alpha X_i \quad (44)$$

onde

$$X_i = \log \bar{E}_{r,i} \quad (45)$$

e

$$Y_i = \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{(F_{Cd,i} R_{Cd,i} - 1) Q_{0,i}(\alpha) G_{e,i} / G_{th,i}} \quad (46)$$

onde $\bar{E}_{r,i}$ é a média das energias de ressonância na secção de choque de absorção de nêutrons para o alvo i .

3.5.2 Método de multimonitores cobertos com cádmio

Neste método, um conjunto de monitores é irradiado com uma cobertura de cádmio e as atividades dos radionuclídeos são determinadas por meio de um espectrômetro de HPGe, calibrado em eficiência. Considerando que as secções de choque de captura de nêutrons dos monitores se comportem de acordo com a lei $1/v$ na região térmica, o parâmetro α é obtido pela inclinação ($-\alpha$) curva dada pelas equações (44) e (45) com Y_i dado por (DE CORTE, 1987b)

$$Y_i = \log \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} (A_{sp,i})_{Cd}}{k_{0,Au}(i) \varepsilon_{p,i} F_{Cd,i} Q_{0,i}(\alpha) G_{e,i}} \quad (47)$$

Como no método anterior, o parâmetro α pode ser obtido por meio de um ajuste, aplicando-se o método dos mínimos quadrados com matriz de covariância (CARDOSO, 2011).

3.5.3 Método dos três monitores descobertos

Neste método, um conjunto de dois monitores juntamente com um monitor de referência, é irradiado sem cobertura de cádmio. Logo depois de serem irradiados, as atividades induzidas são medidas utilizando um detector de HPGe com uma curva de eficiência bem determinada. A TAB. 3.1 mostra os monitores (^{95}Zr , ^{97}Zr e ^{198}Au) e os respectivos dados nucleares (DE CORTE e SIMONITS, 2003) relevantes para determinação do parâmetro α utilizando-se o método “bare triple monitor”. De acordo com este método, o parâmetro α pode ser calculado resolvendo-se numericamente a seguinte equação (DE CORTE *et al.*, 1979)

$$(a-b)Q_{0,1}(\alpha) \frac{G_{e,1}}{G_{th,1}} - aQ_{0,2}(\alpha) \frac{G_{e,2}}{G_{th,2}} + bQ_{0,3}(\alpha) \cdot \frac{G_{e,3}}{G_{th,3}} = 0 \quad (48)$$

onde

$$a = \left[1 - \frac{A_{sp,2}}{A_{sp,1}} \cdot \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(2)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1}}{\varepsilon_{p,2}} \right]^{-1} \quad (49)$$

$$b = \left[1 - \frac{A_{sp,3}}{A_{sp,1}} \cdot \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(3)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1}}{\varepsilon_{p,3}} \right]^{-1} \quad (50)$$

e

$$Q_0(\alpha) = \frac{I_0(\alpha)}{\sigma_0} = \left[\frac{Q_0 - 0,429}{(\bar{E}_r)^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)(0,55)^\alpha} \right] \quad (51)$$

Normalmente, neste método, são utilizados os radionuclídeos ^{97}Zr , ^{95}Zr e ^{198}Au . Neste caso, o índice 1 corresponde ao isótopo $^{97}\text{Zr}/^{97\text{m}}\text{Nb}$ (743,3 keV), o índice 2 ao isótopo ^{95}Zr (724,2 + 756,7 keV) e o índice 3 ao isótopo ^{198}Au (411,8 keV).

3.6 O PROGRAMA k_0 -IAEA (ROSSBACH *et al.*, 2007)

Nos últimos anos, a Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA) tem ajudado muitas instituições em seus Estados-Membros, por meio da assistência através da cooperação técnica e projetos de pesquisa coordenados, serviços de especialistas e bolsas de estudo. Alguns desses laboratórios como *Institute of Nuclear Chemistry and Technology* (INCT), na Polônia, *Malaysian Nuclear Agency* (MNA), Malásia, *Interfaculty Reactor Institute of Technology* (IRT), da *Delft University of Technology*, Holanda, o Instituto Nuclear Tecnológico (ITN), em Portugal entre outros, têm estabelecido boas práticas de laboratórios e bons sistemas de qualidade e estão prestando serviços a clientes nas diversas áreas da ciência. Devido às suas vantagens experimentais, a Análise por Ativação com Nêutrons (NAA) é o carro-chefe desses laboratórios. A automação do processo de contagem e avaliação de dados para aumentar o rendimento das amostras e padronização do procedimento é um grande desafio em muitos laboratórios de NAA. Em um passado recente, foram desenvolvidos programas utilizando o método do k_0 para aplicação em NAA em vários laboratórios usando diferentes tipos de abordagens. Este método agora está bem estabelecido na comunidade analítica nuclear, embora o catálogo de dados para uso do k_0 esteja sob constante refinamento de cálculo e as rotinas básicas para a avaliação do elemento na amostra usando o k_0 precise ser vinculado de forma adequada. Um pacote de programa comercial para essa finalidade está disponível (Kayzero for Windows, 2008), mas é muito oneroso para vários laboratórios de pesquisas.

Um programa com interface de usuário para o ambiente Windows foi desenvolvido para ser distribuído gratuitamente pela Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA), a fim de incentivar ainda mais o uso do k_0 em laboratórios de análise por ativação com nêutrons (NAA). O programa k_0 -IAEA deve promover a harmonização dos resultados analíticos de laboratórios de NAA,

eliminando erros relativos aos cálculos dos resultados bem como as dificuldades de preparação de padrões. Para validar o método, utilizou-se o material de referência SMELS (EGUSKIZA *et al.*, 2003), e a caracterização das instalações de irradiação.

Prevê-se para um futuro próximo incorporar módulos adicionais no programa k_0 -IAEA, como a determinação da área dos picos tornando os dados de entrada menos pesados e a implementação de PGNA. Um catálogo para valores de k_0 para reações *prompt gamma* está disponível (BLAAUW, 1994), a crescente comunidade PGNA irá apreciar a opção de usar o mesmo programa para espectros de gama rápido e retardados para interpretação simultânea de espectros desta natureza. Este novo programa, devido à abordagem holística universal, pode acomodar tais diversas aplicações e será disponibilizado para uma grande comunidade de usuários de técnicas analíticas nucleares.

O banco de dados principal utilizado foi o banco de dados k_0 (DE CORTE e SIMONITS, 2003 e BLAAUW, 1996), disponível no site do k_0 *The official k_0 website*, www.k0naa.org (ROSSBACH *et al.*, 2007) e complementado com o banco de dados em uso no Interfaculty Reactor Institute em Delft. Também são necessários os esquemas de decaimento dos radionuclídeos. Estes foram retirados da Tabela de Radionuclídeos (FIRESTONE, 1996).

O algoritmo que realiza esses cálculos no programa leva em conta fenômenos como escape, escape duplo, efeito de soma em cascata entre os raios gama ou que envolvem raios-X após a captura de elétrons ou conversão interna. As exceções são as correlações angulares, as perdas devido à coincidência Bremsstrahlung e, finalmente, não são feitas correções para as contagens de fontes não pontuais próximas ao detector.

Uma mistura de métodos é incorporada no programa k_0 -IAEA composto por uma abordagem proposta por De Felice, (DE FELICE *et al.*, 2000) onde uma medida de, por exemplo, ^{137}Cs , é empregada para determinar a eficiência total dos picos e da abordagem de Delft (BLAAUW, 1993a e 1993b), que é usada para o ajuste da curva de eficiência, sabendo a eficiência total dos picos e levando em conta o efeito soma em cascata.

Originalmente, o método k_0 foi baseado na Convenção de Högdahl. Blaauw adaptou essa convenção, removendo todas as referências da energia de corte do cádmio das formulas do k_0 (BLAAUW *et al.*, 1991).

O programa k_0 -IAEA leva em conta as reações *threshold*, tipo [(n,p), (n,2n), (n, α), ...]. Qualquer número de espectros de amostras obtidas após qualquer número de irradiações podem ser interpretadas simultaneamente com o programa, uma vez que utiliza o método de interpretação holística (BLAAUW, 1993b e 1994). O programa utiliza todos os monitores de fluxo para encontrar os parâmetros aplicáveis a uma amostra em particular ajustando uma linha reta, ou se necessário uma hipérbole, para os valores dos parâmetros observados em função da posição no recipiente de irradiação.

Um roteiro e um vídeo para utilizar o programa k_0 -IAEA estão descritos nos ANEXO 1 e 2.

4. MATERIAIS E MÉTODOS

4.1 Determinação das curvas de eficiência de detecção dos raios gama em detector de Ge hiperpuro

Para a determinação das curvas de eficiência de detecção dos raios gama utilizando o programa k_0 -IAEA foi necessário, primeiramente, descrever minuciosamente a geometria de contagem do sistema de espectrometria gama (FIG. 4.1) utilizado nas medidas, pois o programa leva em conta medidas como o tamanho do cristal, as dimensões do porta amostra de lucite onde a amostra é medida, as dimensões do porta amostra de aço inox (panelinha), as distâncias, do suporte de lucite, da fonte até o cristal entre outros parâmetros, como é visto nas FIG. 4.2 a 4.5, e na TAB. 4.1. A FIG. 4.6 mostra como a caracterização foi inserida na base de dados permanente do programa k_0 -IAEA.

Foram construídas as curvas de eficiência do detector de Germânio hiperpuro, chamado Canberra 3, modelo GX2020, número de série 3975069, Criostato Modelo 7500SL, com resolução de 1,14 keV para o pico de 122,06 keV do ^{57}Co e 2,07 keV para o pico de 1332,5 keV do ^{60}Co , ligado a uma placa multicanal, S100, em um microcomputador disponível no LAN-IPEN. O software de aquisição e análise utilizado foi o *Genie 2000 Virtual Data Manager*.

O microcomputador existente apresentava variação no horário na sua configuração, assim, durante a realização do trabalho foi substituído esse aparelho por outro no qual não apresentava esse problema.



FIGURA 4.1 – Sistema de espectrometria gama (Canberra 3)

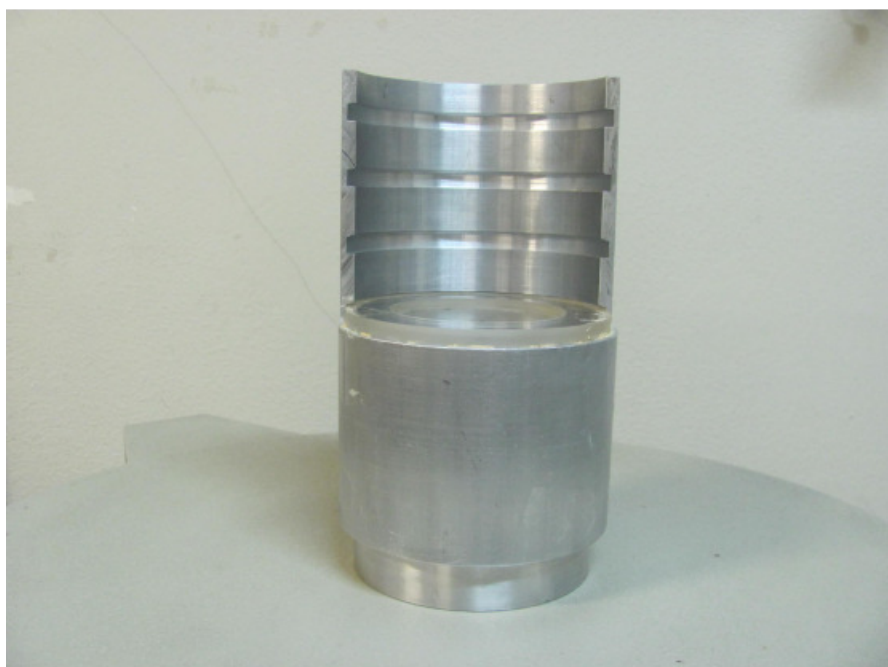


FIGURA 4.2 – Suporte utilizado nas medidas com diferentes posições/prateleiras de contagem

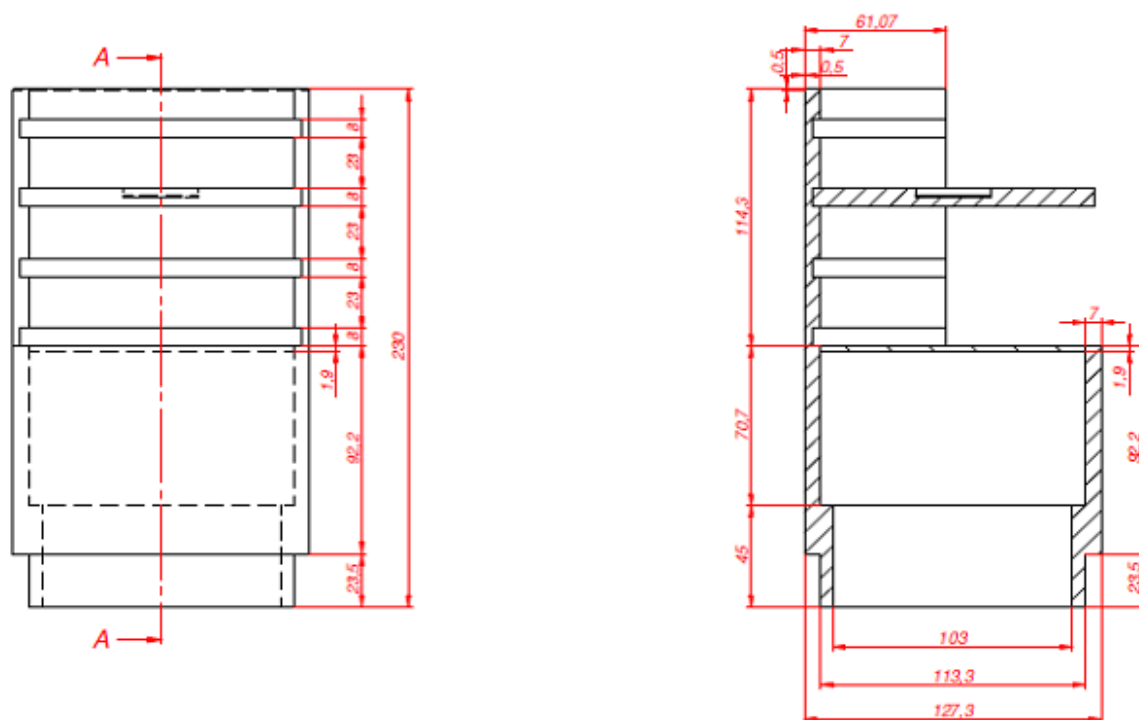


FIGURA 4.3 – Dimensões (mm) do suporte das prateleiras

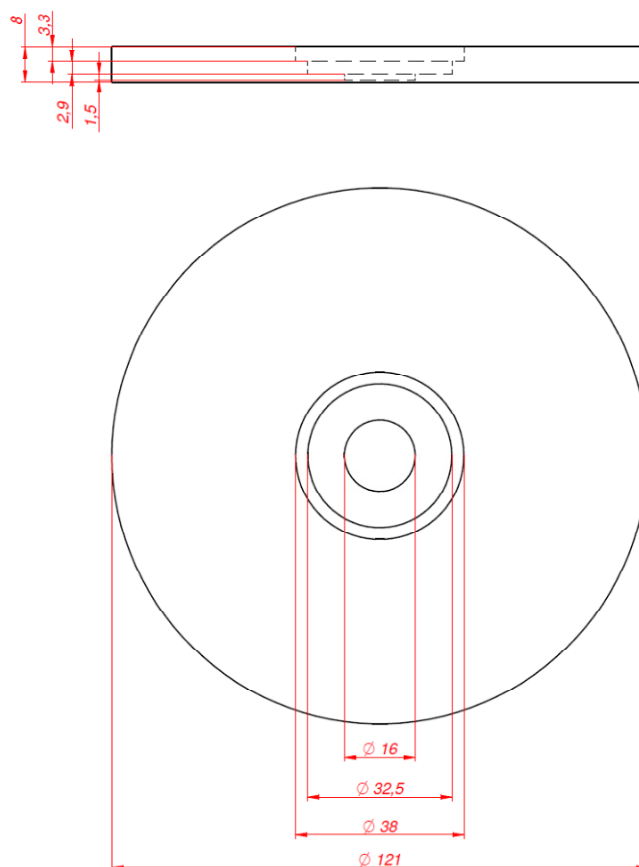


FIGURA 4.4 – Porta amostras de lucite com degrau em mm

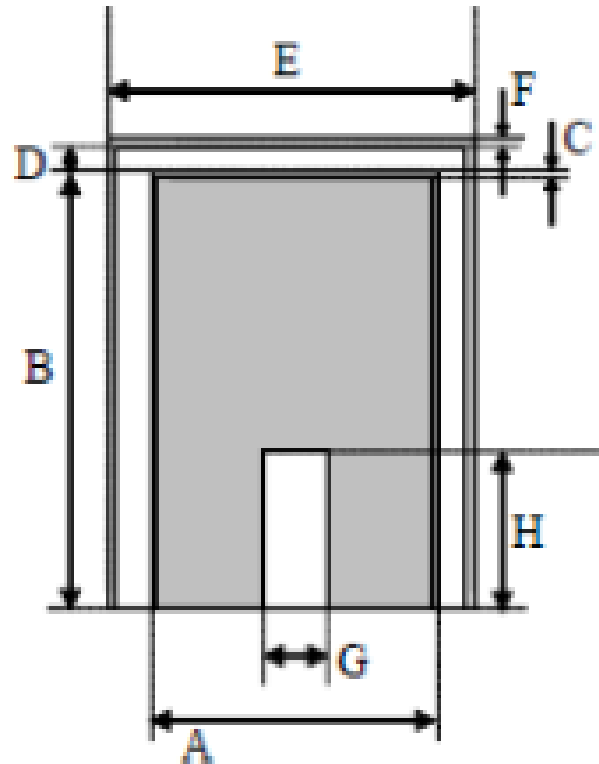


FIGURA 4.5 – Dimensões do detector (k_0 -IAEA, 2007)

TABELA 4.1 – Dimensões do detector de germânio hiperpuro do sistema de espectrometria gama Canberra3. As medidas de A até H são referentes às dimensões da FIG. 4.5

Dimensões (mm)		
A	Diâmetro do cristal	53
B	Comprimento do cristal	45
C	Espessura da Camada morta	0,71
D	Distância da tampa até o cristal	5
E	Diâmetro da tampa superior	75
F	Espessura da tampa superior	2,87
G	Diâmetro do núcleo	7,5
H	Altura do núcleo	30

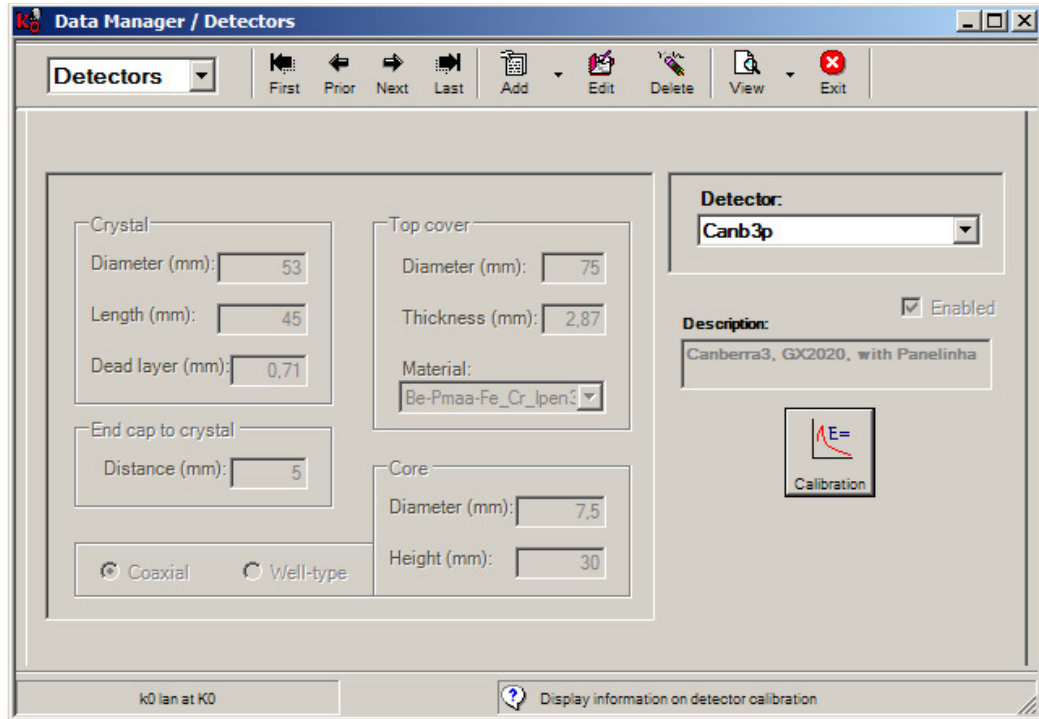


FIGURA 4.6 - Dimensões do sistema Canberra3 no programa k₀-IAEA

O segundo passo foi medir as atividades de fontes radioativas de energias de raios gama e atividades conhecidas. As fontes foram medidas na posição 3 (posição referência), com o suporte de lucite com degrau e com o porta-amostra de aço inox, e a radiação de fundo foi medida com o suporte de lucite para a posição zero sem fonte de calibração, com o porta amostra de aço inox colocada na posição 0, como mostra a TAB. 4.2.

TABELA 4.2 - Posição e tempo de contagem das fontes para calibração

Fonte	Prateleira	Tempo
¹³⁷ Cs	3	1200s
¹⁵² Eu	3	5400s
Background	---	15h

TABELA 4.3 - Distância da fonte até o cristal nas diversas prateleiras do detector Canberra 3

Prateleira	Distância do detector (mm)
0	8,5 ± 0,05
1	35,4 ± 0,05
2	66,4 ± 0,05
3	94,8 ± 0,05

O detector utilizado possui quatro posições de medida, como mostram as FIG. 4.2 e 4.3. As fontes utilizadas foram ^{137}Cs (Certificado n° AI-010/91, n° de referência 37044, data 01/10/1991, atividade 75200 ± 1880 Bq, IPEN-CNEN/SP) e ^{152}Eu (Certificado n° AI-023/97, n° de referência 52036, data 01/09/1997, atividade 7580 ± 227 Bq, IPEN-CNEN/SP). Essas fontes permitem determinar a curva de eficiência do espectro de raios gama. A curva de eficiência, ajustada por meio do programa k_0 -IAEA, a uma distância do detector de 94,8cm para o Canberra 3, está apresentada na FIG. 4.7.

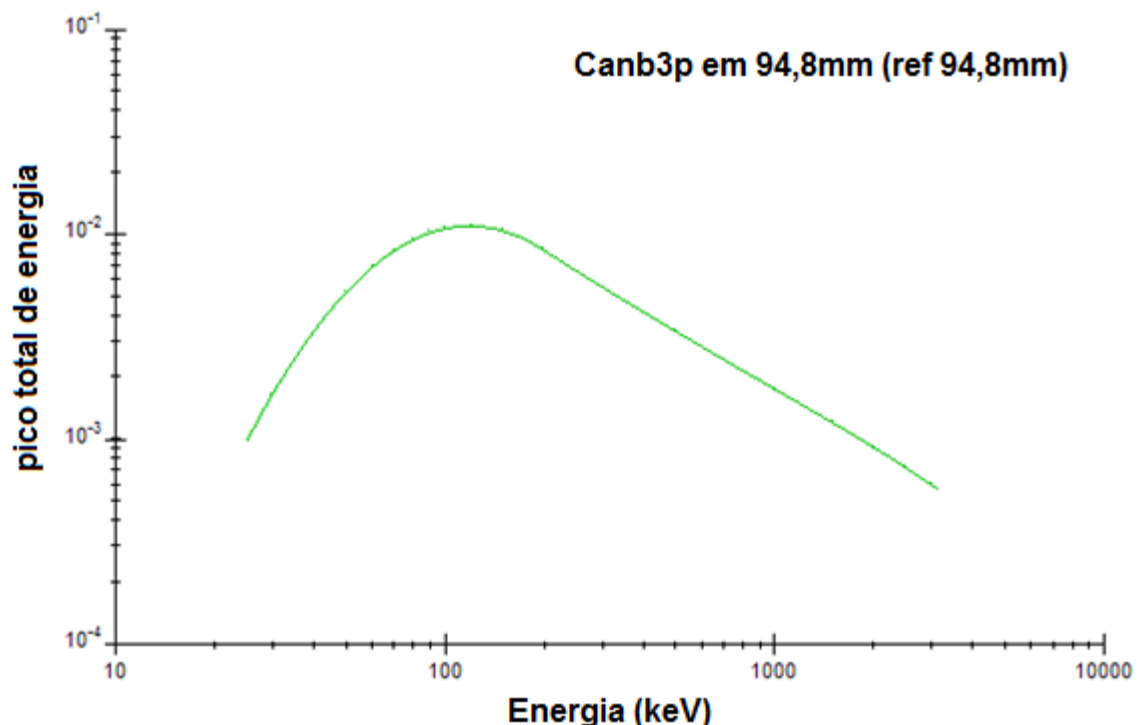


FIGURA 4.7 - Curva de eficiência para o sistema de espectrometria gama Canberra 3 (94,8 mm do detector) pelo programa k_0 -IAEA

4.2 Descrição do reator nuclear IEA-R1

O reator IEA-R1 é um reator nuclear de pesquisa do tipo piscina, contendo 273 m^3 de água desmineralizada, com moderação e refrigeração a água leve, utilizando como refletores berílio e grafite e operando com potência máxima de 5 MW. A piscina tem cerca de 9 m de profundidade, por 3 m de largura e 11 m de comprimento (GONÇALVES, 2006).

O núcleo do reator encontra-se dentro da piscina e está montado em uma placa motriz com oitenta orifícios, na qual é possível que os combustíveis sejam dispostos em vários arranjos experimentais (FIG. 4.8). Essa placa motriz é sustentada por uma treliça conectada a uma plataforma móvel, onde estão montados os quatro mecanismos de acionamento das barras e detectores que enviam sinais para a mesa de controle (BUENO, 2006).

A FIG. 4.10 mostra o mapa de configuração do núcleo do reator IEA-R1, durante as irradiações realizadas no presente trabalho. Para este estudo, foi escolhida a posição de irradiação Posição 24B/Prateleira 2. A potência utilizada durante as irradiações efetuadas no presente trabalho foi 4,5MW.

Para irradiações longas, períodos maiores que 5 minutos, as amostras com até 1 grama são pesadas em envelopes de polietileno e encapsuladas em coelhos de cilíndricos alumínio (FIG. 4.9) e irradiadas nos dispositivos de irradiação do reator IEA-R1.

De acordo com uma conversa pessoal realizada com o funcionário Tonicarlos de Lima, responsável pelas irradiações do reator IEA-R1, para correção do tempo de irradiação é necessário acrescentar em 15s. Esse tempo é referente à locação da amostra na prateleira (10s) e da retirada da amostra da prateleira (5s). Esse é um valor estimado podendo variar conforme o operador¹.

¹ Lima, T. Comunicação pessoal, 2013.

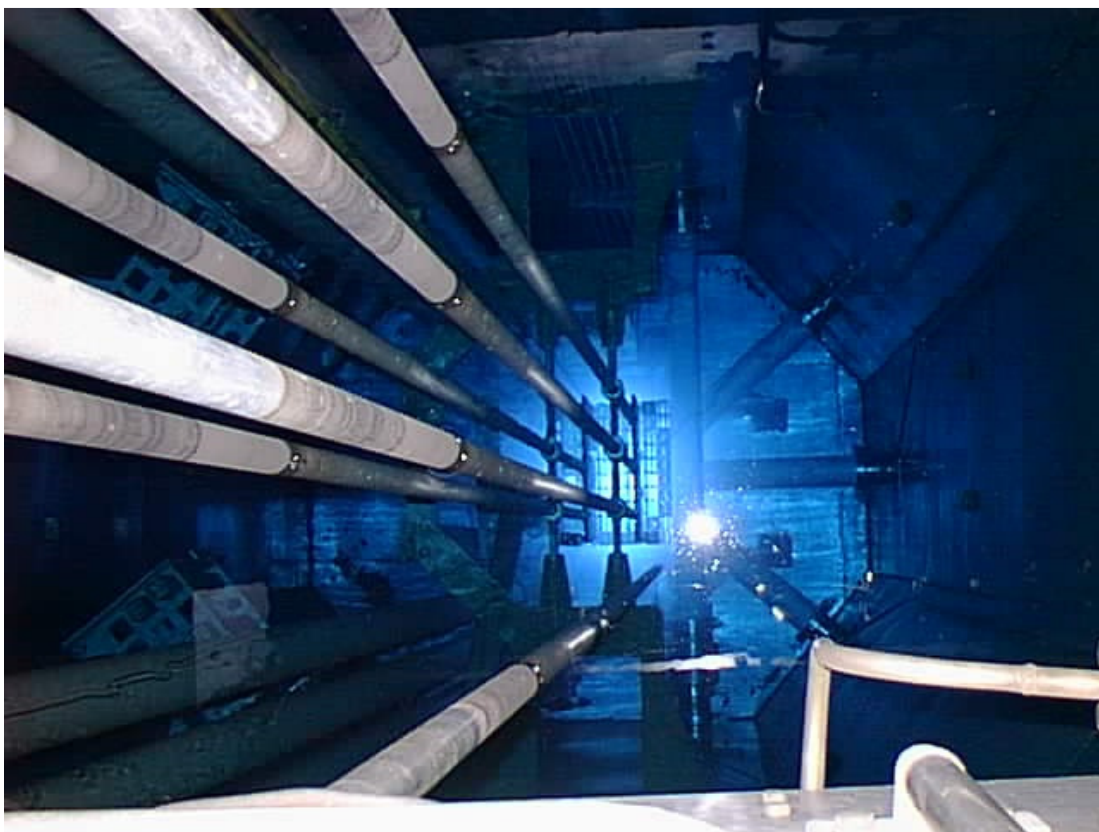


FIGURA 4.8 - Reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP



FIGURA 4.9 – Recipiente de irradiação utilizado na para irradiações longas no núcleo do reator IEA-R1

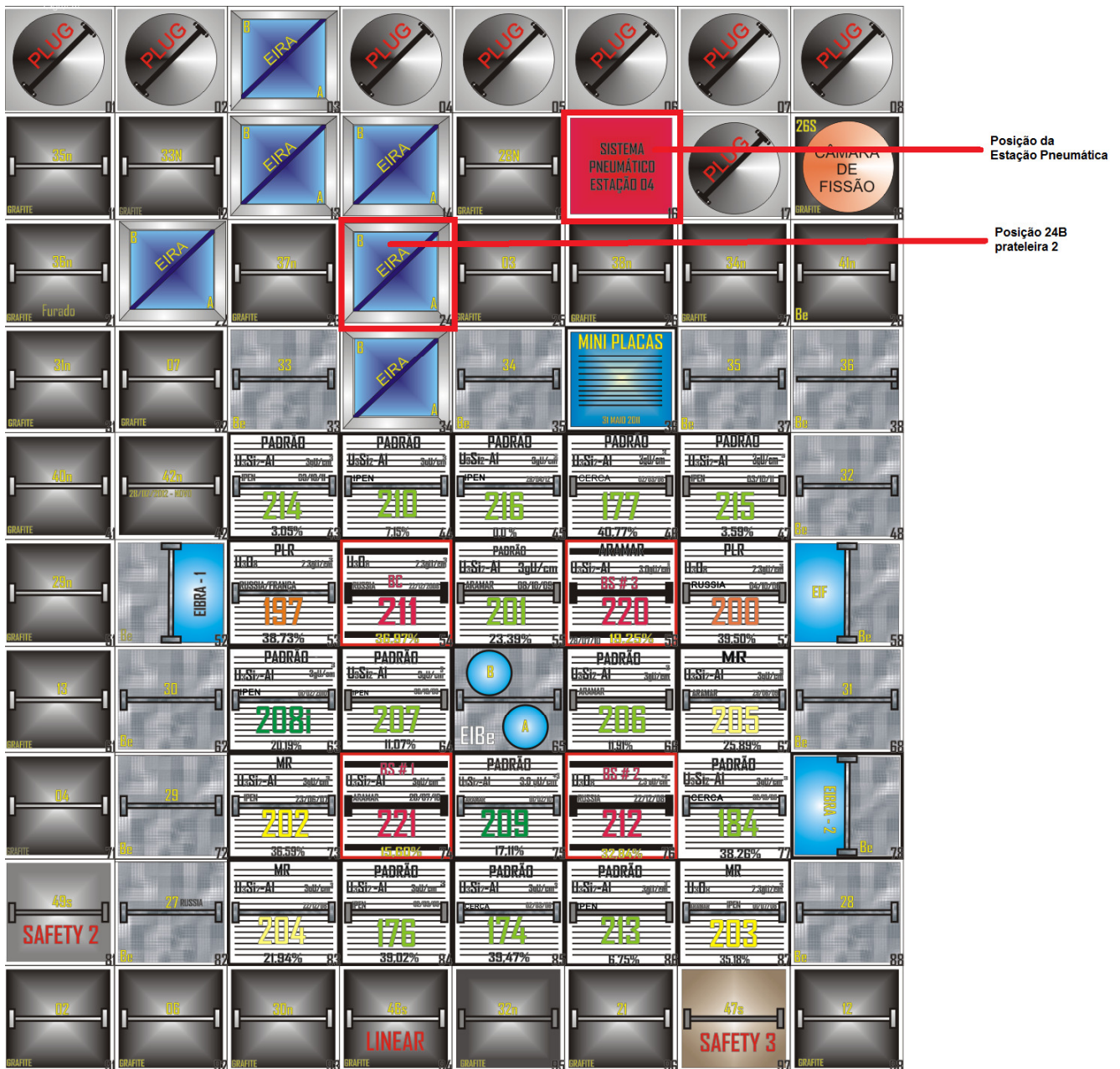


FIGURA 4.10 – Mapa da configuração do núcleo do reator IEA-R1. Estão em destaque a posição 24B prateleira 2 e a posição da estação pneumática, utilizada neste trabalho

4.2.1 Estação pneumática de irradiação

O reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP possui uma estação pneumática para irradiações de curta duração. Esse tempo pode ser de alguns segundos a 5 minutos no máximo. A estação é ligada ao reator por meio de um tubo pneumático (FIG. 4.11). As amostras são enviadas para irradiação pneumaticamente e são trazidas após a irradiação automaticamente. O tempo de

transferência entre a estação e a posição de irradiação é de aproximadamente 12s em recipientes de irradiação (coelhos) de polietileno (FIG. 4.12). Na estação pneumática, amostras de diversas matrizes, com massa de até 1g, são pesadas em envelopes de polietileno (saquinhos) e encapsuladas nos coelhos cilíndricos de polietileno e enviadas para irradiação. No presente estudo foi feito um sanduíche, envolto com papel, contendo uma amostra biológica e um monitor de ouro (FIG. 4.13 e 4.14).

A particularidade dessa estação pneumática é o fato de que o efetivo tempo de irradiação é defasado em 2s; ou seja para obter um tempo de irradiação de 30s é necessário colocar no temporizador 32s. Isso ocorre pois a amostra ao acionar o sensor, o qual instantaneamente indica ao temporizador o tempo de início da irradiação, percorre aproximadamente de 2s para chegar ao centro da posição de irradiação. Depois que a amostra sai da posição de irradiação é desarmado instantaneamente o sensor do temporizador, assim não existindo a necessidade de colocar mais 2s para correção do tempo de irradiação.



FIGURA 4.11 – Sistema pneumático de irradiação de amostras no reator IEA-R1 (MARIANO, 2012)



FIGURA 4.12 – Recipiente de irradiação utilizado na estação pneumática do reator IEA-R1

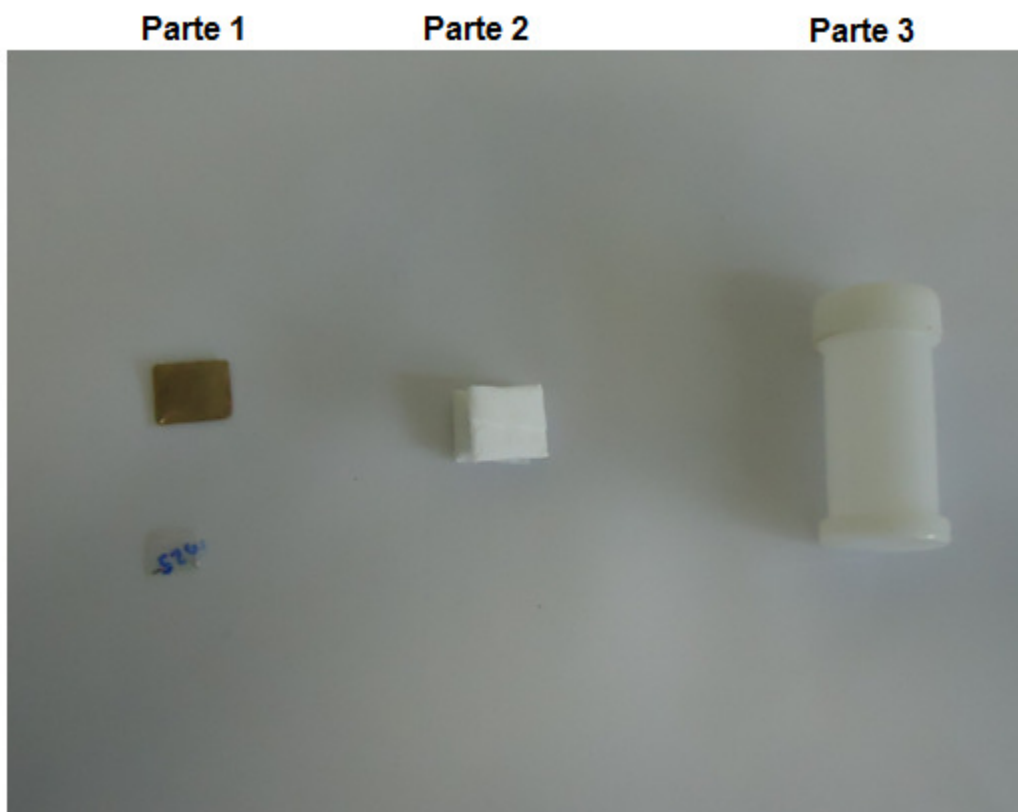


FIGURA 4.13 – Sequência para obter o “sanduíche” irradiado na estação pneumática do reator IEA-R1. Primeira parte mostra a amostra biológica e o monitor de ouro; a segunda parte mostra o monitor e a amostra envoltos no papel; e a terceira parte mostra ambos contidos no recipiente de polietileno.

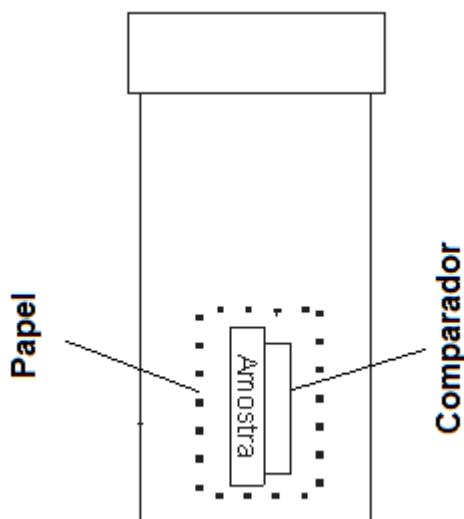


FIGURA 4.14 – Vista interna do recipiente de polietileno com a amostra biológica e os monitor de ouro.

4.3 Determinação dos parâmetros de fluxo

Para se determinar os parâmetros α e f para a estação pneumática e para a posição 24B prateleira 2 do reator nuclear IEA-R1, foram utilizados os monitores certificados de Zr 0,25 mm de espessura e 99,8% de pureza (Zr-foil), produzido por *Aldrich Chemical Company*, cortado em formato de disco, juntamente com um fio de uma liga Al-0,1%Au (Certified Reference Material IRMM-530R), de 1 mm de diâmetro. Os tempos de irradiação e massas dos monitores foram:

- ✓ Estação pneumática: tempo de irradiação 2 minutos; massa dos monitores Zr (44,72 mg) e Au (8,56 mg). As medidas foram realizadas após 2 horas do início da irradiação.
- ✓ Posição 24B prateleira 2: tempo de irradiação 4 horas; massa dos monitores Zr (44,61 mg) e Au (7,88 mg). As medidas foram realizadas após 2 dias do início da irradiação.

Após tempos de decaimento apropriados, os monitores foram medidos no detector HPGe, caracterizado, chamado Canberra3. Todas as medições foram

realizadas na posição referência do detector, 94,8mm. Este valor é referente à distância da fonte até o cristal do detector (TAB. 4.3).

Após as medidas, os espectros foram introduzidos no programa k_0 -IAEA e analisados; posteriormente, o programa k_0 -IAEA calculou os parâmetros α e f .

A temperatura neutrônica foi determinada pela irradiação de 3 mg de uma folha de Lu de 0,1016 mm de espessura e 99,963% de pureza (*Reactor Experiments, Inc.*) (MARIANO, 2011). Os dados nucleares das três reações nucleares $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$, e $^{94,96}\text{Zr}(n, \gamma)^{95,97}\text{Zr}$ estão resumidos na TAB. 4.4.

TABELA 4.4 – Dados nucleares usados na caracterização do fluxo de nêutrons (DE CORTE e SIMONITS, 2003).

Reação Nuclear	Q_0 (σ , %)	E_r (eV)	$T_{1/2}$	E_γ (keV)	$k_{(0,Au)}$ (σ , %)
$^{94}\text{Zr}(n, \gamma)^{95}\text{Zr}$	5,31 (3,3)	6260	64,02 dias	724,2 + 756,7	2,00E-4 (1,2)
$^{96}\text{Zr}(n, \gamma)^{97}\text{Zr}$	251,6 (1)	338	16,74 horas	743,4	1,24E-5 (0,3)
$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	15,7	5,65	2,69 dias	411,8	1

Os tempos de irradiação e decaimento foram cuidadosamente controlados, pois esses parâmetros são muito significativos no método do k_0 -INAA, principalmente quando se trata de irradiações curtas. Várias medidas foram realizadas de modo a se obter um conjunto de espectros adequado para o cálculo dos parâmetros f and α pelo programa k_0 -IAEA. Após as medidas, os dados foram introduzidos no programa k_0 -IAEA e analisados.

No programa k_0 -IAEA, os monitores de Al-0,1%Au e Zr são medidos juntos, como uma única liga, colocados um sobre o outro no porta-amostra de aço inox. As TAB. 4.5 e 4.6 mostram como foram realizados os cálculos dessa única liga de Zr e Au, para a irradiação na Estação Pneumática e para Posição 24B/Prateleira 2. A quantidade do elemento é calculada pelo produto da multiplicação da massa pela pureza (concentração); a concentração de referência em mg/kg é obtida pelo quociente da divisão da quantidade pela massa total multiplicado pelo fator 10^6 . O valor da concentração de referência em mg/kg é

utilizado para o cadastramento do material certificado no programa k_0 -IAEA (FIG. 4.15 e 4.16).

Em outros trabalhos, tem-se utilizado alguns tipos de mistura de monitores, como o par ^{51}Cr - $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ com período de período de semi-desintegração de 27,69 dias e 66,02 horas respectivamente (HERRERA *et al.*, 1992), bem com a mistura ^{60}Co - ^{99}Mo - ^{198}Au , com período de semi-desintegração de 5,27 anos, 66,02 horas e 2,69 dias (MONTTOYA *et al.*, 2009). Para a caracterização dos valores de α , f , e temperatura neutrônica, foi utilizado o comparador com Au e Zr na estação pneumática e na posição 24B/prateleira 2.

TABELA 4.5 – Concentração dos monitores para irradiação na estação pneumática.

Monitor	Massa (mg)	Elemento	Concentração	Quantidade (mg)	Concentração de Referência (mg/kg)
Au	8,56	Au	0,100%	0,00856	161
		Al	99,900%	8,55144	160770
Zr	44,72	Zr	99,800%	44,63056	839069
Massa total				53,19056	

TABELA 4.6 – Concentração dos monitores para irradiação na posição 24B prateleira 2.

Monitor	Massa (mg)	Elemento	Concentração	Quantidade (mg)	Concentração de Referência (mg/kg)
Au	7,88	Au	0,100%	0,00788	150
		Al	99,900%	7,87212	150229
Zr	44,61	Zr	99,800%	44,52078	849621
Massa total				52,40078	

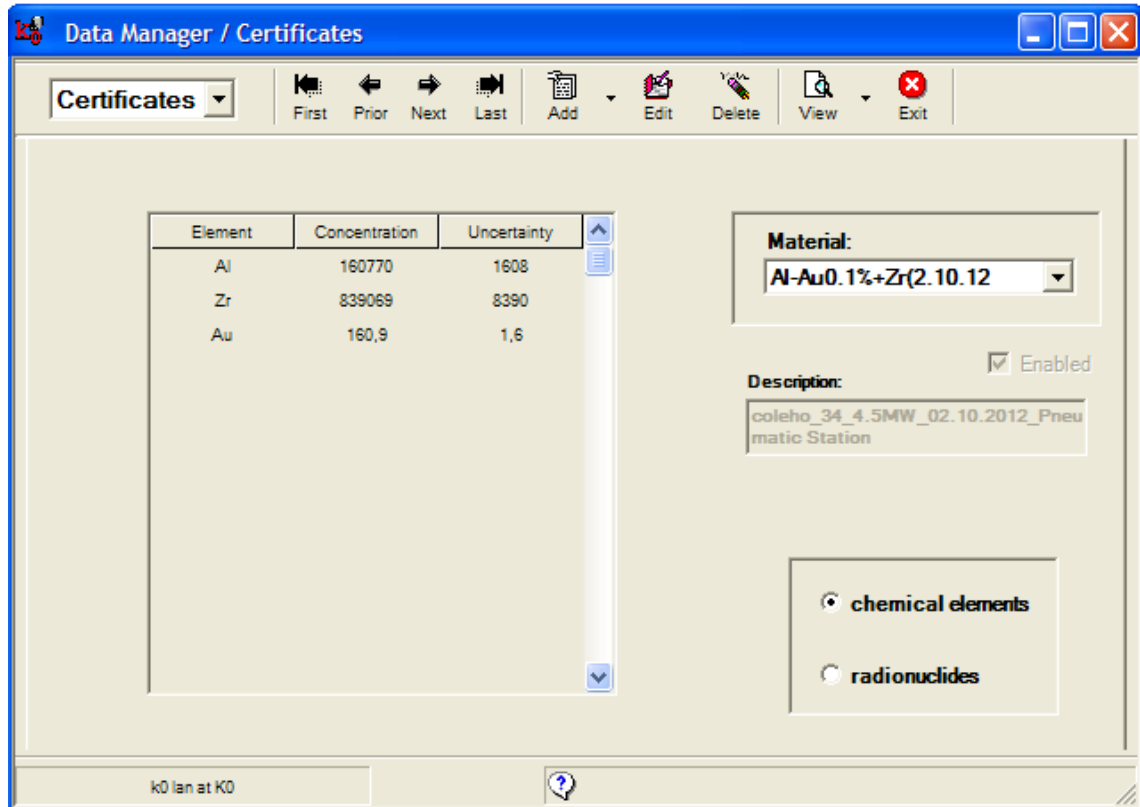


FIGURA 4.15 – Monitores de Au+Zr da estação pneumática cadastrados na base de dados permanente do programa k_0 -IAEA.

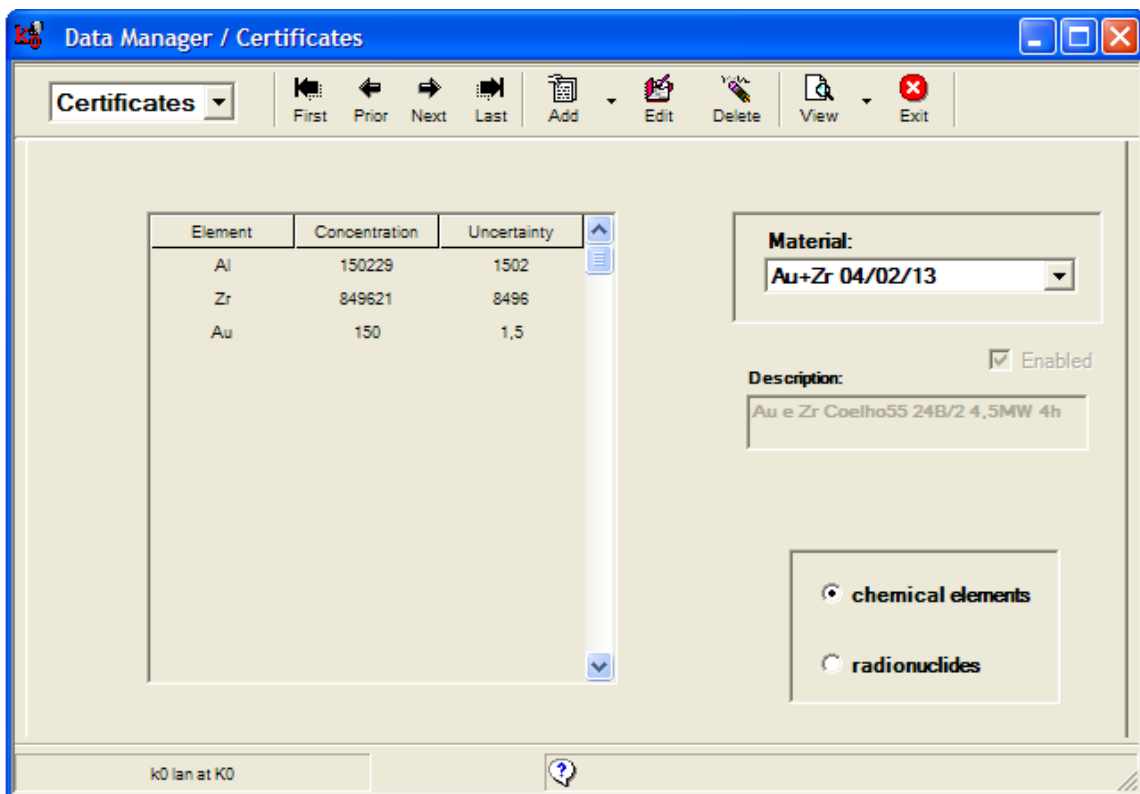


FIGURA 4.16 – Monitores de Au+Zr da posição 24B/prateleira 2 cadastrados na base de dados permanente do programa k_0 -IAEA.

4.4 Análise dos materiais de referência

Os materiais biológicos de referência (cerca de 150mg) SRM 1547 Peach Leaves, INCT-MPH-2 Mixed Polish Herbs e SRM 1573a Tomato Leaves foram irradiados juntamente com cerca de 8 mg do monitor de Al-0,1%Au na estação pneumática do reator e na posição 24B/prateleira 2 do IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP. A porcentagem de umidade dos materiais de referência foi determinada conforme as informações contidas nos certificados dos materiais de referência e, no cálculo da concentração pelo método do k_0 , foi feita a correção para a massa seca. Os valores discriminados nas TAB. 5.4 a 5.6 foram obtidos através de seis análises em repetição de cada material de referência. Na estação pneumática, o tempo de irradiação das amostras foi de 60 segundos. Para a contagem dos materiais de referência biológicos e monitores, irradiados na estação pneumática, foram realizadas medidas sistemáticas conforme apresentado na TAB. 4.7, para melhor reprodutibilidade dos resultados.

Na irradiação das amostras para a obtenção de elementos que originam radionuclídeos de meia-vida longa, foram estabelecidas 10 horas como tempo de irradiação e duas séries de medidas da atividade induzida. Para a contagem dos materiais de referência biológicos e monitores, foram realizadas medidas sistemáticas conforme apresentado na TAB. 4.8, para melhor reprodutibilidade dos resultados.

Para a irradiação de cada amostra, na posição 24B/ prateleira 2, foi realizado o seguinte procedimento (FIG. 4.18 e 4.19):

- ✓ As amostras biológicas e os monitores de ouro foram pesados em envelopes de polietileno (FIG. 4.17);
- ✓ Envolveram-se cada um desses materiais em folha de alumínio;
- ✓ Posteriormente foram empilhados esses materiais, envolvendo-os com folha de alumínio, intercalando as amostras biológicas e os monitores de ouro um a um em formato de sanduíche.
- ✓ Por fim, foi alocado esse sanduíche no coelho de alumínio.



FIGURA 4.17 – Materiais certificados biológicos e monitores pesados em envelopes de polietileno.

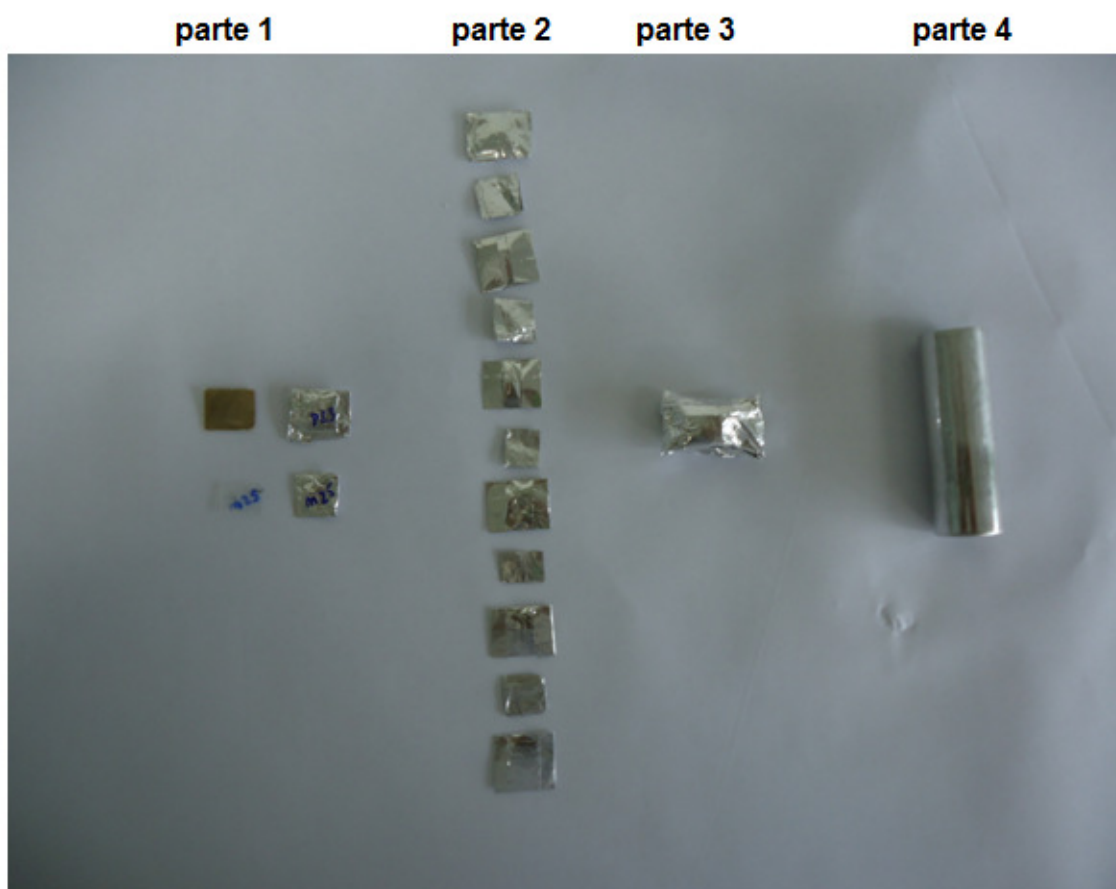


FIGURA 4.18 – Sequência para obter o “sanduíche” irradiado na posição 24B/prateleira 2 do reator IEA-R1. Primeira parte mostra a amostra biológica e o monitor de ouro envoltos na folha de alumínio; a segunda parte mostra as 6 amostras biológicas intercaladas com os 5 monitores de ouro; e a terceira parte mostra todos os materiais envoltos na folha de alumínio e a quarta parte mostra o sanduíche contido no recipiente de alumínio.

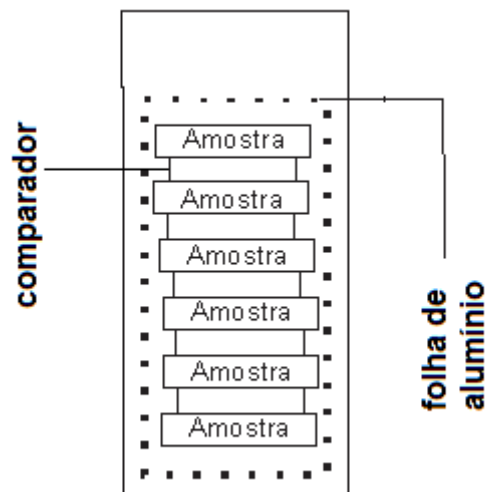


FIGURA 4.19 – Vista interna do recipiente de alumínio com as amostras biológicas e os monitores de ouro

TABELA 4.7 – Condições de contagem dos elementos irradiados na estação pneumática

	Início da contagem após a irradiação	Tempo de contagem
Material Biológico Certificado	5min	240s
Material Biológico Certificado	15min	600s
Material Biológico Certificado	30 min	900s
Monitor de Au	2h	7200s
Material Biológico Certificado	12h	10800s

TABELA 4.8 – Condições de contagem dos elementos irradiados na posição 24B/prateleira 2

	Início da contagem após a irradiação	Tempo de contagem
Material Biológico Certificado	5 a 7 dias (1ª contagem)	7200s
Monitor de Au	5 a 7 dias (1ª contagem)	3600s
Material Biológico Certificado	10 a 15 dias (2ª contagem)	7200s

4.5 Avaliação estatística dos resultados obtidos para os materiais de referência

Para avaliar os resultados obtidos nesse trabalho, os valores encontrados foram comparados aos valores recomendados, utilizando três critérios: *Coeficiente de Variação (CV)*, para avaliar a reprodutibilidade do método, *Erro relativo (bias, %)* e o teste *U-score* (para os elementos que possuíam valores certificados), para avaliação da exatidão do método.

A seguir, será feita uma descrição mais detalhada destes critérios estatísticos.

4.5.1 Erro relativo (*bias*, %), coeficiente de variação (*CV*) e teste *U-score*

A exatidão, definida como a concordância entre o valor real do analito na amostra e o estimado pelo processo analítico (FRANCOTTE *et al.*, 1996; BRITO *et al.*, 2001; GONZÁLES *et al.*, 1999), constitui a chave para o propósito da validação de um método. Neste trabalho, a exatidão foi avaliada por meio do erro relativo (*bias*, %) de acordo com a expressão (52).

$$bias, \% = \frac{|x_{lab} - x_{cert}|}{x_{cert}} \times 100 \quad (52)$$

onde:

x_{Lab} – valor obtido com a média aritmética das replicatas

x_{cert} – valor certificado no material de referência

O parâmetro que avalia as proximidades entre várias medidas efetuadas na mesma amostra é a precisão do processo analítico (BRITO *et al.*, 2005). Usualmente, é expressa como o desvio-padrão, variância ou coeficiente de variação de diversas medidas (HUMBERT *et al.*, 1999; PERSSON STUBBERUD

e ASTROM, 1998). O coeficiente de variação (*CV*) ou desvio padrão relativo é dado pela expressão (53).

$$CV (\%) = \left(\frac{s}{\bar{x}} \right) \quad (53)$$

onde:

s – valor do desvio padrão das replicatas

\bar{x} – valor da média aritmética das replicatas.

Segundo WOOD, (1999), o desvio padrão relativo está relacionado com o nível de concentração do analito na amostra. Valores previstos da reprodutibilidade (*Horwitz values*) podem ser calculados pela equação de Horwitz (54), que estabelece para qualquer método e qualquer matriz ou analito (PASCHOAL *et al.*, 2008):

$$RSD_R = 2^{(1-0,5\log C)} \quad (54)$$

onde:

C – valor da concentração do analito.

Desse modo, substituindo-se os níveis de concentração nessa equação, obtêm-se os valores de RSD_R apresentados na TAB 4.9.

TABELA 4.9 – Valores de Horwitz para diferentes faixas de concentração (WOOD, 1999)

Faixa de concentração	RSD_R
1 (100%)	2
10^{-1}	2,8
10^{-2} (1%)	4
10^{-3}	5,6
10^{-4}	8
10^{-5}	11
10^{-6} (ppm)	16

10^{-7}	23
10^{-8}	32
10^{-9} (ppb)	45

Ainda que esses valores representem um valor médio de RSD_R (Horwitz chegou a esses valores considerando cerca de 3000 ensaios interlaboratoriais) e que sejam uma aproximação da precisão possível de ser atingida, considera-se como aceitáveis os desvios que sejam menores que o dobro do valor teórico de RSD_R para a concentração de interesse. Utiliza-se do chamado valor de HORRAT, para se ter uma medida da aceitabilidade da precisão de um método.

O valor de HORRAT é dado por (55):

$$Ho_R = RSD_R \text{ do método} / (RSD_R \text{ teórico}) \quad (55)$$

Assim, se Ho_R for menor ou igual a 2, o método pode ser considerado como satisfatoriamente reproduzível (WOOD, 1999).

No caso do teste *U-score* (BROOKES *et al.*, 1979; SHAKHASHIRO *et al.*, 2006), a avaliação inclui as incertezas experimentais e dos valores recomendados em um nível de confiança de 95% ($\pm 2s$). Este teste foi estabelecido como mais apropriado para as análises dos dados dos elementos que possuíam valores certificados, pois esse teste contempla os valores obtidos experimentalmente e os valores certificados, bem como as incertezas a eles associadas.

Nos materiais de referência analisados, a incerteza informada pelo certificado é de $\pm 2s$, enquanto o valor da incerteza obtida através do programa k_0 -IAEA é de $\pm 1s$. O *U-score* é dado pela expressão (56).

$$U = \frac{|x_{Lab} - x_{cert}|}{\sqrt{U_{Lab}^2 + U_{cert}^2}} \quad (56)$$

onde:

x_{lab} – valor obtido com a média aritmética das replicatas;

x_{cert} – valor informado no material certificado;

U_{Lab} – valor da incerteza expandida das replicatas, obtida através da multiplicação da incerteza obtida no laboratório por 2;

U_{cert} – valor da incerteza expandida do material certificado.

O teste *U-score* estabelece que:

$U < 2,58$ nível de confiança de 99,5%;

$U < 1,96$ nível de confiança de 95%

5. RESULTADOS E DISCUSSÃO

5.1 Valores de f e α para as posições de irradiação utilizadas

Os parâmetros de fluxo obtidos para a estação pneumática do IPEN foram determinados pelo programa k_0 -IAEA (TAB. 5.1) e também pelo programa KayWin (TAB. 5.2), trazido pelo Dr. Radojko Jacimovic, do Instituto Jozef Stefan - Eslovênia, em visita realizada ao LAN-IPEN no período de 13 a 31 de agosto de 2012. Como podemos verificar, os valores obtidos não apresentaram diferenças significativas. Para a razão entre o fluxo térmico e epitérmico (parâmetro f), a contribuição do espectro de nêutrons epitérmicos é significativa. Os valores obtidos para o parâmetro alfa são positivos, indicando um espectro de nêutrons epitérmicos "suave". Valores positivos para o parâmetro alfa também indicam uma boa termalização (DE CORTE, 1987b). Para a posição de irradiação 24B, os valores obtidos (TAB. 5.3) indicam que a contribuição epitérmica é menos significativa. As FIG. 5.1 e 5.2 mostram como esses valores foram inseridos no programa k_0 -IAEA.

TABELA 5.1 - Dados da caracterização da estação pneumática. Reator a potência crítica de 4,5MW. Valores obtidos com o programa k_0 -IAEA.

Parâmetros	Valores
Fluxo de nêutrons térmicos, ϕ_{th} ($m^{-2} s^{-1}$)	$(1,82 \pm 0,05) \cdot 10^{16}$
Fluxo de nêutrons rápidos, ϕ_{fast} ($m^{-2} s^{-1}$)	$(3,66 \pm 0,37) \cdot 10^{15}$
Temperatura neutrônica, T_n , (K)	310 ± 5
Razão fluxo térmico epitérmico, f	$35,6 \pm 1,1$
Desvio da distribuição do fluxo de nêutrons epitérmicos da lei ideal $1/E$, α	$0,0288 \pm 0,0058$

TABELA 5.2 - Dados nucleares da estação pneumática. Reator a potência crítica de 4,5MW. Valores obtidos com o programa Kayzero for Windows

Parâmetros	Valores
Fluxo de nêutrons térmicos, ϕ_{th} ($m^{-2} s^{-1}$)	$(1,88 \pm 0,09) \cdot 10^{16}$
Fluxo de nêutrons rápidos, ϕ_{fast} ($m^{-2} s^{-1}$)	$(3,66 \pm 0,37) \cdot 10^{15}$
Temperatura neutrônica, T_n , (K)	310 ± 5
Razão fluxo térmico epitérmico, f	$39,46 \pm 1,97$
Desvio da distribuição do fluxo de nêutrons epitérmicos da lei ideal $1/E$, α	$0,0158 \pm 0,0063$

TABELA 5.3 - Dados nucleares da posição de irradiação 24B prateleira 2. Reator a potência crítica de 4,5MW. Valores obtidos com o programa k_0 -IAEA

Parâmetros	Valores
Fluxo de nêutrons térmicos, ϕ_{th} ($m^{-2} s^{-1}$)	$(8,51 \pm 0,09) \cdot 10^{16}$
Fluxo de nêutrons rápidos, ϕ_{fast} ($m^{-2} s^{-1}$)	$(4,00 \pm 0,20) \cdot 10^{15}$
Temperatura neutrônica, T_n , (K)	310 ± 5
Razão fluxo térmico epitérmico, f	$62,75 \pm 6,03$
Desvio da distribuição do fluxo de nêutrons epitérmicos da lei ideal $1/E$, α	$0,034 \pm 0,010$

The screenshot shows the 'Data Manager / Facilities' window. It contains several sections for data entry:

- Facilities:** A dropdown menu showing 'PS-Ipen 1'.
- Thermal neutrons:** Flux (m-2 s-1) = 1,8191E+16; Unc. (m-2 s-1) = 5,46E+14.
- Fast neutrons:** Flux (m-2 s-1) = 3,66E+15; Unc. (m-2 s-1) = 3,66E+14.
- Temperature (K):** 310; Unc. (K): 5.
- Characterization enabled:** Checked.
- Epithermal neutrons:** Ratio (f): 35,6; Unc.: 1,07; Alpha: 0,0288; Unc.: 0,0058.
- Irradiation facility:** PS-Ipen 1.
- Description:** ipen 28-08-2012 (Enabled).
- Facility characterization:** 28/ago/2011.

At the bottom, there is a status bar showing 'k0 Ipn at K0' and a reference date for neutron flux characterization.

FIGURA 5.1 – Imagem do programa k_0 -IAEA com os dados da caracterização da estação pneumática. Reator a potência crítica de 4,5MW.

The screenshot shows the 'Data Manager / Facilities' window. It contains several input fields and checkboxes. The 'Thermal neutrons' section has 'Flux (m-2 s-1)' at 8,513913E+16 and 'Unc. (m-2 s-1)' at 1,929179E+1. The 'Fast neutrons' section has 'Flux (m-2 s-1)' at 4E+15 and 'Unc. (m-2 s-1)' at 2,001445E+1. The 'Epithermal neutrons' section has 'Ratio (f)' at 62,74758, 'Unc.' at 6,030736, 'Alpha' at 0,034, and 'Unc.' at 0,01. The 'Temperature (K)' is 310 and 'Unc. (K)' is 5. The 'Irradiation facility' dropdown is 'Fluxo_24B_04/02/13'. The 'Description' field is 'Fluxo posição 24B prateleira 2'. The 'Facility characterization' dropdown is '04/fev/2013'. At the bottom, there is a 'k0 lan at K0' button and a 'Select neutron flux characterization' button.

FIGURA 5.2 – Imagem do programa k_0 -IAEA com os dados da caracterização da prateleira 24B posição 2. Reator a potência crítica de 4,5MW.

5.2 Avaliação estatística dos resultados

As TAB. 5.4, 5.5 e 5.6 mostram os valores obtidos experimentalmente (média aritmética das replicatas), assim como os critérios estatísticos utilizados, erro relativo (*bias*, %), coeficiente de variação (*CV*) e o teste *U-score*, tanto nas irradiações curtas como nas irradiações longas, para cada material biológico certificado.

A incerteza das medidas experimentais utilizadas no cálculo foram as fornecidas pelo programa k_0 -IAEA, que são calculadas considerando-se fontes de incerteza tais como área do pico, constante k_0 , fluxo de nêutrons, f e α , sendo, portanto, a incerteza combinada. As incertezas dos materiais de referência foram as descritas nos relatórios fornecidos pelos organismos distribuidores, e são dadas em um limite de confiança de 95%.

Analisando-se os resultados em termos de porcentagem de erro em relação aos valores certificados (erros relativos), vê-se que os erros ficaram entre

0 e 30%, exceto para o Na (88%) no Peach Leaves; Nd (37%) e Ta (58%) no Mixed Polish Herbs. É importante notar que os erros ficaram, em geral, aleatoriamente acima e abaixo dos valores recomendados, indicando que não há erros sistemáticos. Foram calculados, também, para efeito de comparação, os desvios (*bias*, %) em relação aos valores certificados ou informativos. Deve-se levar em conta, entretanto, que esses valores foram tomados apenas como referência, pois não são valores certificados. Com algumas exceções, os resultados foram concordantes com os valores informativos. As maiores discrepâncias encontradas foram Cr e Sc no Peach Leaves (TAB. 5.4) e Th no Tomato Leaves (TAB. 5.6). É importante observar, por outro lado, que esses mesmos elementos químicos, que apresentaram desvios significativos em relação aos valores informativos, mostraram boa concordância com os valores certificados no Mixed Polish Herbs (TAB. 5.5), com *U-score* inferiores a 1,96, mostrando que estão dentro de um nível de confiança de 95%.

Se analisarmos os dados pelo critério do Coeficiente de Variação (*CV*), vemos que a maior parte dos resultados apresentou desvios entre as replicatas inferiores a 20%. Como a concentração da maior parte dos elementos analisados se encontra na faixa de mg kg^{-1} e ng kg^{-1} , vemos que, de acordo com a TAB. 4.9, os desvios estão dentro da faixa aceitável para essa faixa de concentração. Alguns elementos como o Sb e o Zn, no material de referência Peach Leaves, apresentaram desvios maiores que os recomendados na TAB. 5.4. Entretanto, esses valores ainda estão dentro dos aceitos conforme com o critério descrito por WOOD, 1999 (duas vezes o valor de HORRAT). No material Mixed Polish Herbs, os desvios encontrados para os elementos Nd (41%), Sb (40%), U (31%) e V (38%), ainda estão abaixo de 45%, índice considerado aceitável para elementos na faixa de concentração de ng kg^{-1} . Se considerarmos o valor de Horrat para reprodutibilidade, (WOOD, 1999), vemos que todos os valores obtidos, exceto o Ta (133%) no Mixed Polish Herbs, foram menores que 2. Isso mostra que houve excelente reprodutibilidade nos resultados obtidos experimentalmente.

Os valores de *U-score* mostraram que a grande maioria dos resultados dos elementos analisados está num intervalo de confiança de 95% (se for considerado 1,96 o limite para o *U-teste* para um nível de confiança de 95%). As únicas exceções foram os valores obtidos para Na (2,55) no Peach Leaves e Na

(2,28) no Tomato Leaves. Mesmo assim, os resultados estão dentro de um intervalo de confiança de 99,5% (se for considerado 2,58 o valor limite para o *U-teste* para um nível de confiança de 99,5%). Isso significa que os resultados não diferem significativamente do valor esperado. No caso do Na, foram sempre obtidos valores mais altos que os esperados. Isso pode ser devido à contribuição da impureza de Na no invólucro de plástico; às reações interferentes no espectro de raios gama para a determinação de Na por ativação neutrônica: $^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$; $^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$ e $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$. Pode ser que o programa k_0 -IAEA não esteja resolvendo satisfatoriamente essas interferências físicas nessas matrizes.

TABELA 5.4 - Valores médios de concentração obtidos para 6 determinações (N=6), para o material de referência SRM 1547 Peach Leaves.

Elemento	Valor		Valor		bias (%)	CV (%)	U-score
	Certificado/Informativo		Experimental				
	(mg/kg)		(mg/kg)				
	X _{cert}	U _{cert}	X _{Lab}	U _{Lab}			
Al ^[a]	249	3	258	8	4	5	0,81
Ba ^[a]	124	4	127	16	2	5	0,18
Ba ^[b]	124	4	131	6	6	10	0,97
Br ^[a]	11 ^[c]	*	11	2	0	4	**
Ca (%) ^[b]	1,56	0,02	1,52	0,16	3	12	0,25
Ce ^[b]	10 ^[c]	*	13	1	30	4	**
Cl ^[a]	360	19	368	22	2	8	0,28
Cr ^[b]	1 ^[c]	*	1,8	0,2	80	13	**
Eu ^[a]	0,17 ^[c]	*	0,18	0,02	6	7	**
Eu ^[b]	0,17 ^[c]	*	0,24	0,02	41	7	**
Fe ^[b]	218	14	265	20	22	15	1,93
K (%) ^[a]	2,43	0,03	2,45	0,10	1	3	0,19
La ^[a]	9 ^[c]	*	8,8	0,6	2	11	**
Mg (%) ^[a]	0,432	0,008	0,425	0,018	2	7	0,36
Mn ^[a]	98	3	95	2	3	9	0,78
Na ^[a]	24	2	45	8	88	11	2,55
Nd ^[b]	7 ^[c]	*	10	2	43	5	**
Rb ^[b]	19,7	1,2	20,7	4,2	5	5	0,23
Sb ^[b]	0,02 ^[c]	*	0,02	0,01	0	49	**
Sc ^[b]	0,04 ^[c]	*	0,06	0,01	50	9	**
Sm ^[a]	1 ^[c]	*	1,1	0,2	10	10	**
Sm ^[b]	1 ^[c]	*	1,5	0,1	50	9	**
Sr ^[a]	53	4	59	10	11	17	0,56
Tb ^[b]	0,1 ^[c]	*	0,11	0,02	10	11	**
Th ^[b]	0,05 ^[c]	*	0,06	0,02	20	17	**
Yb ^[b]	0,2 ^[c]	*	0,20	0,02	0	6	**
Zn ^[b]	17,9	0,4	23,2	4,6	30	31	1,15

* Valores não informados

** Valores não calculados

[a] – Valores obtidos nas irradiações curtas

[b] – Valores obtidos nas irradiações longas

[c] – Valores informativos

TABELA 5.5 - Valores médios de concentração obtidos para 6 determinações (N=6), para o material de referência INCT-MPH-2 Mixed Polish Herbs

Elemento	Valor		Valor		bias (%)	CV (%)	U-score
	Certificado/Informativo		Experimental				
	(mg/kg)		(mg/kg)				
	x _{cert}	U _{cert}	x _{Lab}	U _{Lab}			
Al ^[a]	670	111	854	108	27	3	1,19
As ^[b]	0,191	0,023	0,169	0,062	12	15	0,33
Ba ^[a]	32,5	2,5	40,9	8,4	26	14	0,96
Br ^[a]	7,71	0,61	8,31	1,12	8	6	0,47
Ca (%) ^[b]	1,08	0,07	0,99	0,06	8	9	0,98
Ce ^[b]	1,12	0,10	1,25	0,16	12	16	0,69
Cl (%) ^[a]	0,284	0,020	0,293	0,014	3	4	0,37
Co ^[b]	0,210	0,025	0,226	0,048	8	18	0,30
Cr ^[b]	1,69	0,13	2,04	0,26	21	6	1,20
Cs ^[b]	0,076	0,007	0,067	0,012	12	8	0,65
Eu ^[b]	0,016	0,002	0,018	0,002	13	9	0,71
Fe ^[b]	460 ^[c]	*	605	54	32	7	**
Hf ^[b]	0,236	0,020	0,232	0,014	2	1	0,16
K (%) ^[a]	1,91	0,12	1,96	0,16	3	5	0,25
La ^[b]	0,571	0,046	0,639	0,032	12	15	1,21
Mg (%) ^[a]	0,292	0,018	0,290	0,024	1	5	0,07
Mn ^[a]	191	12	197	30	3	4	0,19
Mo ^[b]	0,520 ^[c]	*	0,567	0,386	9	11	**
Na ^[a]	350 ^[c]	*	411	46	17	7	**
Nd ^[b]	0,457	0,091	0,288	0,104	37	41	1,22
Rb ^[b]	10,7	0,7	12,3	2,4	15	9	0,64
Sb ^[b]	0,066	0,009	0,055	0,020	17	40	0,50
Sc ^[b]	0,123	0,009	0,141	0,012	15	3	1,20
Sm ^[b]	0,094	0,008	0,091	0,012	3	14	0,21
Ta ^[b]	0,019	0,002	0,030	0,016	58	133	0,68
Tb ^[b]	0,014	0,001	0,012	0,004	14	18	0,49
Th ^[b]	0,154	0,013	0,137	0,022	11	13	0,67
U ^[b]	0,049 ^[c]	*	0,046	0,026	6	31	**
V ^[a]	0,952	0,163	1,145	0,286	20	38	0,59

Yb ^[b]	0,053	0,007	0,049	0,006	8	8	0,42
Zn ^[b]	33,5	2,1	42,2	4,8	26	5	1,66

* Valores não informados

** Valores não calculados

[a] – Valores obtidos nas irradiações curtas

[b] – Valores obtidos nas irradiações longas

[c] – Valores informativos

TABELA 5.6 - Valores médios de concentração obtidos para 6 determinações (N=6), para o material de referência SRM 1573a Tomato Leaves

Elemento	Valor		Valor		bias (%)	CV (%)	U-score
	Certificado/Informativo		Experimental				
	(mg/kg)		(mg/kg)				
	X _{cert}	U _{cert}	X _{Lab}	U _{Lab}			
Al ^[a]	598	12	643	86	8	5	0,52
Br ^[a]	1300 ^[c]	*	1278	26	2	3	**
Br ^[b]	1300 ^[c]	*	1261	387	3	5	**
Ca (%) ^[b]	5,05	0,09	5,05	0,16	0	8	0
Ce ^[b]	2 ^[c]	*	2,0	0,2	0	0	**
Cl ^[a]	6600 ^[c]	*	7130	198	8	4	**
Cr ^[b]	1,99	0,06	2,27	0,31	14	20	0,89
Fe ^[b]	368	7	428	34	16	23	1,73
Hf ^[b]	0,14 ^[c]	*	0,13	0,02	7	9	**
K (%) ^[a]	2,70	0,05	2,78	0,16	3	4	0,48
K (%) ^[b]	2,70	0,05	2,95	0,36	9	10	0,69
La ^[b]	2,3 ^[c]	*	2,4	0,2	4	18	**
Mg (%) ^[a]	1,2 ^[c]	*	1,14	0,04	5	6	**
Mn ^[a]	246	8	251	6	2	3	0,50
Na ^[a]	136	4	179	28	32	8	1,52
Na ^[b]	136	4	178	18	31	5	2,28
Rb ^[b]	14,89	0,27	16,50	3,94	11	10	0,41
Sc ^[b]	0,1 ^[c]	*	0,11	0,01	10	14	**
Sm ^[b]	0,19 ^[c]	*	0,16	0,04	16	21	**
Th ^[b]	0,12 ^[c]	*	0,06	0,02	50	19	**
Zn ^[b]	30,9	0,7	30,9	4,8	0	0	0

* Valores não informados

** Valores não calculados

[a] – Valores obtidos nas irradiações curtas

[b] – Valores obtidos nas irradiações longas

[c] – Valores informativos

6. CONCLUSÕES

O método do k_0 -INAA, utilizando o programa k_0 -IAEA, no reator IEA-R1 mostrou-se muito satisfatório para a análise de elementos químicos que dão origem a radioisótopos de meia-vida curta e longa em materiais biológicos, principalmente vegetais.

Os resultados obtidos mostraram o bom desempenho do método k_0 -INAA com o uso do programa k_0 -IAEA para analisar diferentes matrizes biológicas. Os 32 elementos químicos obtidos pelo método k_0 -INAA com o programa k_0 -IAEA, com faixas de concentração de mg kg^{-1} a ng kg^{-1} , apresentaram resultados confiáveis de acordo com os critérios estatísticos utilizados. O elemento Na, em todas as matrizes, apresentou valor sempre acima do recomendado, provavelmente devido à interferência espectral de Mg e Al nesse materiais. A irradiação de Mg e Al com nêutrons pode também formar ^{24}Na por meio de reações nucleares. A presença de sódio no invólucro de plástico onde a amostra foi acondicionada pode também ter contribuído para esses valores mais elevados.

Somente no material de referência INCT-MPH-2 Mixed Polish Herbs, o qual possui a maior parte dos elementos com valores certificados, dos 40 elementos possíveis de serem determinados utilizando a análise por ativação neutrônica, foi possível detectar 31 elementos, com resultados satisfatórios. Muitos desses elementos determinados são da ordem de ng kg^{-1} .

Para a aplicação do método k_0 -INAA algumas medidas devem ser realizadas no LAN-IPEN como:

- ✓ ajuste do horário nos computadores utilizados para contagem das amostras, pois o programa k_0 -IAEA utiliza o horário fornecido no arquivo desse computador. Esse horário deve estar de acordo com o horário das irradiações.
- ✓ descrição correta da geometria do detector.

- ✓ verificação do tempo de irradiação, conforme mencionado no trabalho. Esse detalhe é importante principalmente para irradiações com tempo menores de 30s.
- ✓ Nas irradiações longas, maior interação entre os pesquisadores e os operadores do reator, para obtenção do tempo exato do início e final da irradiação.

A crítica, neste trabalho, é sobre o programa k_0 -IAEA. Sua estrutura de funcionamento, inserção de dados na base de dados permanente e a análise dos espectros, não é amigável de ser realizada para iniciantes. Seu manual não é de simples entendimento, pois faltam detalhes importantes para sua utilização. O programa k_0 -IAEA é fundamentalmente baseado na análise de espectros, assim é necessário observar todos os espectros das amostras e se julgar procedente eliminar alguns picos, mudar seus ajustes e encontrar os picos não detectados. Porém, uma vez ambientado com a estrutura de funcionamento do programa, este se torna muito eficiente para a obtenção de resultados confiáveis na análise das amostras. Para amenizar esse problema, foi descrito, no corpo desse trabalho, um roteiro de como realizar os principais procedimentos para análise de uma amostra (Anexo 1). Um *CD-ROM* contendo um vídeo que demonstra as diversas etapas de utilização do programa foi também anexado ao corpo do trabalho (Anexo 2).

A facilidade do método k_0 -INAA está também no fato de não necessitar irradiar um padrão juntamente com a amostra a ser analisada, reduzindo assim os custos do laboratório com a compra desses materiais e também o tempo na preparação e análise das amostras. Outra vantagem é a gama de elementos possíveis de serem detectados em uma só amostra, uma vez que, no método comparativo, muitas vezes é necessário à irradiação de mais de um padrão para se determinar todos os elementos de uma amostra.

Todas as vantagens na utilização do método k_0 -INAA foram verificadas nesse trabalho. Os resultados indicam que a aplicação do método do k_0 -INAA no LAN-IPEN deverá aumentar o potencial analítico do laboratório, mantendo a qualidade dos dados.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- BACCHI, M. A., FERNANDES, E.A.N. Quantu - design and development of a software package dedicated to k_0 -standardized NAA. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 257, n. 3, p. 577-582, 2003a.
- BACCHI, M.A., FERNANDES, E.A.N., FRANÇA, E.J., BODE, P. Quality assessment in a Brazilian laboratory performing k_0 -NAA. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 257, n. 3, p. 653-657, 2003b.
- BACCHI, M.A., FERNANDES, E.A.N., TSAI, S.M., SANTOS, L.G.C. Conventional and organic potatoes: assessment of elemental composition using k_0 -INAA. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 259, n. 3, p. 421-424, 2004.
- BLAAUW, M., ROBOUCH, P., SMODIS, B. *The official k_0 website*, www.k0naa.org
- BLAAUW, M., BODE, P., DE BRUIN, M. An alternative convention describing the (N,g)-reaction rate suited for use in the k_0 -method of NAA. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 152, n. 2, p. 435-445, 1991.
- BLAAUW, M., AMMERLAAN, M.J.J., BODE, P. Quantification of some sources of variation in neutron activation analysis. ***Applied Radiation and Isotopes***, v.44, n.3, p. 547-551, 1993.
- BLAAUW, M. A versatile computer algorithm for linear 1st-order equations describing compartmental-models with backward branching. ***Applied Radiation and Isotopes***, v. 44, n. 9, p. 1225-1229, 1993a.
- BLAAUW, M. The holistic analysis of gamma-ray spectra in instrumental neutron activation analysis. ***Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment***, v. 353, n. 1, p. 269-271, 1993b.
- BLAAUW, M. The use of sources emitting coincident gamma-rays for determination of absolute efficiency curves of highly efficient Ge detectors. ***Nuclear Instruments & Methods***, v. 332, n. 3, p. 493-500, 1994.
- BLAAUW, M. ***The k_0 -consistent IRI Gamma-ray Catalogue for INAA, Interfaculty***. 1996. Reactor Institute, Delft, The Netherlands.
- BLATT, J.M., WEISSKOPF, V.F. ***Theoretical Nuclear Physics***. New York, N.Y.: Willey, 1952.
- BEDREGAL, P., MENDOZA, P., UBILÚS, M., MONTOYA, E. k_0 -INAA method accuracy using Zn as comparator. ***Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment***, v. 622, n. 2, p. 419-424, 2010.

BRITO, N.M. **Resíduos de pesticidas organoclorados (OC) e organofosforados (OF) em matriz de coco: metodologia e aplicação.** 2001. Dissertação (Mestrado) – Universidade Estadual Paulista.

BRITO, N.M., DE AMARANTE JUNIOR, O.P., POLESE, L., RIBEIRO, M.L. Validação de métodos analíticos: estratégia e discussão. **Pesticidas: Revista de Ecotoxicologia e Meio Ambiente**, v. 13, 2005.

BROOKES, C.J., BETTELEY, I.G., LOXTON, S.M. **Fundamentals of Mathematics and Statistics**, Wiley, New York, 1979

BUENO, E.I. **Utilização de redes neurais artificiais na monitoração e detecção de falhas em sensores do reator IEA-R1.** 2006. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

BYRNE, J. **Neutron, Nuclei, and Matter:** an exploration of the physics of slow neutrons. 2.ed. Institute of Physics Pub, 1995.

CARDOSO, V. **Estudo das covariâncias envolvidas no método k_0 de análise por ativação neutrônica.** 2011.Tese (Doutorado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

CAUSON, R. Validation of chromatographic methods in biomedical analysis viewpoint and discussion. **Journal of Chromatography B: Biomedical Sciences and Applications**, v. 689, n. 1, p. 175-180, 1997.

COMPTON. A.H. A quantum theory of the scattering of X rays by light elements. **Physical Review**, v. 21, n. 207, p. 483, 1923a.

COMPTON. A.H. The spectrum of scattered X rays. **Physical Review**, v. 22, n. 409, p. 413, 1923b.

CURRIE, L.A., SVEHLA, G.Y.U.L.A. Nomenclature for the presentation of results of chemical analysis. **Pure Applied Chemistry**, v. 66, n. 3, p. 595-608, 1994.

DE CORTE, F., MOENS, L., SIMONITS, A., DE WISPERLAERE, A., HOSTE, J. Instantaneous α -determination without Cd-cover in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal neutron spectrum. **Journal of Radioanalytical Chemistry**, v. 52, p. 295, 1979.

DE CORTE, F., SORDO-EL HAMMAMI, K., MOENS, L., SIMONITS, A., DE WISPELAERE, A., HOSTE, J. The accuracy and precision of the experimental α -determination in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal reactor-neutron spectrum. **Journal of Radioanalytical Chemistry**, v. 62, n. 1-2, p. 209-255, 1981.

DE CORTE, F., JOVANOVIĆ, S., SIMONIT, A., MOENS, L., HOSTE, J. Atomkernenergie-Kernstechnik. **Suppl**, v. 44, p. 641, 1984.

DE CORTE, F., MOENS, L., JOVANOVIĆ, S., SIMONITS, A., DE WISPELAERE, A. 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, 1986.

DE CORTE, F., SIMONITS, A., HOSTE, J., DE WISPELAERE, A. Accuracy and applicability of the k_0 -standardization method. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 113, n. 1, p. 145-161, 1987a.

DE CORTE, F. ***The k_0 -Standardization Method - A Move to the Optimization of NAA***. 1987b. Philosophical Thesis (Ph.D) - University of Gent, Belgium

DE CORTE, F. The k_0 -standardization method: a move to the optimization of neutron activation analysis. ***Agregé Thesis, Gent University, Belgium***. 1987c.

DE CORTE, F., SIMONITS, A. k_0 -measurements and related nuclear data compilation for (n, γ) reactor neutron activation analysis. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 133, n. 1, p. 43-130, 1989.

DE CORTE, F., SIMONITS, A., BELLEMANS, F., FREITAS, M. C., JOVANOVIC, S., SMODIS, B., ERDTMANN, G., PETRI, H., DE WISPELAERE, A. 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, 1993.

DE CORTE, F. k_0 and Comparator NAA: Influences and Interactions. ***Journal of Radioanalytical Chemistry***, v. 245, n.1, p. 157-161, 2000.

DE CORTE, F. The standardization of standardless NAA. ***Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*** v. 248, n.1, p.13–20, 2001.

DE CORTE, F., SIMONITS, A. Recommended Nuclear Data for use in the k_0 Standardization of Neutron Activation Analysis. ***Atomic Data and Nuclear Data Tables*** v. 85, p. 47-67, 2003.

DE FELICE, P., ANGELINI, P., FAZIO, A., BIAGINI, R. Fast procedures for coincidence-summing correction in γ -ray spectrometry. ***Applied Radiation and Isotopes***, v. 52, n. 3, p. 745-752, 2000.

DUNG, H.M., FREITAS, M.C., SARMENTO, S., BLAAUW, M., BEASLEY, D. Calibration of gamma-ray spectrometers coupled to Compton suppression and fast pneumatic systems for the k_0 -standardized NAA method. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 278, n. 3, p. 621-625, 2008.

EGUSKIZA, M., ROBOUCH, P., WATJEN, U., DE CORTE, F. The preparation and homogeneity study of synthetic multi-element standards (SMELS) for QC/QA of k_0 -NAA. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 257, n.3, p. 669-676, 2003.

FÁVARO, D.I., MAIHARA, V.A., MAFRA, D., SOUZA, S.A., VASCONCELLOS, M. B., CORDEIRO, M.B., COZZOLINO, S.M. Application of NAA to the determination

of mineral and trace elements in Brazilian diets at IPEN/CNEN/SP. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 244, n. 1, p. 241-245, 2000.

FEINBERG, M., RAGUÈNÈS, N. Development and application of a standardized validation procedure for food chemistry laboratories. ***Analytica Chimica Acta***, v. 391, n. 2, p. 239-252, 1999.

FERNANDO, A.J. ***Desenvolvimento e implementação de um novo sistema pneumático de transferência para irradiação de materiais no reator IEA-R1***. 2011. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

FIGUEIREDO, A.M.G., ENZWEILER, J., CAMARGO, S.P., SÍGOLO, J.B., GUMIERO, F.C., PAVESE, A.C., MILIAN, F.M. Metal contamination in urban park soils of São Paulo. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 280, n. 2, p. 419-425, 2009.

FIGUEIREDO, A.M.G., OLIVEIRA JR, V.D., MELFI, A.J. Determinação de ouro a nível de traços em amostras de Itabirito intemperizado do quadrilátero ferrífero por análise por ativação com nêutrons. ***Geochimica Brasiliensis***, v.11, n.1, p. 115-120, 2011.

FIRESTONE, R.B. *Table of Isotopes*, CD-ROM edition, version 1.0, Wiley Interscience, 1996.

FRANCOTTE, E., DAVATZ, A., RICHERT, P. Development and validation of chiral high-performance liquid chromatographic methods for the quantitation of valsartan and of the tosylate of valinebenzyl ester. ***Journal of Chromatography B: Biomedical Sciences and Applications***, v. 686, n. 1, p. 77-83, 1996.

FREITAS, M.C., MARTINHO, E. Accuracy and precision in instrumental neutron activation analysis of reference materials and lake sediments. ***Analytica Chimica Acta***, v. 223, p. 287-292, 1989a.

FREITAS, M.C. Instrumental neutron activation analysis of geological and biological reference materials using the k_0 -standardization method. ***Biological Trace Element Research***, v. 26 n. 1, p. 189-194, 1989b.

GLASCOCK, M.D. The status of activation analysis in archeology and geochemistry. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 244, n. 3, p. 537-541, 2000.

GLASSTONE, S., EDLUND, M.C. ***The elements of nuclear reactor theory***, Princeton, New Jersey, D. Van Nostrand Company, Inc, 1952.

GONÇALVES, I.M.P. ***Monitoração e diagnóstico para detecção de falhas de sensores utilizando a metodologia GMDH***. 2006. Tese (Doutorado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

GONZÁLEZ, A.G., HERRADOR, M., ASUERO, A.G. Intra-laboratory testing of method accuracy from recovery assays. **Talanta**, v. 48, n. 3, p. 729-736, 1999.

GUINN, V.P. Nuclear activation analysis 45 years after George Hevesy's discovery. **Journal of Radioanalytical Chemistry**, v. 59, n. 2, p. 309-314, 1980.

HALUK, Y., MUSTAFA, K. Experimental determination of the α -shape factor in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal-isotopic neutron source-spectrum by dual monitor method. **Annals of Nuclear Energy**, v. 31, p. 681-695, 2004.

HAMIDATOU, L.A., KHALED, S., AKHAL, T., RAMDHANE, M. Determination of trace elements in cigarette tobacco with the k_0 -based NAA method using Es-Salam research reactor. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 281, n. 3, p. 535-540, 2009.

HERRERA, E.F., DIAZ, O.R., BORROTO, J.P. "Aplicación del Método k_0 Empleando Monitores no Convencionales". **VII Forum de Ciencia e Técnica**. Nov. de 1992.

HØGDAHL, O.T. **Neutron absorption in pile neutron activation analysis**. Michigan. Univ., Ann Arbor. Michigan Memorial-Phoenix Project, 1962.

HUBERT, P., CHIAP, P., CROMMEN, J., BOULANGER, B., CHAPUZET, E., MERCIER, N., NIVET, J.C. The SFSTP guide on the validation of chromatographic methods for drug bioanalysis: from the Washington Conference to the laboratory. **Analytica Chimica Acta**, v. 391, n. 2, p. 135-148, 1999.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Practical aspects of operating a neutron activation analysis laboratory**, IAEA – TECDOC – 564, Vienna, 1990.

JACIMOVIĆ, R., LAZARU, A., MIHAJLOVI, D., ILI, R. Determination of major and trace elements in some minerals by k_0 -instrumental neutron activation analysis. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 253, n. 3, p. 427-434, 2002.

k_0 -IAEA. **The k_0 -IAEA program manual for version 5.00**. IAEA-Vienna, Austria – TU Delft, The Netherlands, 2007. Disponível em: <<http://www-naweb.iaea.org/napc/iachem/K0-IAEA.html>>. Acesso em: 12 dez. 2010.

KAFALA, S.I., MACMAHON, T.D. Neutron activation analysis without multi-element standards. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 169, n. 1, p. 187-199, 1993.

Kayzero for Windows®. User's Manual, for reactor neutron activation analysis (NAA) using the k_0 standardisation method, Ver. 2.17b. 2008.

KNOLL, G.F. **Radiation detection and measurements**. New York, NY.: Wiley, 1979.

KOLOTOV, V.P., DE CORTE, F. Compilation of k_0 and related data for Neutron Activation Analysis (NAA) in the form of an electronic database. **Pure Applied Chemistry**, v. 76, n. 10, p. 1921-1925, 2004.

MARIANO, D.B. **Implementação do método k_0 -INAA no laboratório de análise por ativação com nêutrons do Ipen utilizando o programa k_0 -IAEA. Aplicação à análise de amostras geológicas**. 2012. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

MENEZES, M.A.D.B., SABINO, C.D.V., FRANCO, M.B., KASTNER, G.F., ROSSI, E.H. M. k_0 -Instrumental neutron activation analysis establishment at CDTN, Brazil: A successful story. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 257, n. 3, p. 627-632, 2003.

MENEZES, M.A.D.B., JACÍMOVIĆ, R. Validation of the k_0 -IAE software using SMELS material at CDTN/CNEN. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 278, n. 3, p. 607–611, 2008.

MENEZES, M.A.D.B. Laboratory for Neutron Activation Analysis and the k_0 -method at CDTN/CNEN. In: International k_0 -Users Workshop, 5., 13-19 set., 2009, Belo Horizonte, Minas Gerais, Brazil.

MCDOWALL, R.D. The role of laboratory information management systems (LIMS) in analytical method validation. **Analytica Chimica Acta**, v. 391, n. 2, p. 149-158, 1999

MONTOYA, E., BEDEGRAL, P., MENDOZA, P., UBILIUS, M., TORRES, B., COHEN, I.M. The development of the k_0 method in Peru: Past, present, and future perspectives. **Informe Científico Tecnológico 2009**. Lima: IPEN; 2010 p. 41-47.

MUKKIN, K.N. **Experimental nuclear physics**. Moscow: Mir, 1987.

NATIONAL INSTITUTE OF STANDARDS & TECHNOLOGY (NIST). Standard reference material 1547 peach leaves. Jan. 22, 1993.

PASCHOAL, J.A.R., RATH, S., AIROLDI, F.P.D.S., REYES, F.G. Validação de métodos cromatográficos para a determinação de resíduos de medicamentos veterinários em alimentos. **Química Nova**, v. 31, n. 5, p. 1190-1198, 2008.

PERSSON STUBBERUD, K., ÅSTRÖM, O. Separation of ibuprofen, codeine phosphate, their degradation products and impurities by capillary electrophoresis: II. Validation. **Journal of Chromatography A**, v. 826, n. 1, p. 95-102, 1998.

Physical Reference Data, NIST 2013
<http://physics.nist.gov/cuu/Constants/>
 Acesso: 10/11/2013

RESNICK, R., EISBERG, R. **Física quântica: Átomos, Moléculas, Sólidos, Núcleos e Partículas**. São Paulo: Campus, 1979.

RIZO, O.D., PERAZA, E.H., PELLÓN, I.A., GUEVARA, M.M. Development and implementation of the k_0 -standardization and other parametric methods of INAA in Cuba. Part II. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 240, n. 2, p. 445-450, 1993.

ROSSBACH, M., BLAAUW, M., BACCHI, M. A, XILEI, L. The k_0 -IAEA program. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 274, n.3 p. 657-662, 2007.

SEMMLER, M.G.M.C. ***Biomonitoração de Hg, Cd, Pb e outros elementos em áreas costeiras do estado de São Paulo por meio do mexilhão transplantado Perna perna (Linnaeus, 1758)***. 2007. Tese (Doutorado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

SHAKHASHIRO, A., AZEREDO, A.M.G.F., SANSONE, U., KIM, C.K., KIS-BENEDEK, G., TRINKL, A., SCHORN, R. IAEA, *Report on the IAEA-CU-2006-05 proficiency test on determination of ^{137}Cs and ^{210}Pb in spiked soil*. IAEA/AL/167, 2006.

SIMONITS, A., DE CORTE, F., HOSTE, J. Single-comparator methods in reactor neutron activation analysis. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 24, n. 1, p. 31-46, 1975.

SMODIŠ, B., JAČIMOVIĆ, R., JOVANOVIĆ, S., STEGNAR, P. Determination of trace elements in standard reference materials by the k_0 -standardization method. ***Biological Trace Element Research***, v. 27, p. 43–51, 1990.

SMODIS, B., JACIMOVIC, R., STEGNAR, P., JOVANOVIC, S. Multielement analysis of NIST proposed SRM 1547 Peach Leaves. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 160, n.1, p. 101-108, 1992.

SOLIMAN, M., MOHAMED, N.M., GAHEEN, M.A., SAAD, E.A., YOUSEF, S.K., SOHSAH, M.A. Implementation of k_0 -standardization method of the INAA at ETRR-2 research reactor. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 287, n. 2, p. 629-634, 2011.

TRAVESI, A. ***Análisis por activación neutronica: teoría, práctica y aplicaciones***. Madrid: Junta de Energía Nuclear, 1975.

WALSH, M.C. Moving from official to traceable methods. ***Trends in Analytical Chemistry***, v.18, p.616-623, 1999.

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, v. 16, p. 70-76, 1958.

WIELING, J., HENDRIKS, G., TAMMINGA., W.J., HEMPENIUS, J., MENSINK, C.K., OOSTERHUIS, B., JONKMAN, J.H. Rational experimental design for bioanalytical methods validation illustration using an assay method for total

captopril in plasma. ***Journal of Chromatography A***, v. 730, n. 1, p. 381-394, 1996.

WOOD, R. How to validate analytical methods. ***Trends in Analytical Chemistry***, v. 18, n. 9, p. 624-632, 1999.

ZAGHLOUL, R., GANTNER, E., MOSTAFA, M., ACHE, H.J. Neutron activation analysis without multielement standards. ***Journal of radioanalytical and nuclear chemistry***, v. 109, n. 2, p. 283-294, 1987.

ZAMBONI, C. B. ***Fundamentos da Física de Nêutrons***. 1.ed. São Paulo: Livraria da Física, 2007.

ANEXO 1 - UTILIZAÇÃO DO PROGRAMA k_0 -IAEA

Será apresentado a seguir um roteiro de utilização do programa k_0 -IAEA. Todas as etapas foram descritas com o maior número de detalhes possíveis, com o objetivo de facilitar o uso do programa para os potenciais usuários.

Neste roteiro será mostrado como fazer a calibração em energia e construção da curva de eficiência; o cálculo dos parâmetros de fluxo; a análise de uma amostra.

A.1 Calibração em energia e construção da curva de eficiência

A primeira etapa a se realizar na utilização do programa k_0 -IAEA é a calibração em energia e a curva de eficiência do detector que será utilizado para as medidas de espectrometria gama. No caso, o exemplo se refere ao detector de Ge hiperpuro GX2020 da Canberra do LAN-IPEN (Canberra3).

Na base de dados permanente, deverão ser cadastrados os dados referentes às fontes de calibração, o recipiente de contagem e as medidas da geometria do detector. Essa etapa se refere à introdução dos dados característicos do laboratório.

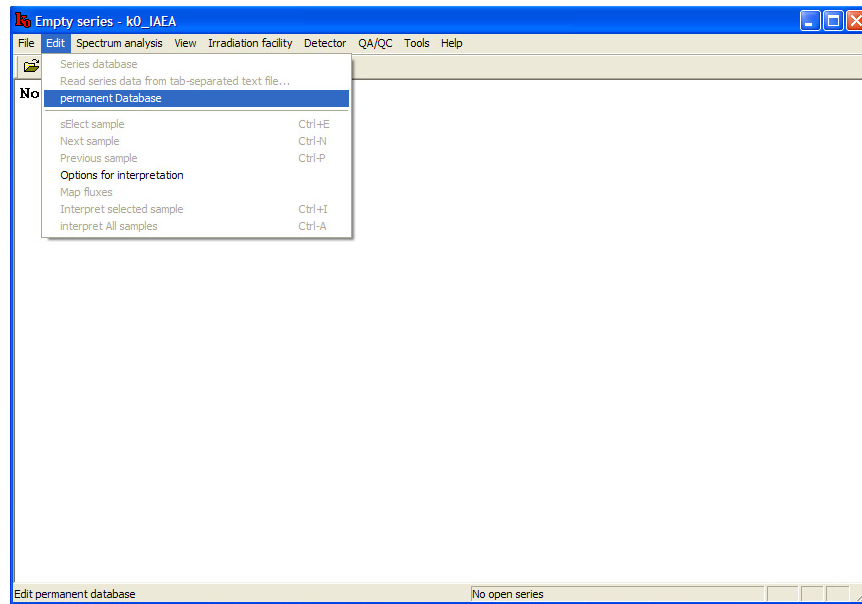


Figura A.1 – Clicar em **Edit** → **Permanent Database**.

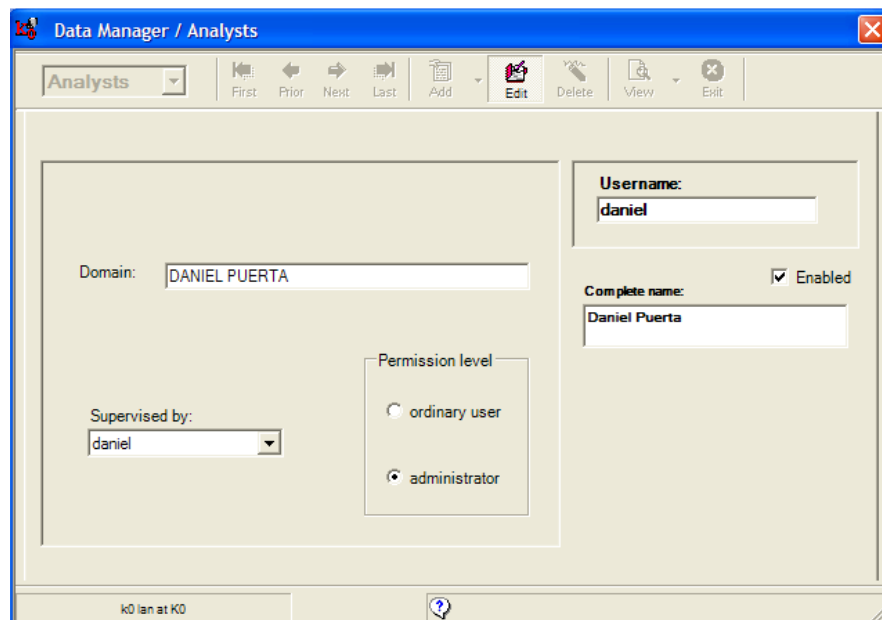


Figura A.2 – Em **Analysts** selecionar **Add** para inserir um novo administrador

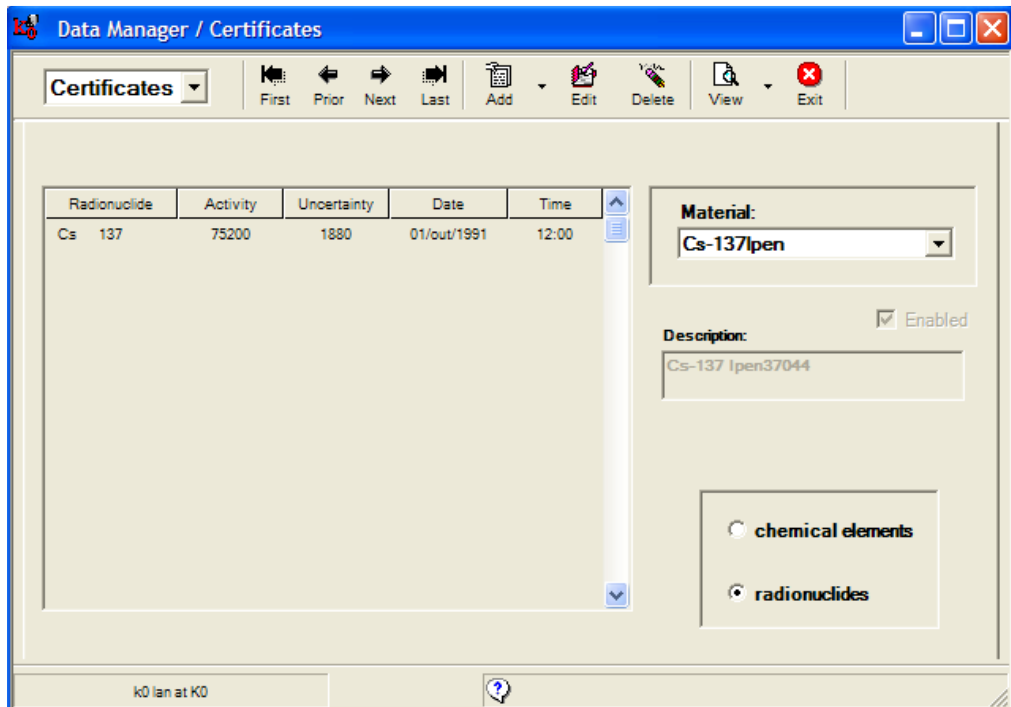


Figura A.3 – Selecionar o ícone Certificates. Em seguida selecionar **radionuclides** e a função **Add** para inserir os dados das fontes de Cs e Eu.

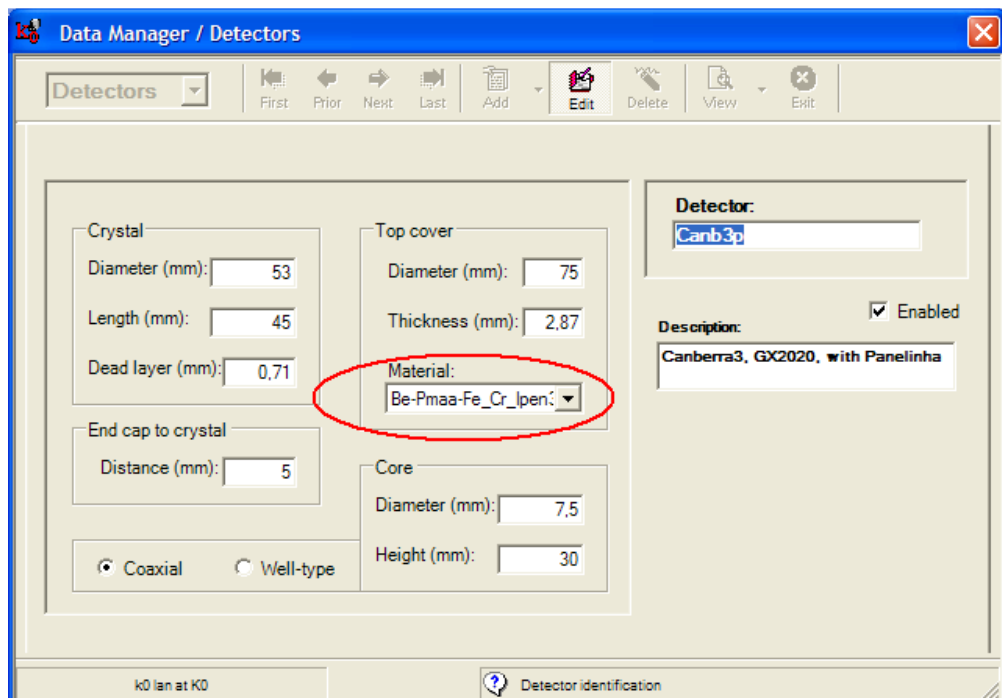


Figura A.4 – Selecionar o ícone **Detectors**. Em seguida utilizar a função **Add** para inserir os dados referentes ao detector utilizado nas contagens. Para inserir os dados no **Material** é necessário retornar e selecionar o ícone **Matrices**. Em **Matrices** utilizar a tecla **Add** para inserir os dados referentes ao detector.

Element	Concentration	Uncertainty
H	56100	561
Be	174200	1742
C	418000	4180
O	222700	2227
Cr	12900	129
Fe	116000	1160

Material:
Be-Pmaa-Fe_Cr_lpen3k

Description: ☒ Enabled
Be+lpmaa+Fe+Cr(2.87mm)

Density (g/cm3): 2,15

k0 lan at K0 ? Element symbol

Figura A.5 – Vista do ícone **Matrices** com os dados do detector já cadastrado

Material: Polietileno

External
 Diameter (mm): 2
 Height (mm): 0,01
 Unc.(mm): 0,001

Wall
 Top (mm): 0,4
 Bottom (mm): 0,4
 Side (mm): 0
 Unc.(mm): 0,001

Empty space
 Top (mm): 1,1
 Bottom (mm): 1,1
 Unc.(mm): 0,001

Recipient: Eu-152lpen

Description: ☒ Enabled
Fonte de europio 152 ref 52036

k0 lan at K0 ? Identification of recipient

Figura A.6 – No ícone **Recipients**, cadastrar as medições referentes ao recipiente de contagem. Para inserir os dados no **Material** é necessário retornar e selecionar o ícone **Matrices**. Em **Matrices** utilize a tecla **Add** para inserir os dados do material do recipiente de contagem.

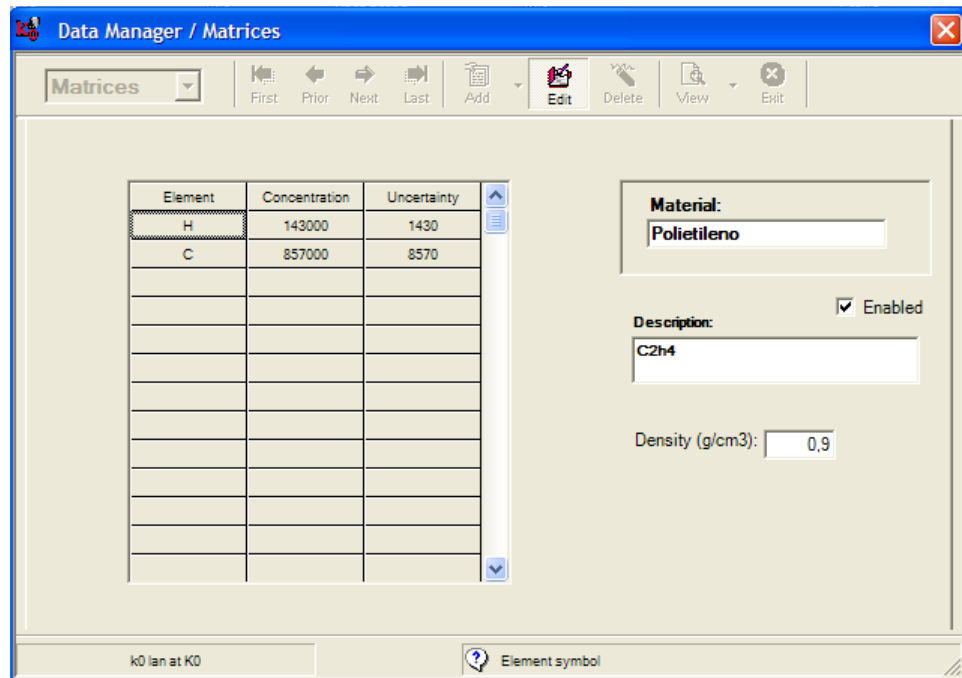


Figura A.7 – Vista do ícone **Matrices** com os dados do recipiente de contagem cadastrado.

Realizada essa etapa, agora vamos criar uma nova **Series** com todos os dados como data e horário das medições, tempo morto, espessuras, distancia da posição de medida até o cristal do detector, entre outros.

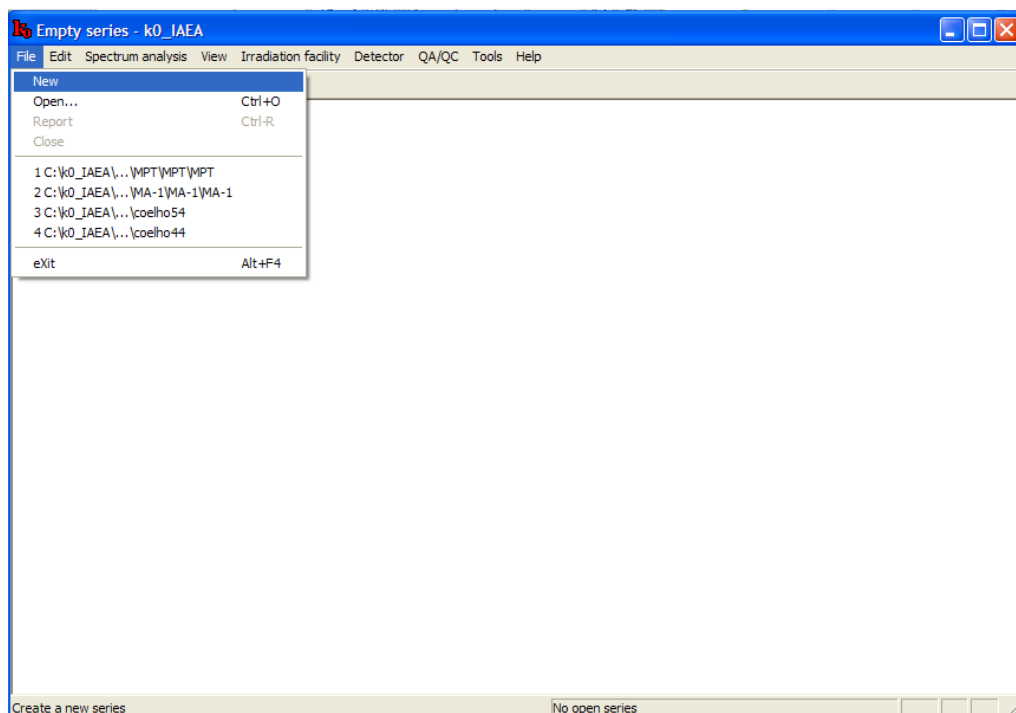


Figura A.8 – Seleccione o ícone **File** e depois **New**.

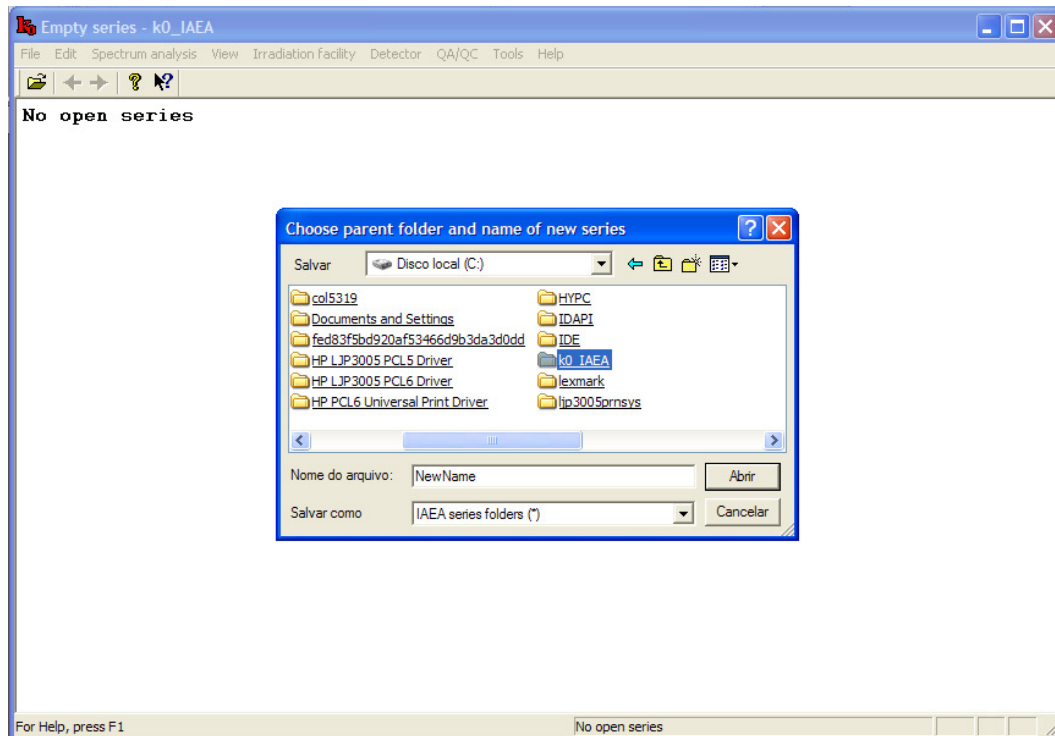


Figura A.9 – Ir à pasta k0-IAEA que esta em C: e dar um duplo-click.

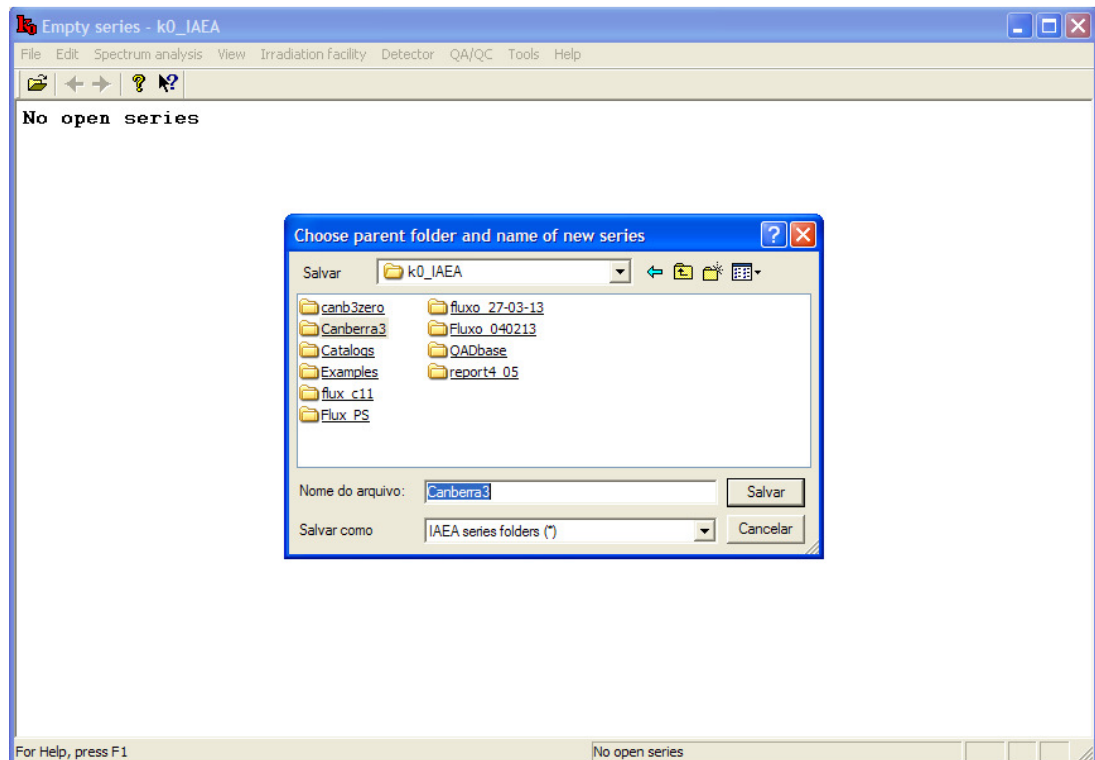


Figura A.10 – Dar o nome desejado ao trabalho e clicar em salvar.

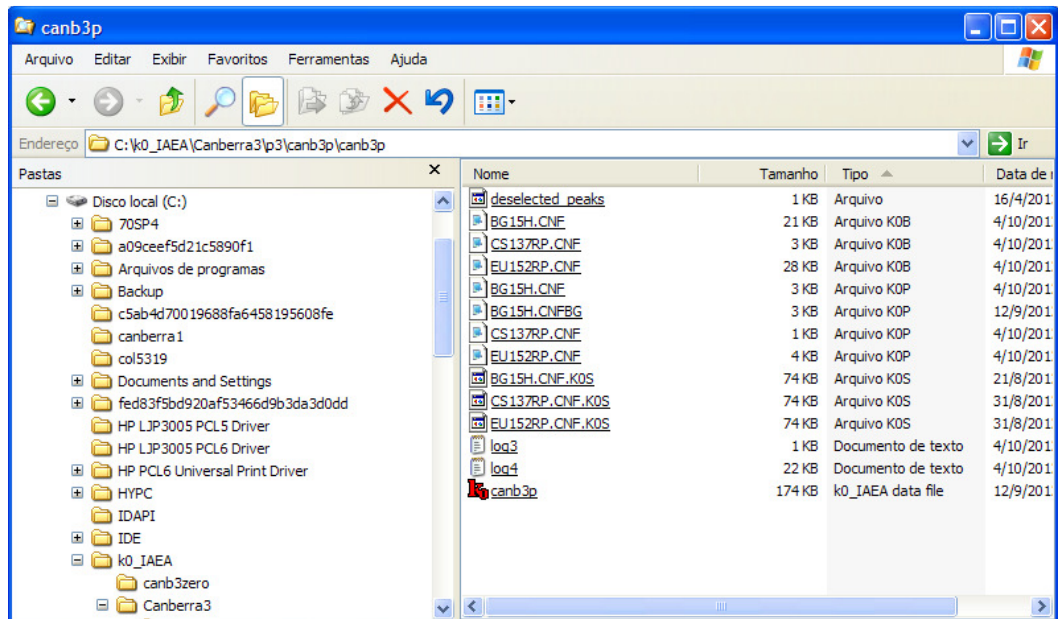


Figura A.11 – Copiar os arquivos das medições (espectros das fontes de Eu, Cs e o *Background*) dentro da pasta que foi criada com o nome dado no item anterior.

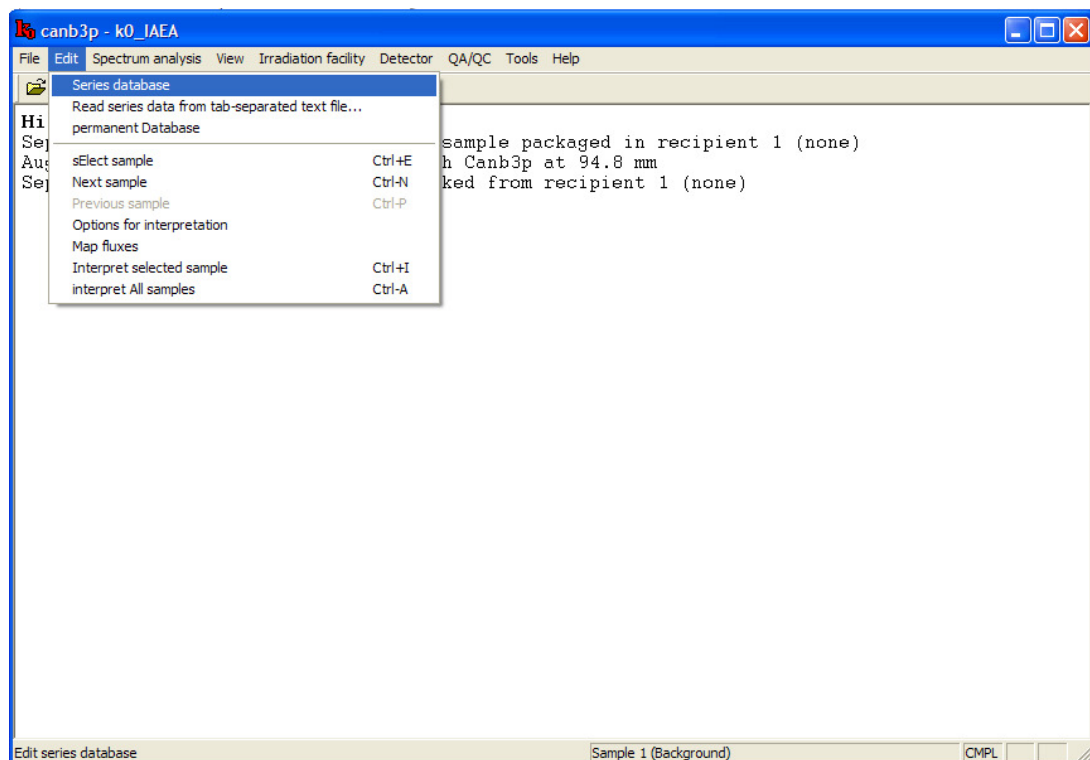


Figura A.12 – Selecionar o ícone **Edit** e **Series database**.

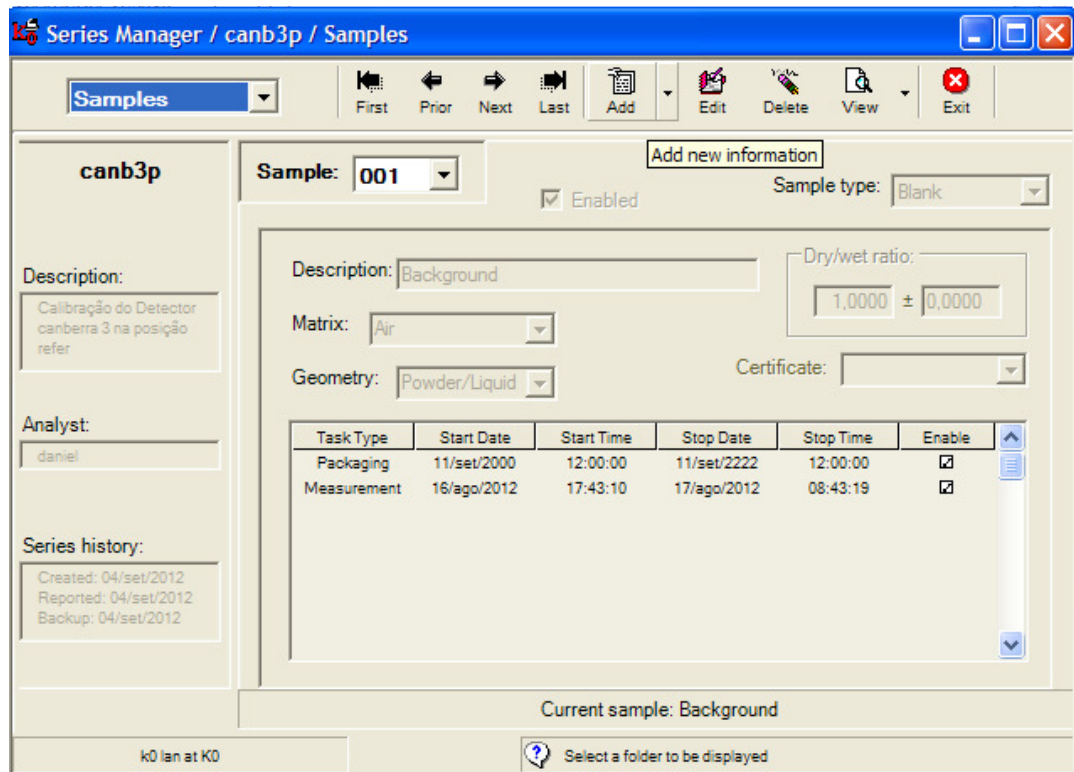


Figura A.13 – Selecionar o ícone **Samples** e clicar em **Add**.

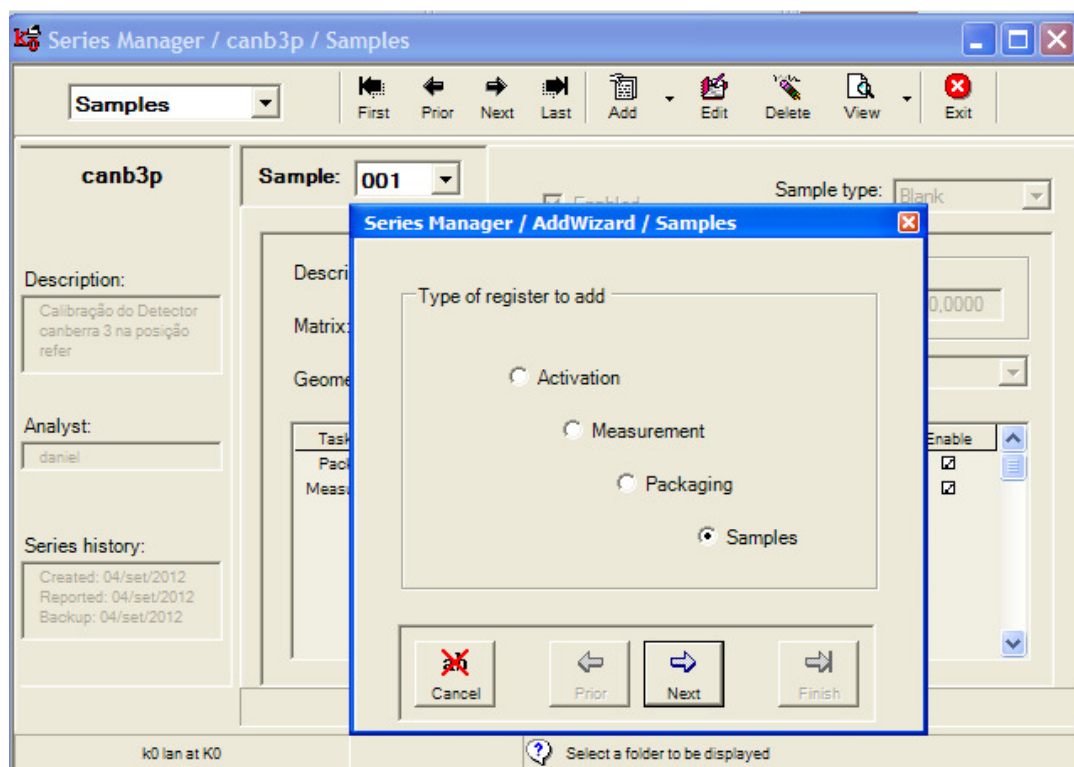


Figura A.14 – Selecionar **Samples**.

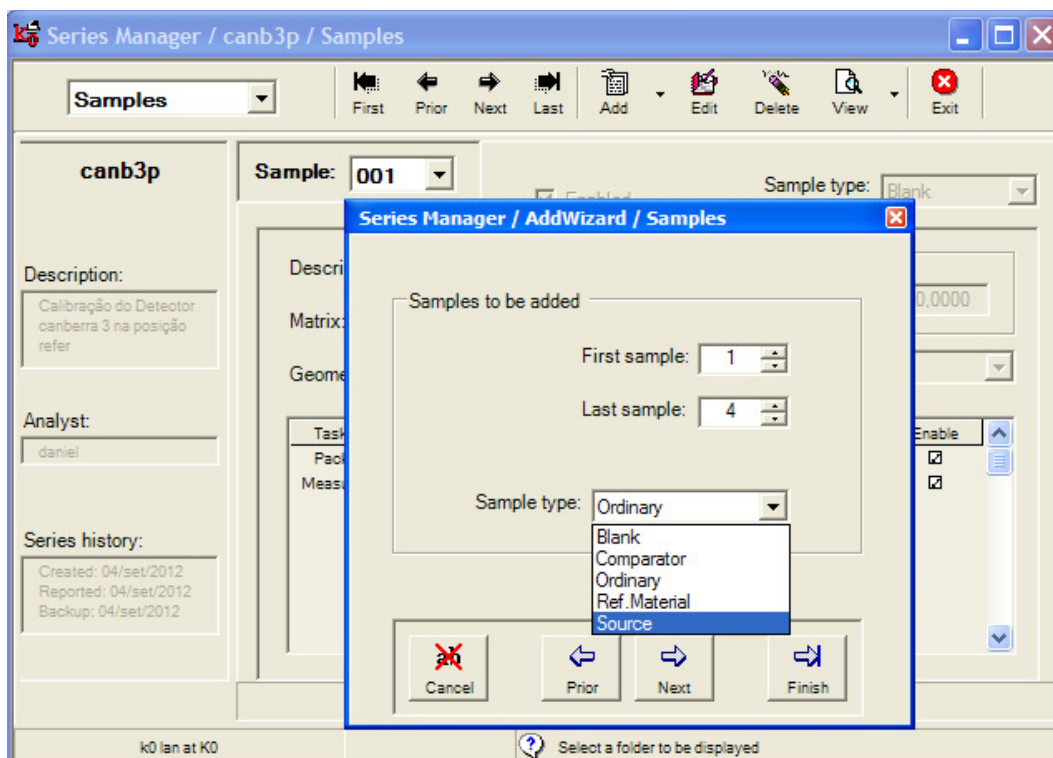


Figura A.15 – Introduzir a quantidade de espectros a serem analisados e selecionar **Source**.

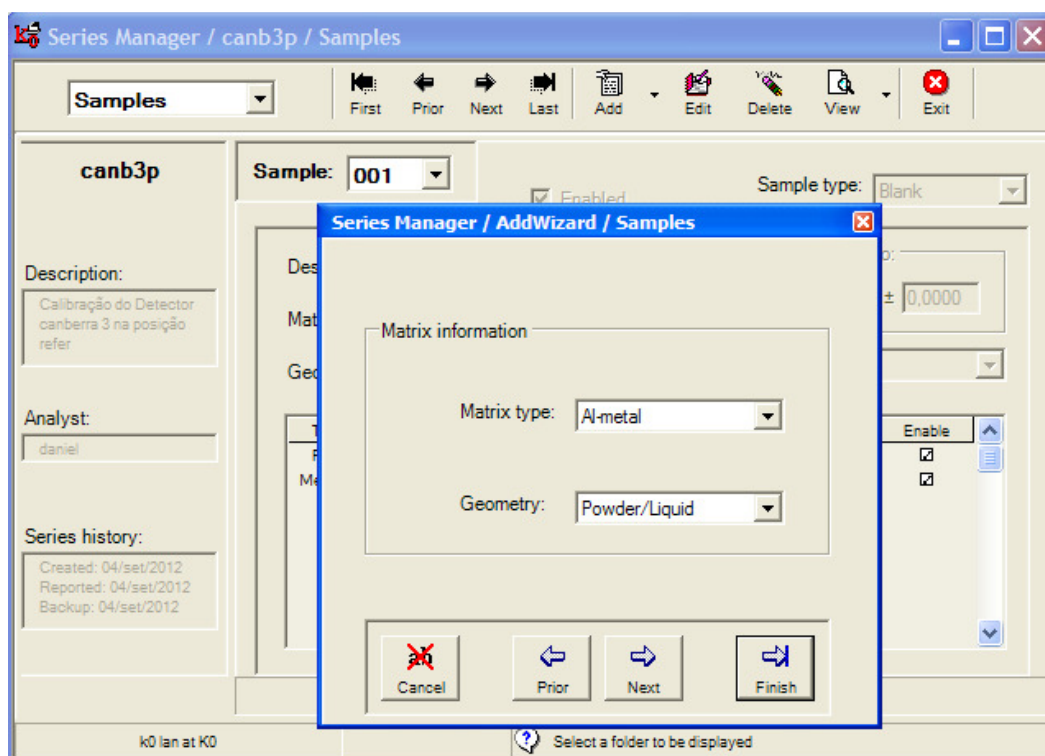


Figura A.16 – Selecionar o Tipo de Matriz e Geometria.

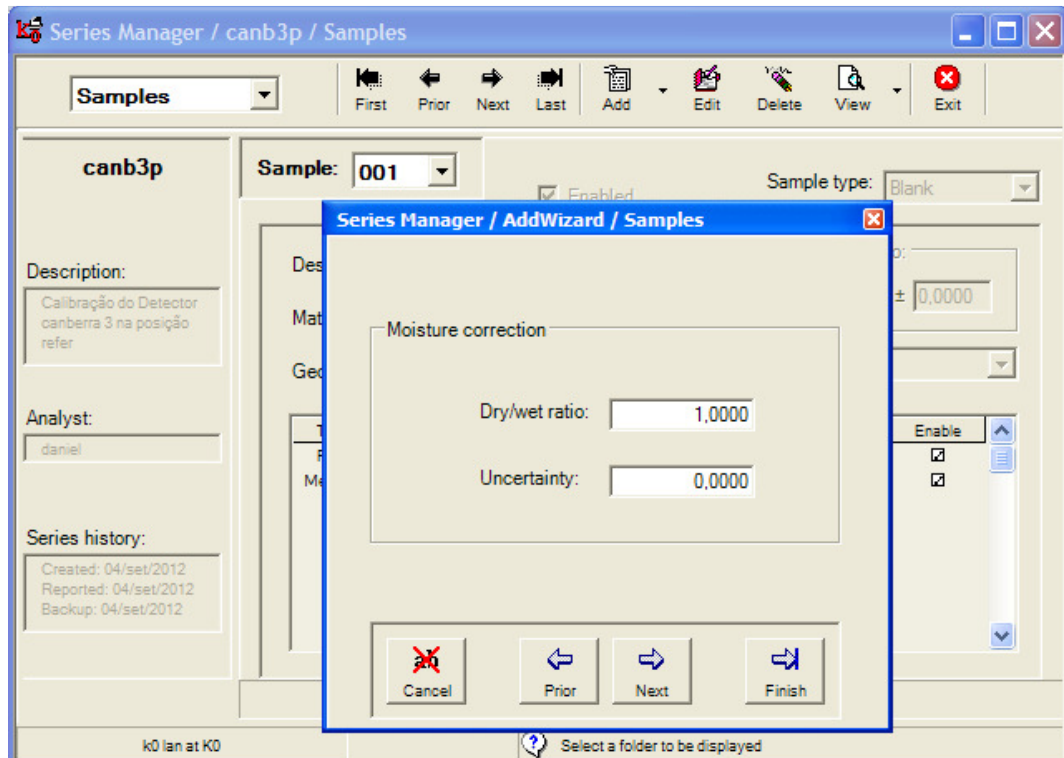


Figura A.17 – Inserir a medida *Dry/wet ratio* (de acordo com o manual do programa e o tutorial, utilizar 1 no caso das fontes de calibração).

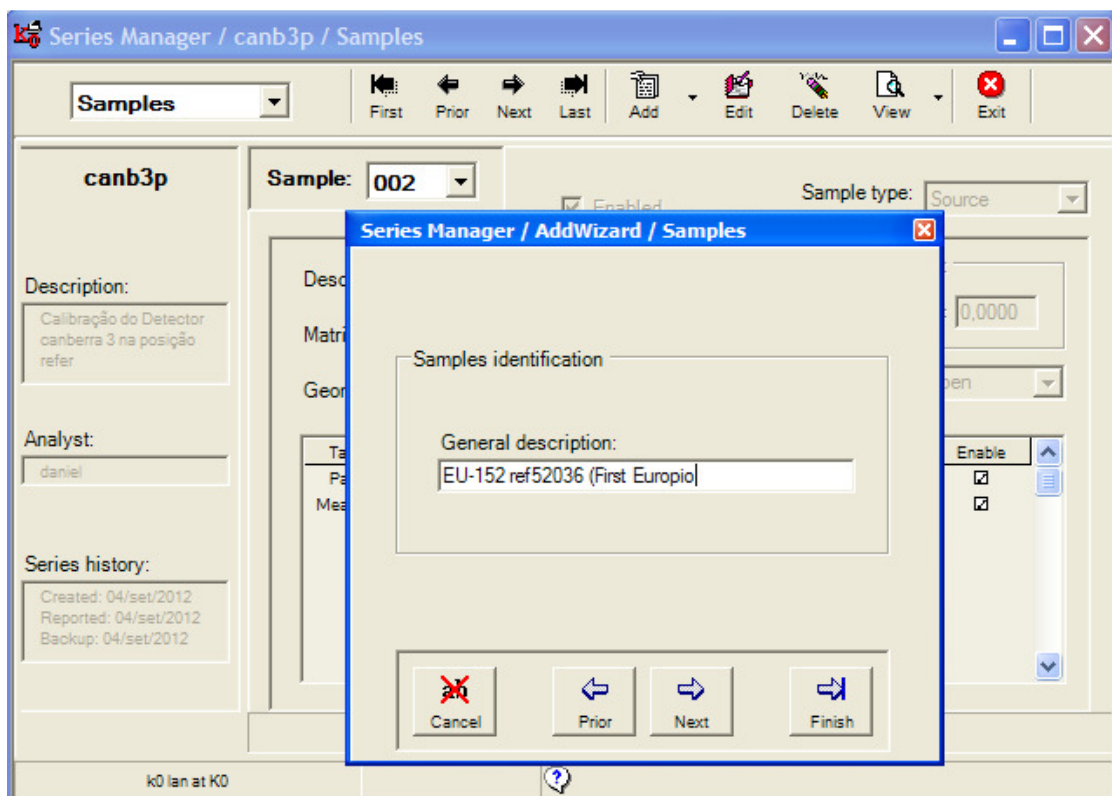


Figura A.18 – Nomear a fonte.

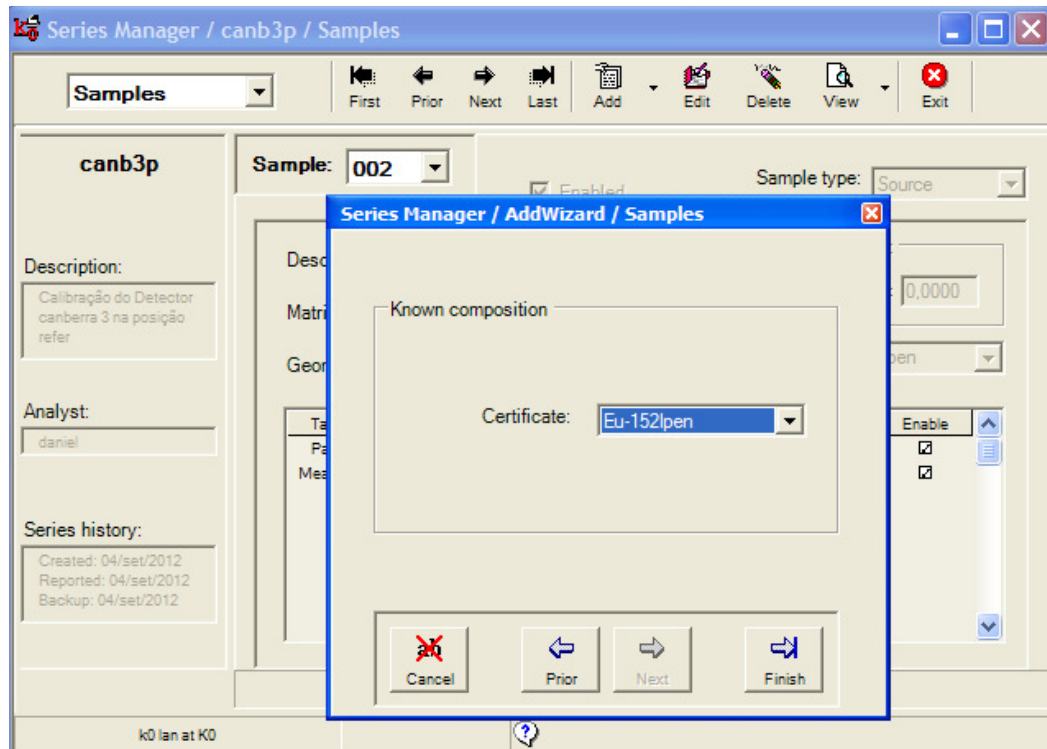


Figura A.19 – Selecionar o certificado para a fonte. Depois clicar em **Finish** para finalizar o processo de cadastramento das fontes.

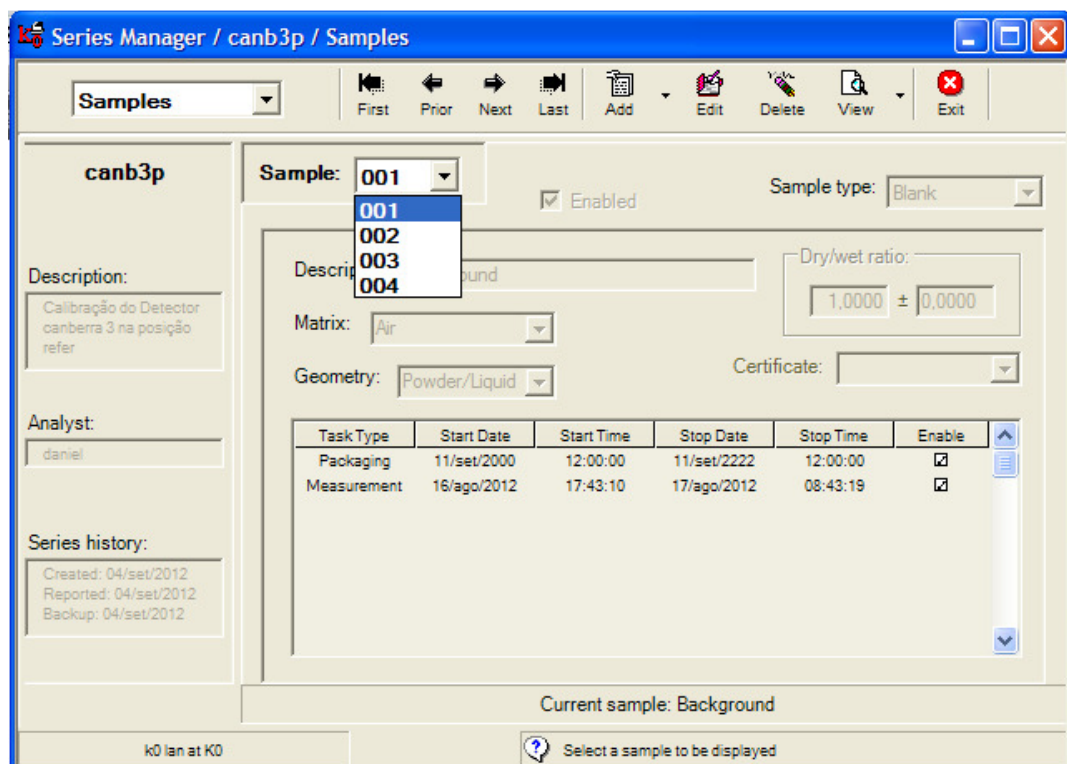


Figura A.20 – Selecionar cada item e editar se necessário.

Series Manager / canb3p / Samples

Samples

First Prior Next Last Add Edit Delete View Exit

canb3p

Sample: 001 ☒ Enabled Sample type: Blank

Description: Background Dry/wet ratio: 1.0000 ± 0.0000

Matrix: Air

Geometry: Powder/Liquid Certificate:

Analyst: daniel

Series history: Created: 04/set/2012 Reported: 04/set/2012 Backup: 04/set/2012

Current sample: Background

k0 lan at K0

Figura A.21 – Selecionar cada item e editar se necessário. A **Matrix: Air** não está cadastrada, é necessário sair do **Series database** e ir no **Permanent database – Matrices** e cadastrar. Feito isso retorne ao serie database e continue o procedimento.

Data Manager / Matrices

Matrices

First Prior Next Last Add Edit Delete View Exit

Element	Concentration	Uncertainty
N	790000	7900
O	210000	2100

Material: Air

Description: ☒ Enabled
Air_0(21%)_n(79%)

Density (g/cm3): 0.0012

k0 lan at K0

Figura A.22 – Vista do ícone **Matrices** com os dados da matriz do **Background** cadastrado.

The screenshot shows the 'Series Manager / canb3p / Samples' window. The 'Sample' dropdown is set to '002'. The 'Enabled' checkbox is checked. The 'Sample type' is 'Source'. The 'Description' field contains 'EU-152 ref52036 (First Europio)'. The 'Matrix' is 'Polietileno'. The 'Geometry' is 'Powder/Liquid'. The 'Certificate' is 'Eu-152lpen'. The 'Dry/wet ratio' is '1.0000 ± 0.0000'. The 'Analyst' is 'daniel'. The 'Series history' shows 'Created: 04/set/2012', 'Reported: 04/set/2012', and 'Backup: 04/set/2012'. The 'Current sample' is 'EU-152 ref52036 (First Europio)'. The status bar shows 'k0 lan at K0'.

Figura A.23 – Selecionar cada item e editar se necessário.

The screenshot shows the 'Series Manager / canb3p / Samples' window. The 'Sample' dropdown is set to '003'. The 'Enabled' checkbox is checked. The 'Sample type' is 'Source'. The 'Description' field contains 'CS-137 ref37044'. The 'Matrix' is 'Polietileno'. The 'Geometry' is 'Powder/Liquid'. The 'Certificate' is 'Cs-137lpen'. The 'Dry/wet ratio' is '1.0000 ± 0.0000'. The 'Analyst' is 'daniel'. The 'Series history' shows 'Created: 04/set/2012', 'Reported: 04/set/2012', and 'Backup: 04/set/2012'. The 'Current sample' is 'CS-137 ref37044'. The status bar shows 'k0 lan at K0'.

Figura A.24 – Selecionar cada item e editar se necessário.

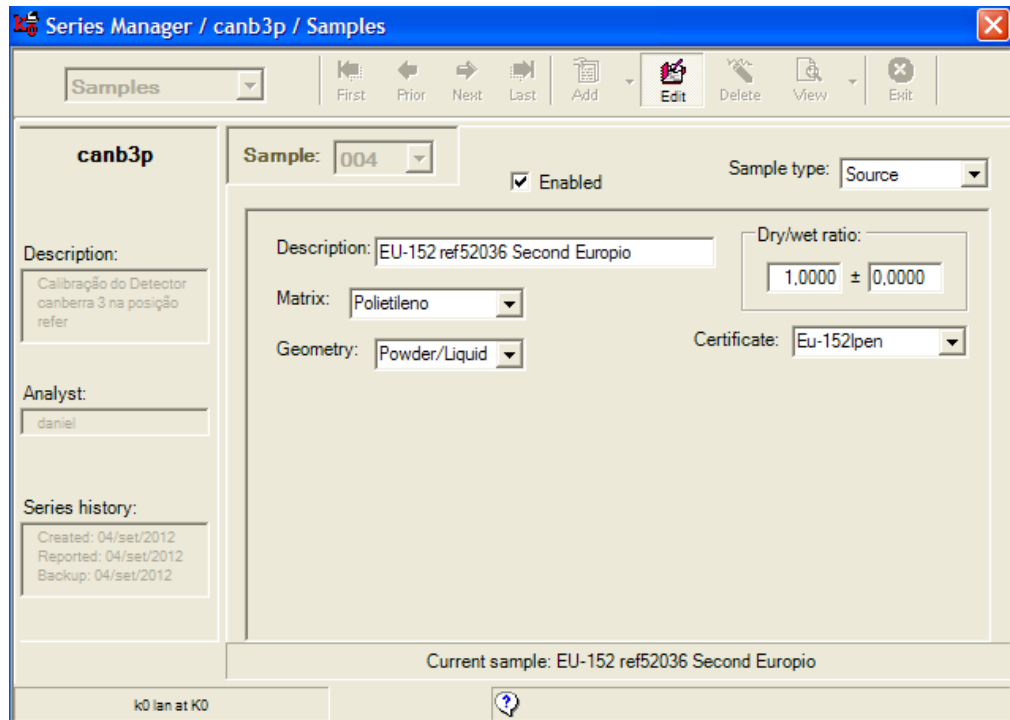


Figura A.25 – Selecionar cada item e editar se necessário.

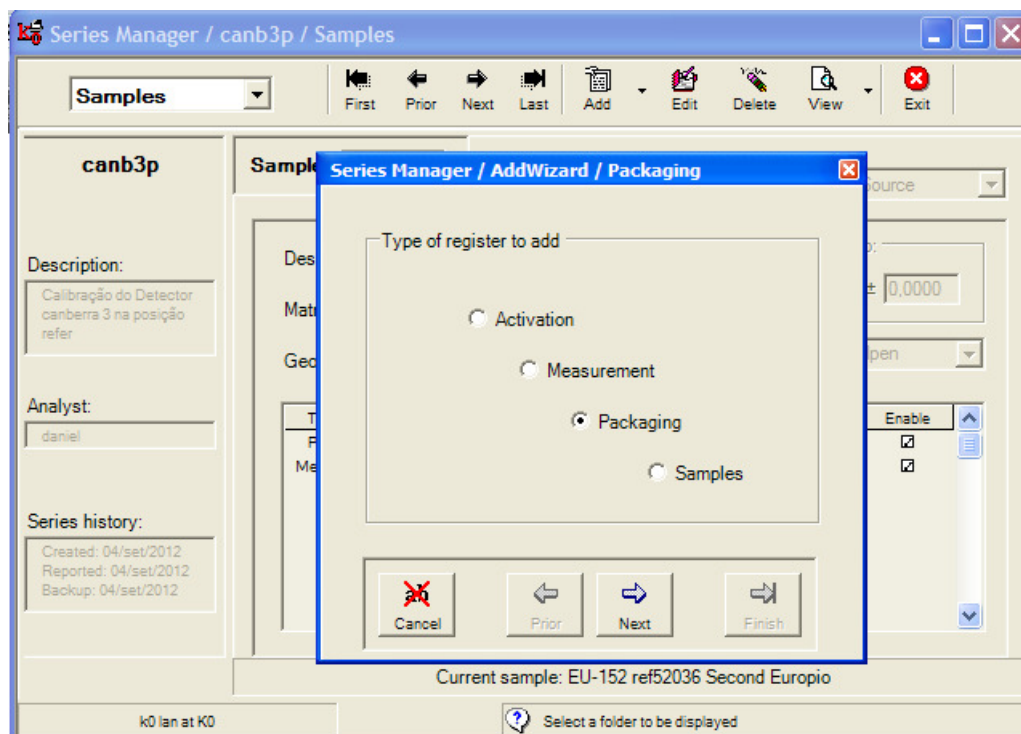


Figura A.26 – Clique no ícone **Add** e depois selecione **Packaging**.

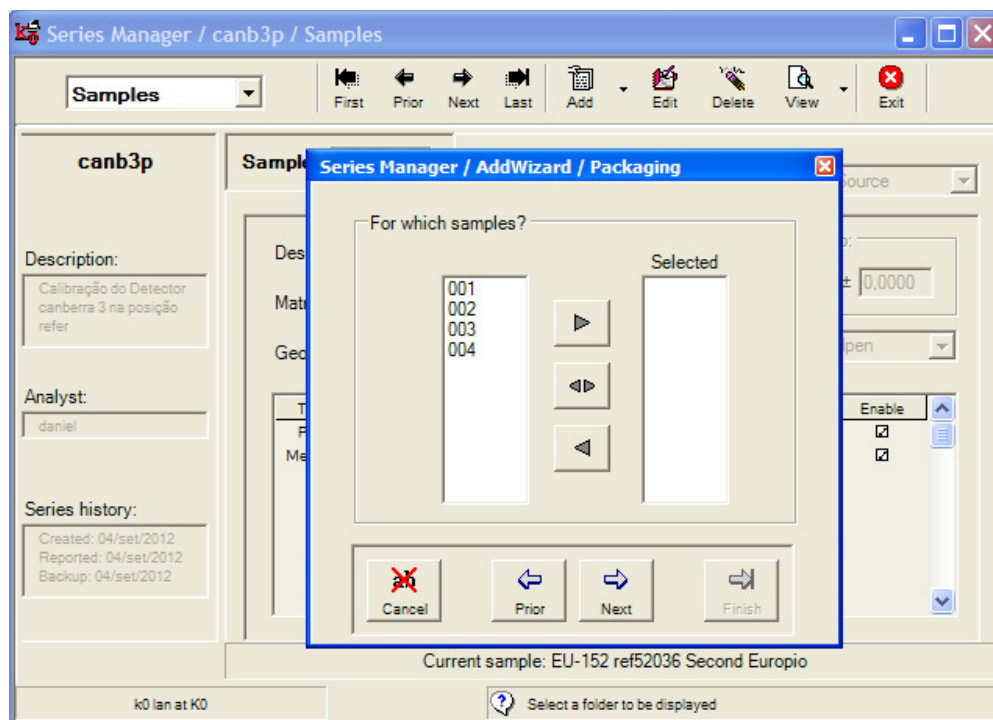


Figura A.27 – Selecione todos os itens desejados (nesse caso todos).

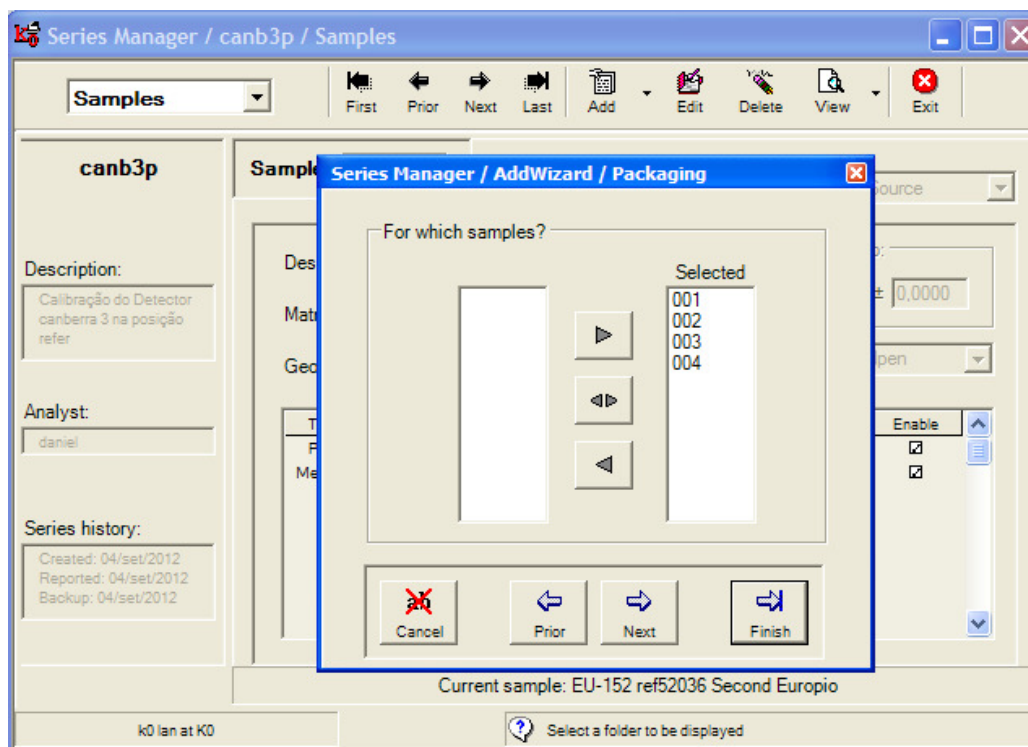


Figura A.28 – Todos os itens selecionados.

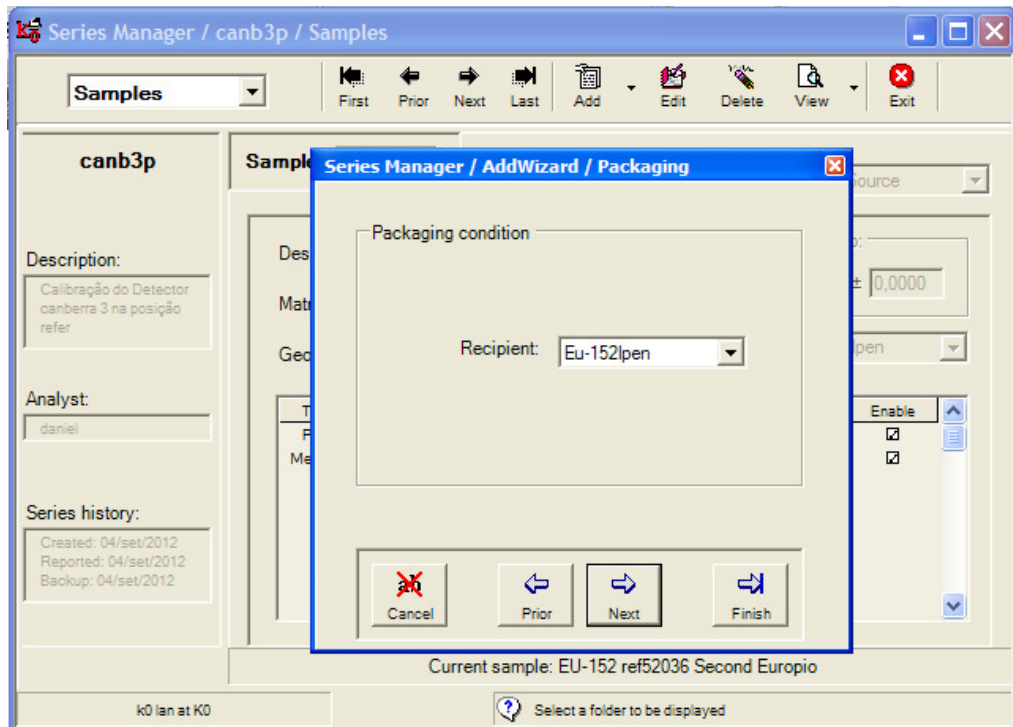


Figura A.29 – Selecionar o recipiente desejado.

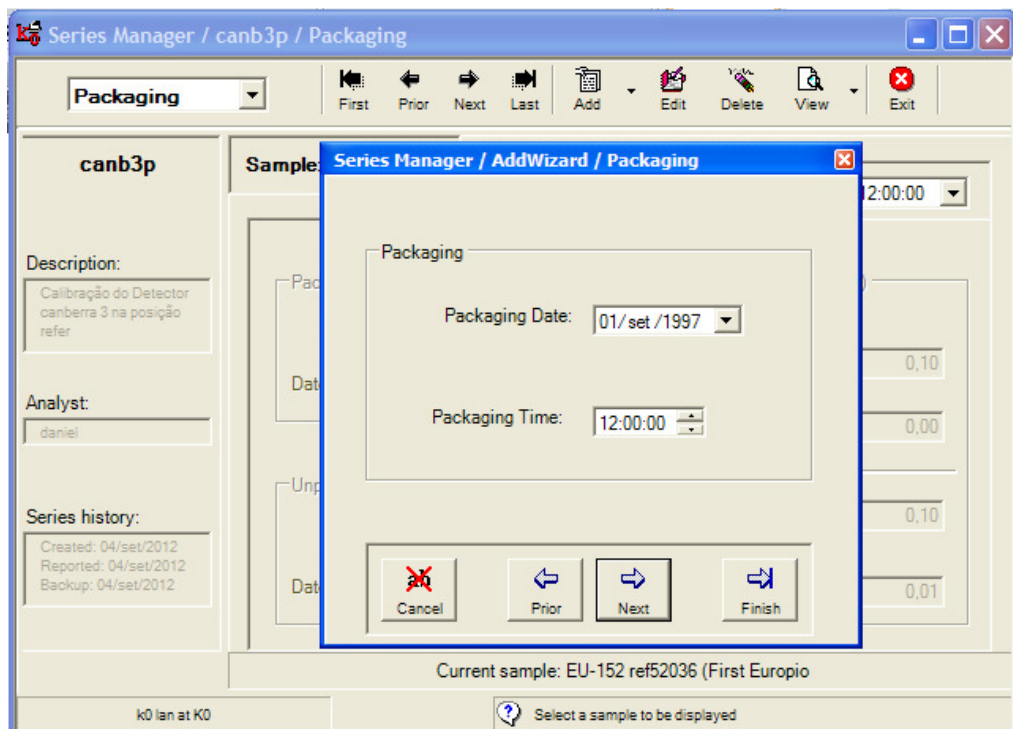


Figura A.30 – Cadastrar data e horário da preparação das fontes.

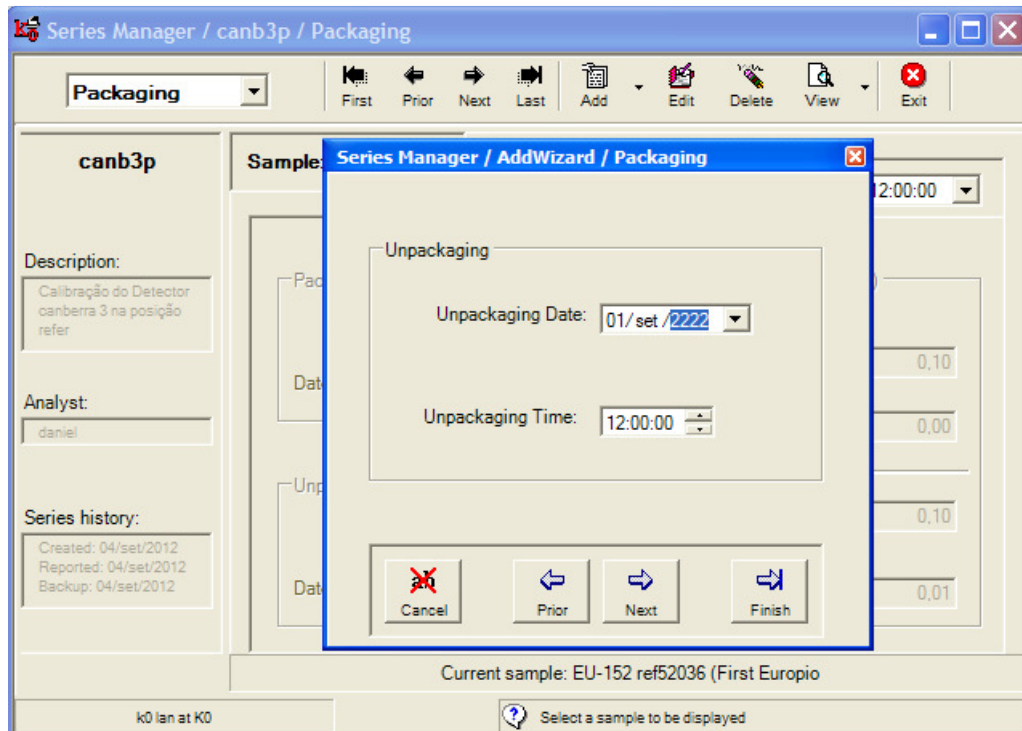


Figura A.31 – Cadastrar data e horário da validade das fontes (se não existir coloque uma estimativa).

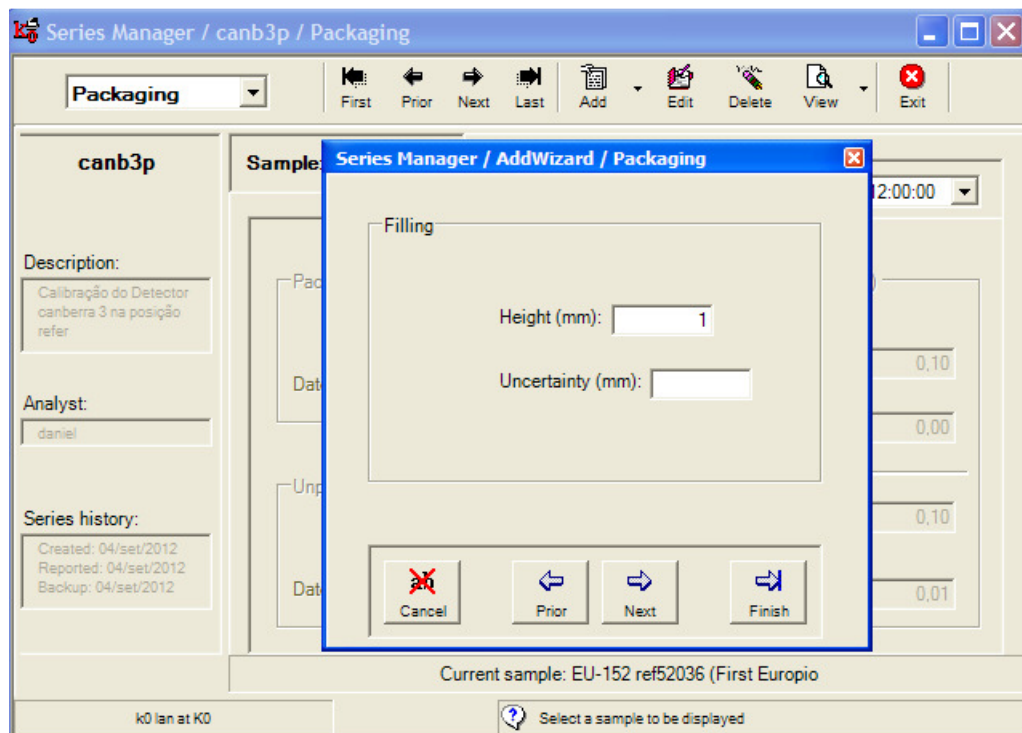


Figura A.32 – Altura da fonte.

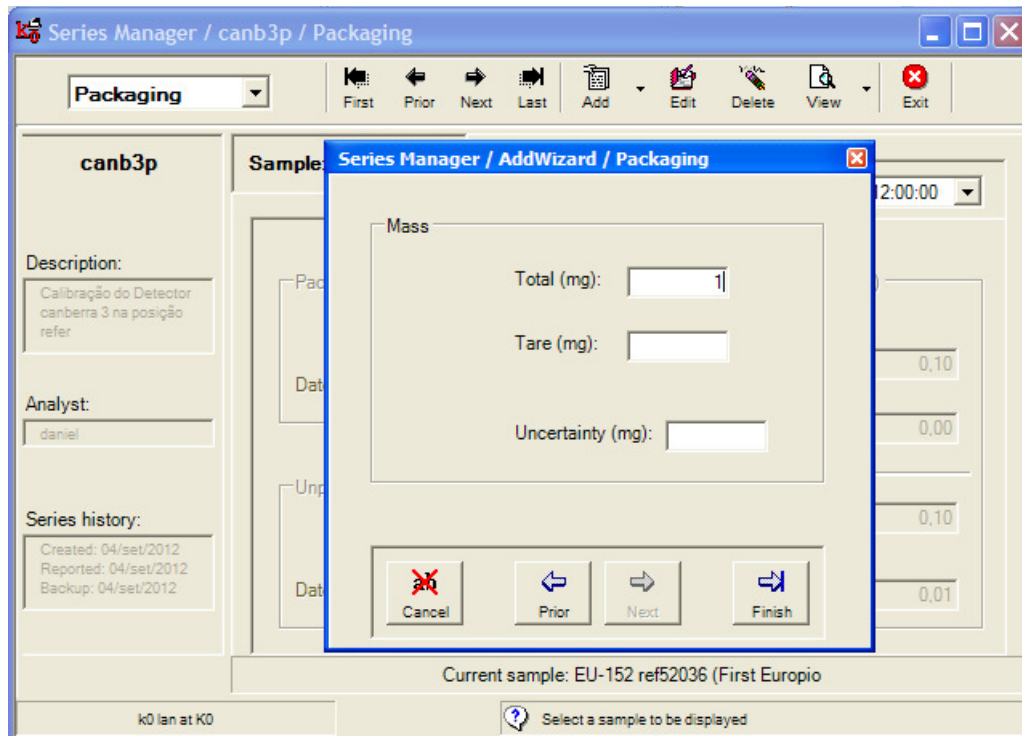


Figura A.33 – Massa da fonte (normalmente não se sabe o valor da massa da fonte então o autor sugere utilizar 1). Depois clicar em **Finish** para completar o processo.

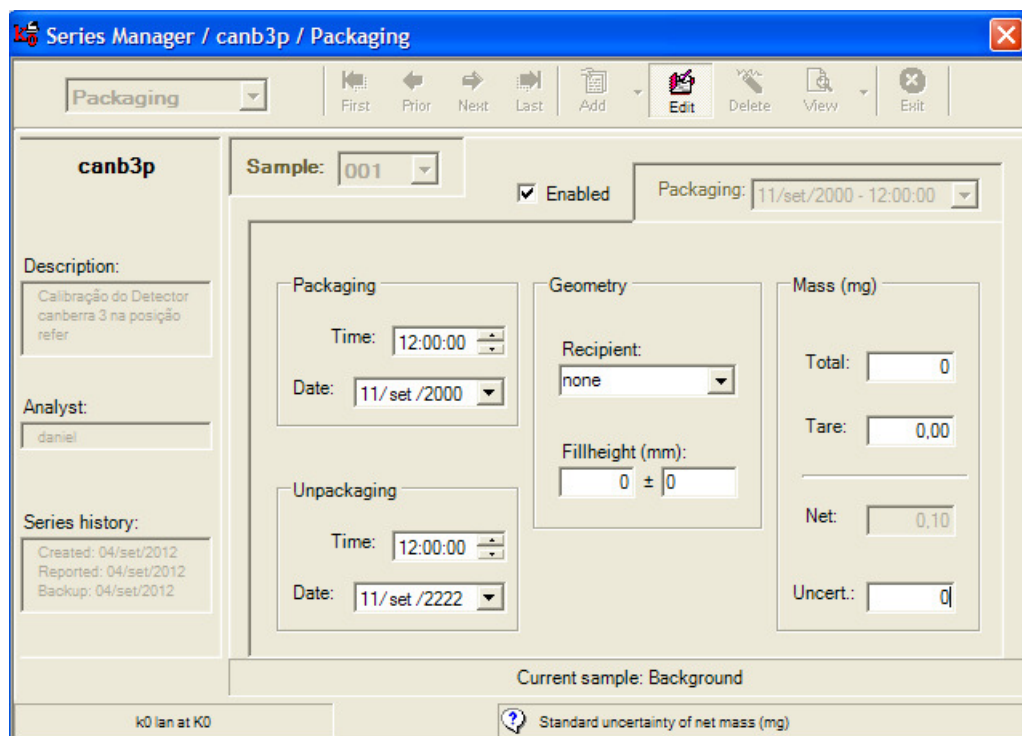


Figura A.34 – Selecionar cada item e editar se necessário.

Series Manager / canb3p / Packaging

Packaging

First Prior Next Last Add Edit Delete View Exit

canb3p

Sample: 002

Enabled

Packaging: 01/set/1997 - 12:00:00

Description:
Calibração do Detector canberra 3 na posição refer

Analyst:
daniel

Series history:
Created: 04/set/2012
Reported: 04/set/2012
Backup: 04/set/2012

Packaging

Time: 12:00:00

Date: 01/set/1997

Geometry

Recipient: Eu-152|pen

Fillheight (mm): 1 ± 0,01

Mass (mg)

Total: 1

Tare: 0,00

Net: 0,10

Uncert.: 0,01

Unpackaging

Time: 12:00:00

Date: 11/set/2222

Current sample: EU-152 ref52036 (First Europio)

k0 lan at K0

Total mass (sample+recipient) of sample (mg)

Figura A.35 – Selecionar cada item e editar se necessário.

Series Manager / canb3p / Packaging

Packaging

First Prior Next Last Add Edit Delete View Exit

canb3p

Sample: 003

Enabled

Packaging: 01/out/1991 - 12:00:00

Description:
Calibração do Detector canberra 3 na posição refer

Analyst:
daniel

Series history:
Created: 04/set/2012
Reported: 04/set/2012
Backup: 04/set/2012

Packaging

Time: 12:00:00

Date: 01/out/1991

Geometry

Recipient: Eu-152|pen

Fillheight (mm): 1 ± 0,01

Mass (mg)

Total: 1

Tare: 0,00

Net: 0,10

Uncert.: 0,01

Unpackaging

Time: 12:00:00

Date: 11/set/2222

Current sample: CS-137 ref37044

k0 lan at K0

Total mass (sample+recipient) of sample (mg)

Figura A.36 – Selecionar cada item e editar se necessário.

Series Manager / canb3p / Packaging

Packaging

Sample: 004

Enabled

Packaging: 01/set/1997 - 12:00:00

Description: Calibração do Detector canberra 3 na posição refer

Analyst: daniel

Series history: Created: 04/set/2012
Reported: 04/set/2012
Backup: 04/set/2012

Packaging

Time: 12:00:00

Date: 01/set/1997

Geometry

Recipient: Eu-152|pen

Fillheight (mm): 1 ± 0.01

Mass (mg)

Total: 1

Tare: 0.00

Net: 0.10

Uncert.: 0.01

Unpackaging

Time: 12:00:00

Date: 11/set/2222

Current sample: EU-152 ref52036 Second Europio

k0 lan at K0

Total mass (sample+recipient) of sample (mg)

Figura A.37 – Selecionar cada item e editar se necessário.

Series Manager / canb3p / Samples

Samples

Activation

Measurement

Packaging

Samples

Series

Sample: 004

Enabled

Sample type: Source

Description: EU-152 ref52036 Second Europio

Dry/wet ratio: 1.0000 ± 0.0000

Matrix: Polietileno

Geometry: Powder/Liquid

Certificate: Eu-152|pen

Task Type	Start Date	Start Time	Stop Date	Stop Time	Enable
Packaging	01/set/1997	12:00:00	11/set/2222	12:00:00	<input checked="" type="checkbox"/>
Measurement	31/ago/2012	10:09:04	31/ago/2012	14:19:35	<input checked="" type="checkbox"/>
Packaging	16/abr/2013	12:00:00	16/abr/2013	12:00:00	<input checked="" type="checkbox"/>

Current sample: EU-152 ref52036 Second Europio

k0 lan at K0

Select a folder to be displayed

Figura A.38 – Selecionar **Measurement** e clicar em **Add**.

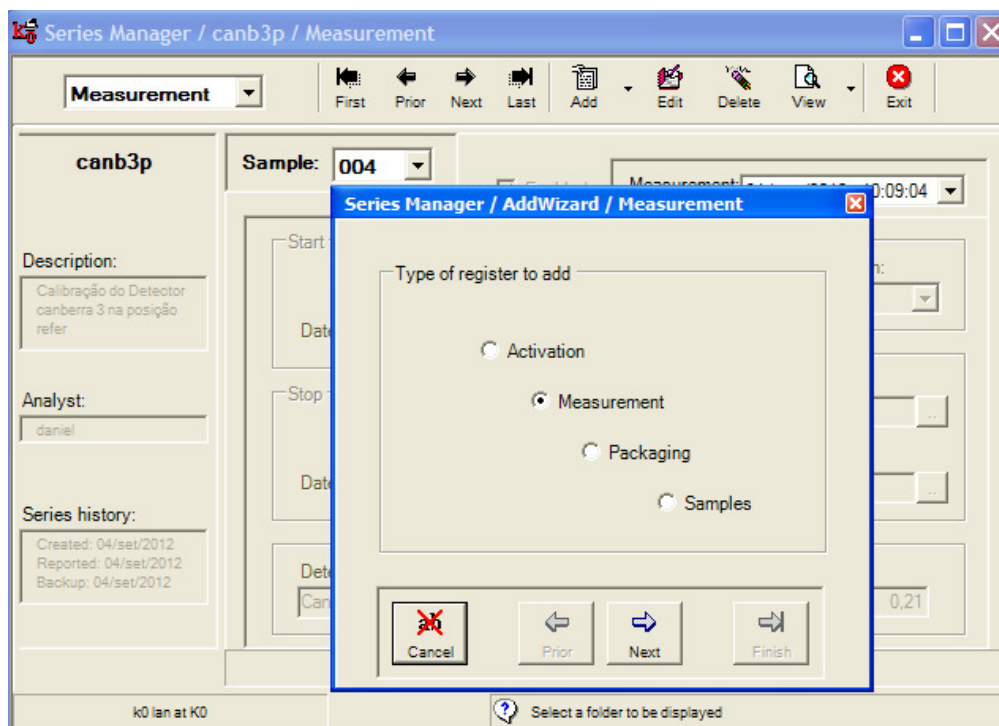


Figura A.39 – Selecionar **Measurement**.

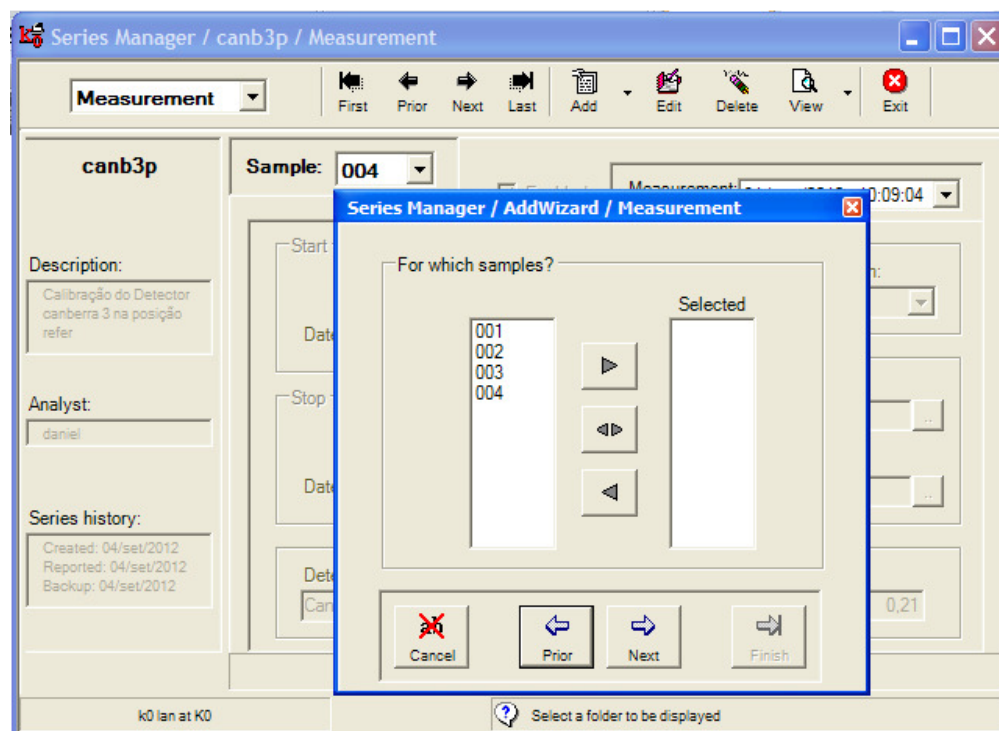


Figura A.40 – Selecionar todos os itens desejados (nesse caso todos).

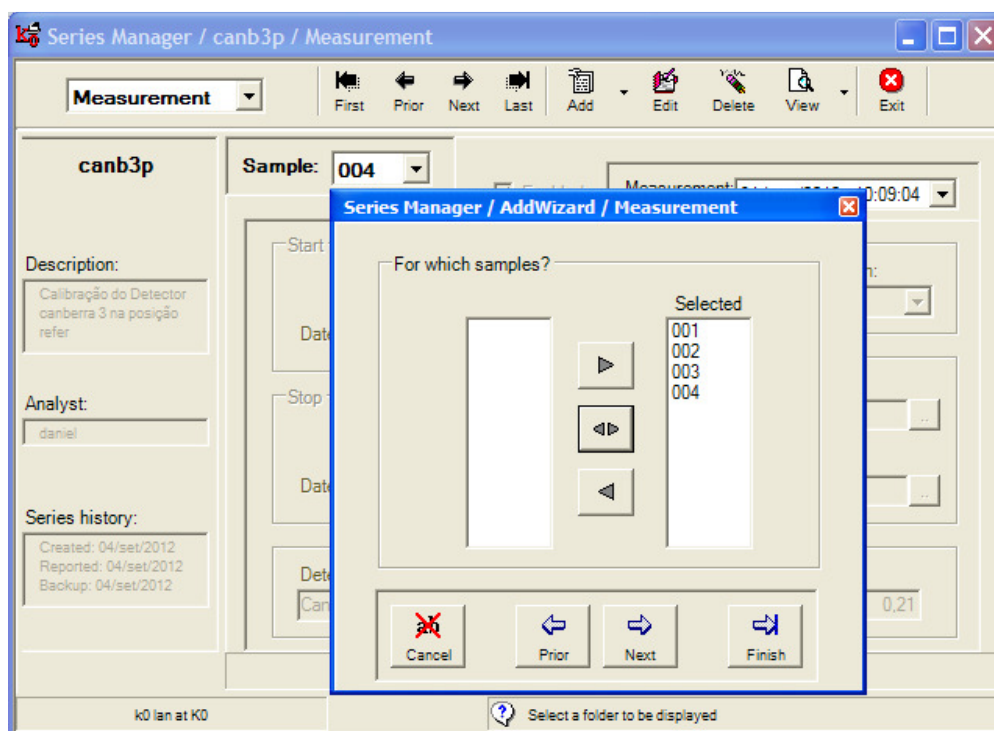


Figura A.41 – Todos os itens selecionados.

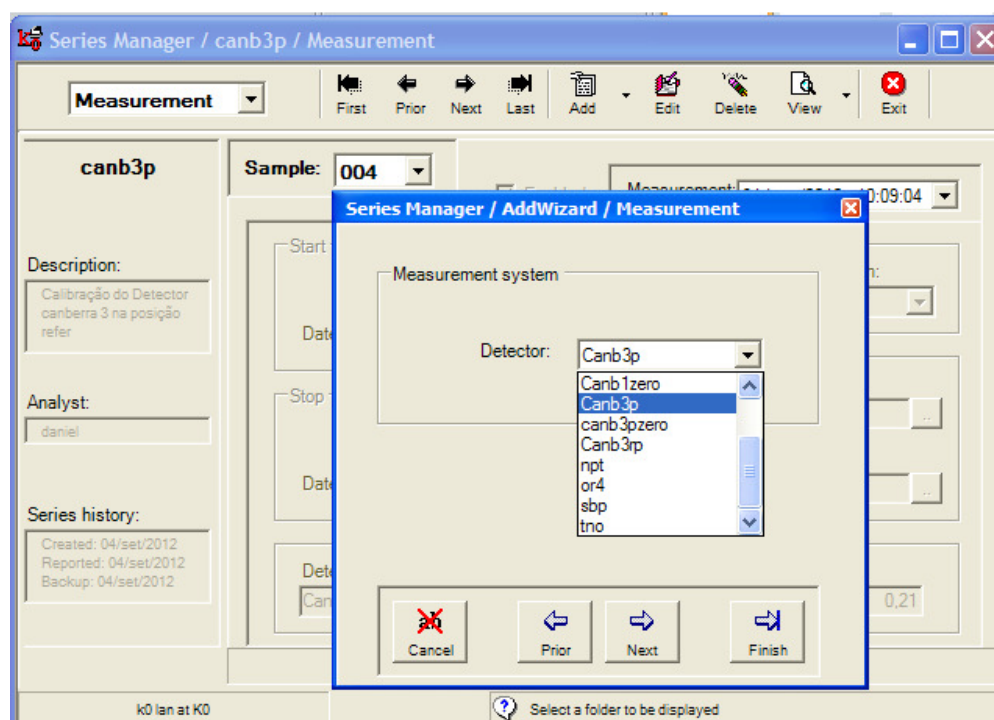


Figura A.42 – Selecionar o detector onde foram feitas as medições das fontes (cadastrado inicialmente).

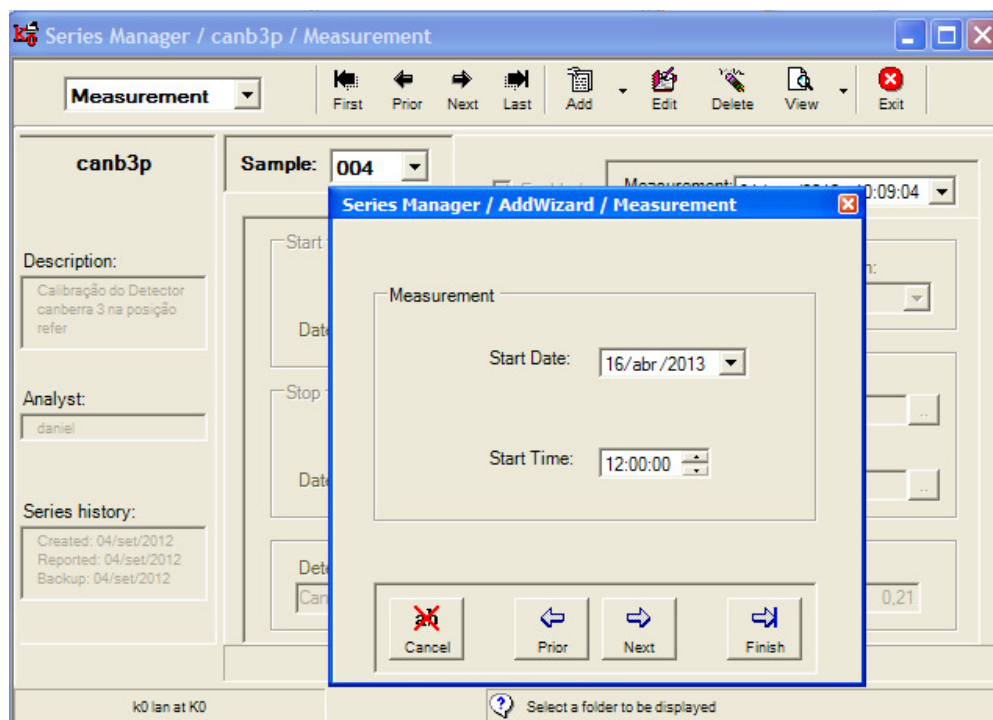


Figura A.43 – Não é necessário introduzir manualmente data e horário, pois o programa lê dos arquivos.

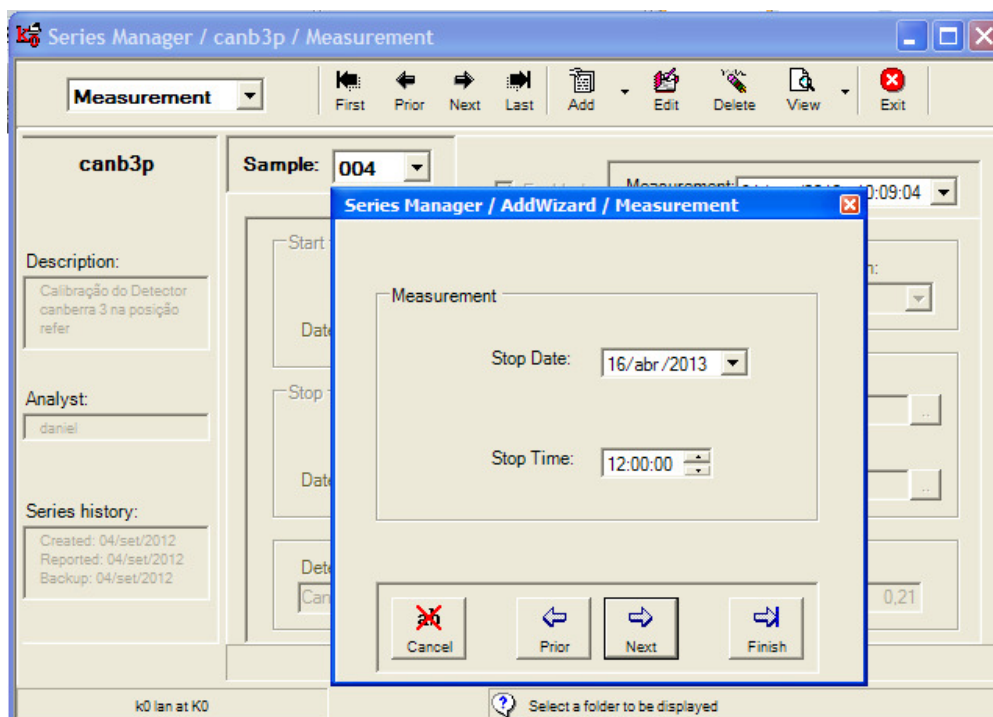


Figura A.44 - Não é necessário introduzir manualmente data e horário, pois o programa lê dos arquivos.

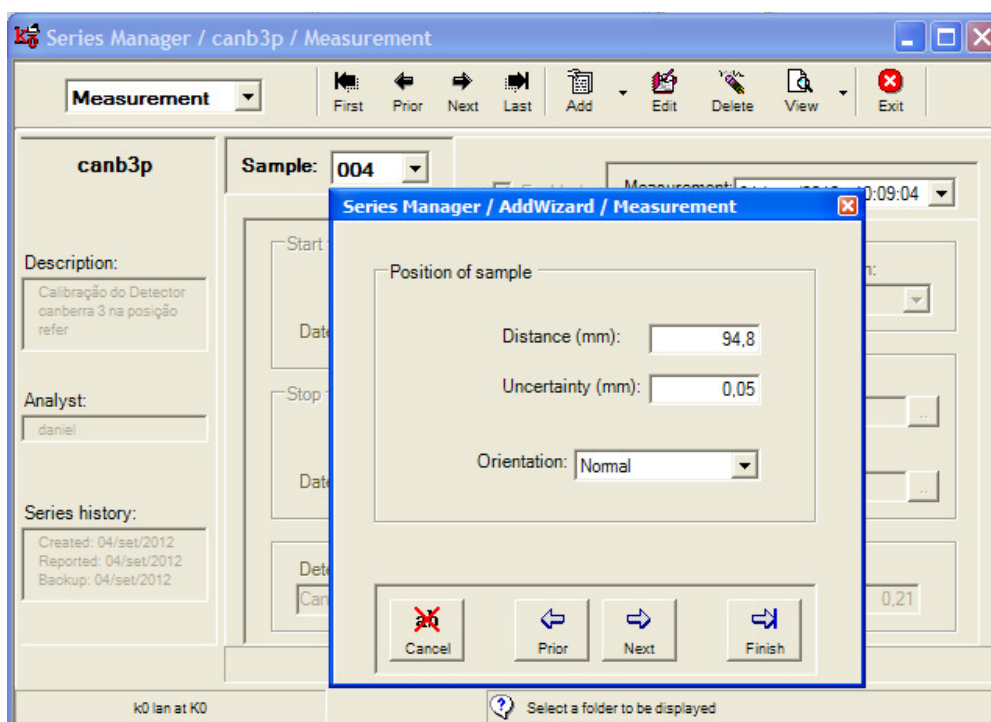


Figura A.45 – Inserir a distância da posição de contagem até o cristal do detector.

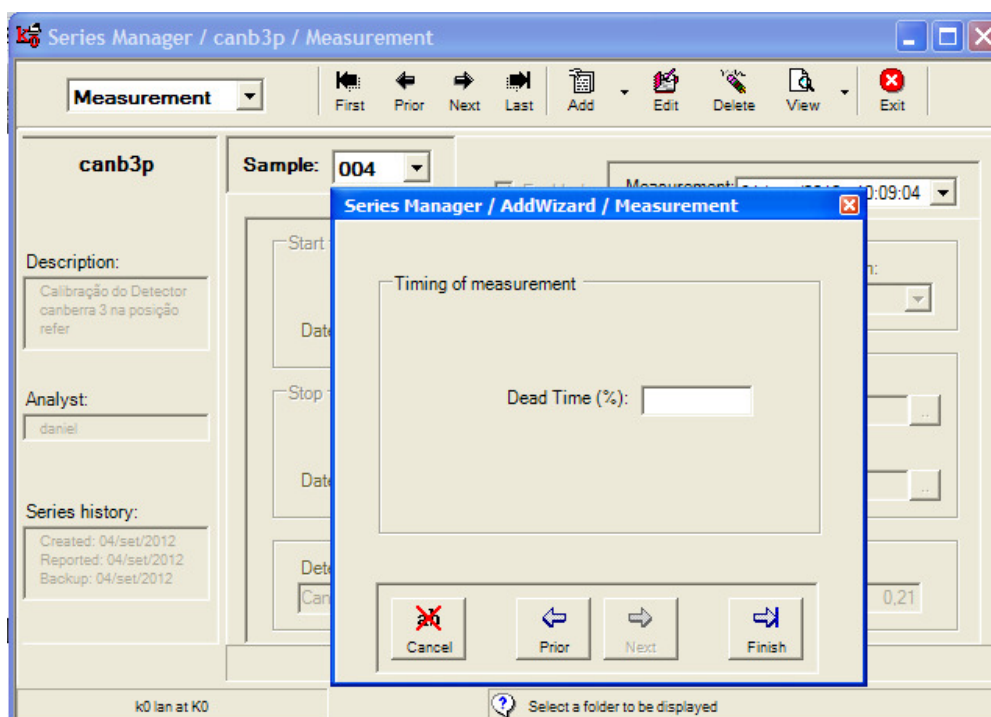


Figura A.46 – O tempo morto não é necessário introduzir manualmente, pois o programa lê do arquivo. Depois clique em **Finish** para finalizar.

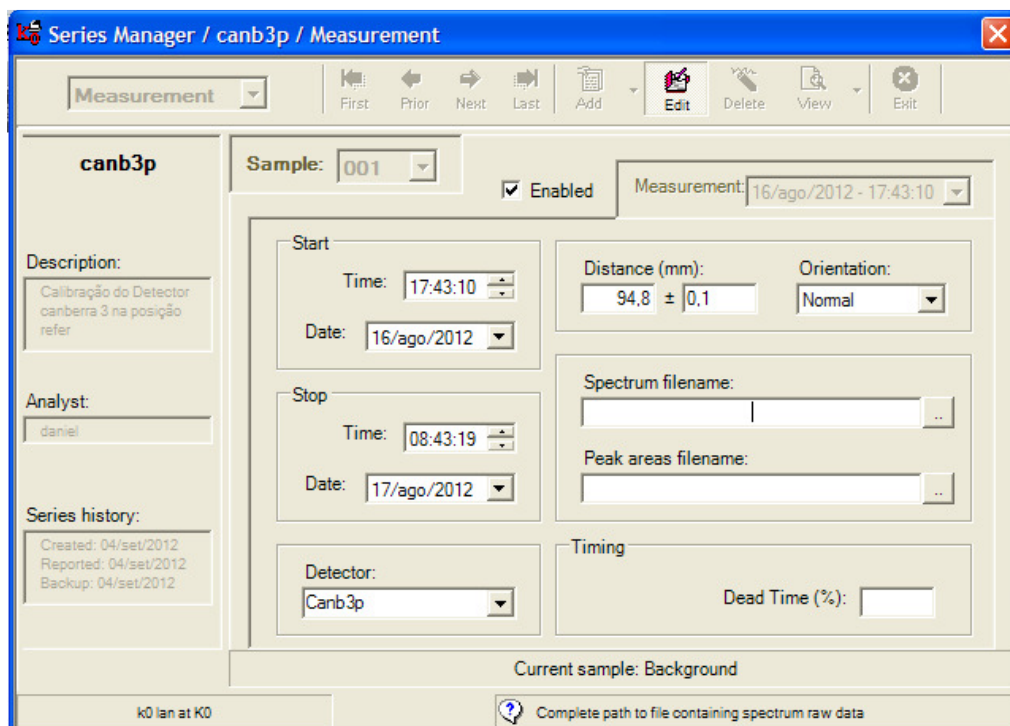


Figura A.47 – Selecionar **Measurement – Sample 1**, clicar em **Edit** e abrir a caixa de diálogo **Spectrum filename**.

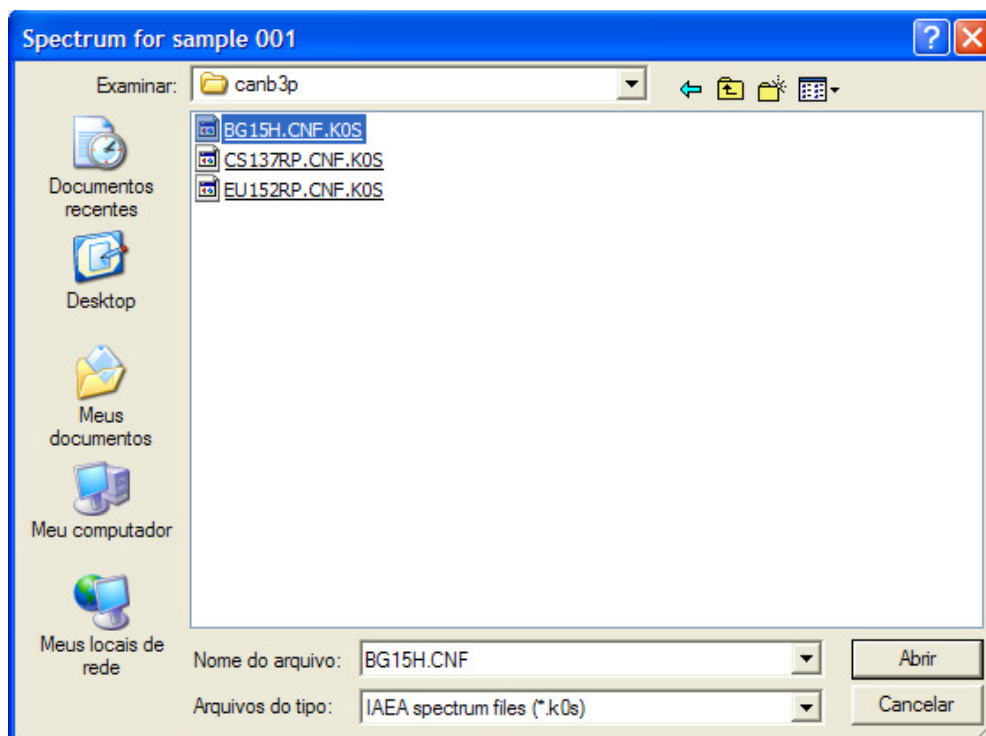


Figura A.48 – Selecionar os arquivos copiados na pasta referente ao trabalho (Figura A.11). O primeiro item da **Series** é o **Background**.

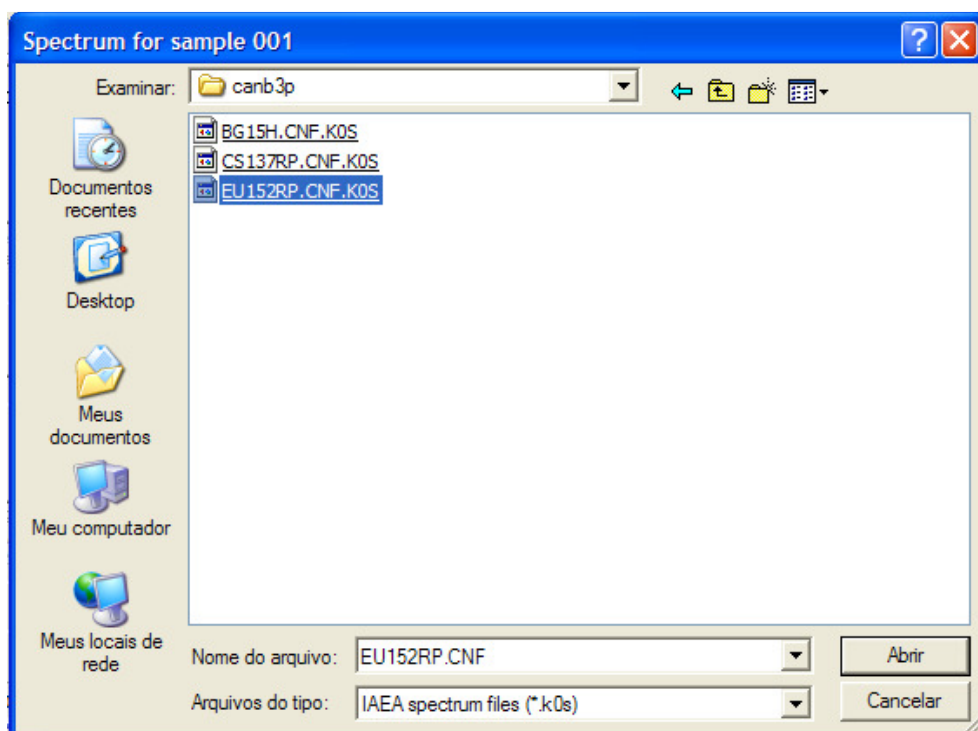


Figura A.49 – Na *Sample 2*, repetir o procedimento da figura A.47. Selecione o arquivo da fonte de Eu. (primeiro Európio).

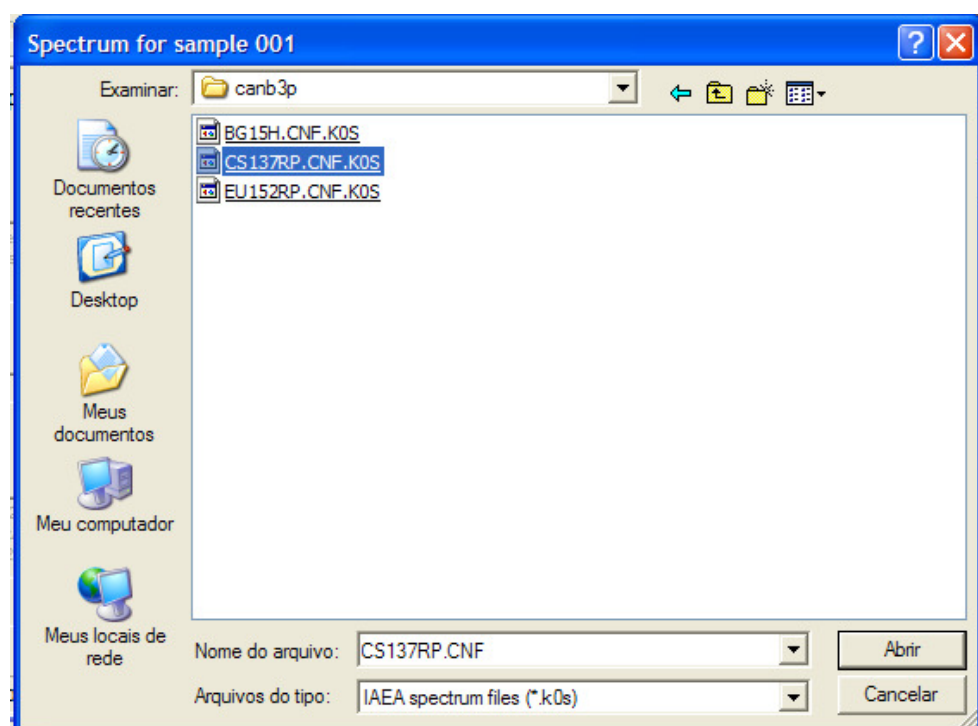


Figura A.50 – Na *sample 3*, repetir o mesmo procedimento da figura A.47. Selecione o arquivo da fonte de Cs

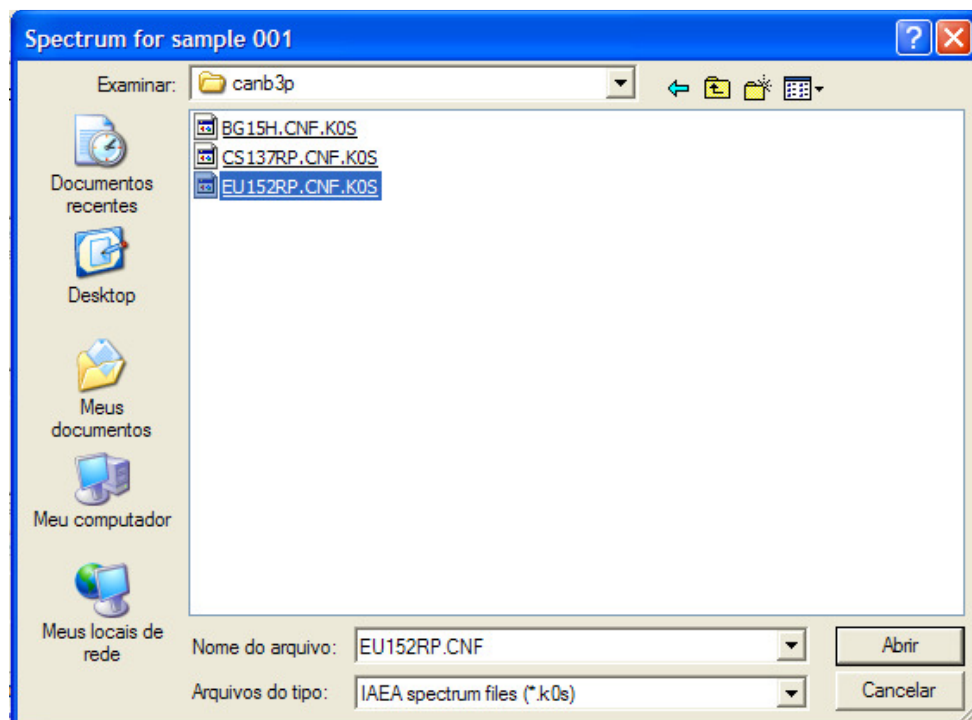


Figura A.51 – Na Sample 2, repetir o procedimento da figura A.47. Selecione o arquivo da fonte de Eu (o mesmo espectro selecionado anteriormente). (2ºEurópio). Realizado esse procedimento clique em **Exit** e saia do **Series database**.

Nos passos anteriores foi feito o cadastramento dos dados referentes ao detector, fontes e recipientes de contagem utilizados. O próximo passo será analisar, calibrar em energia e construir a curva de eficiência do detector.

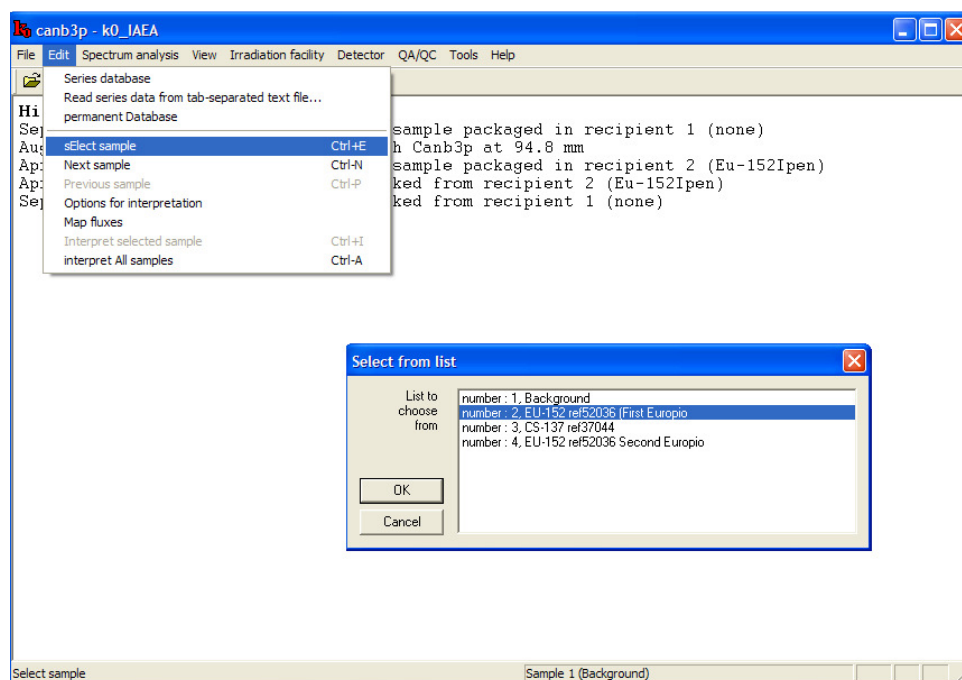


Figura A.52 – Clicar em **Edit** → **sElect sample** → **number: 2, Eu-152**

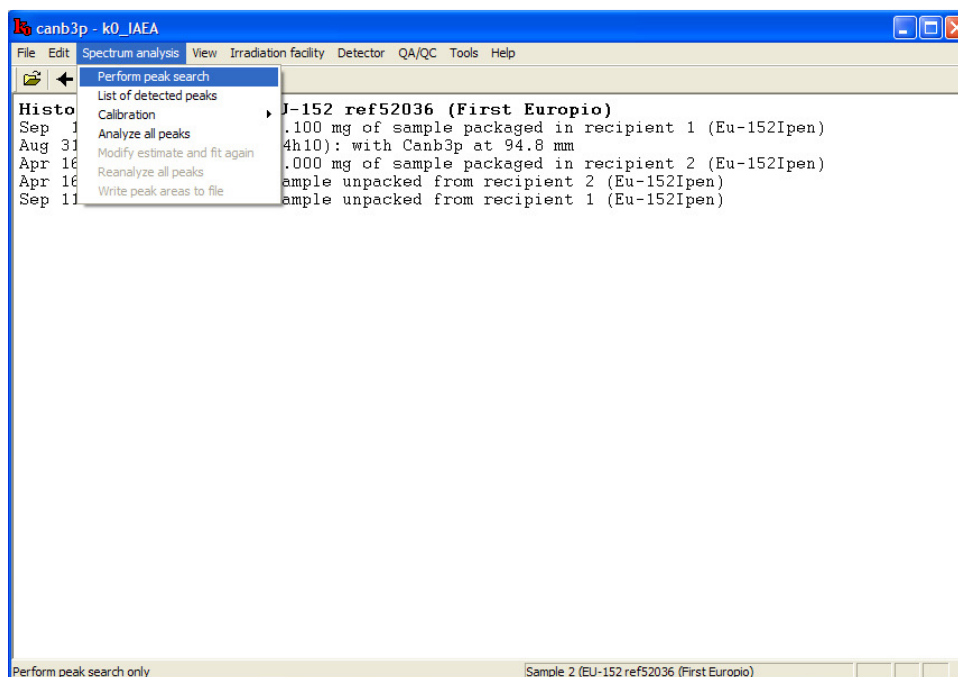


Figura A.53 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Perform peak search**.

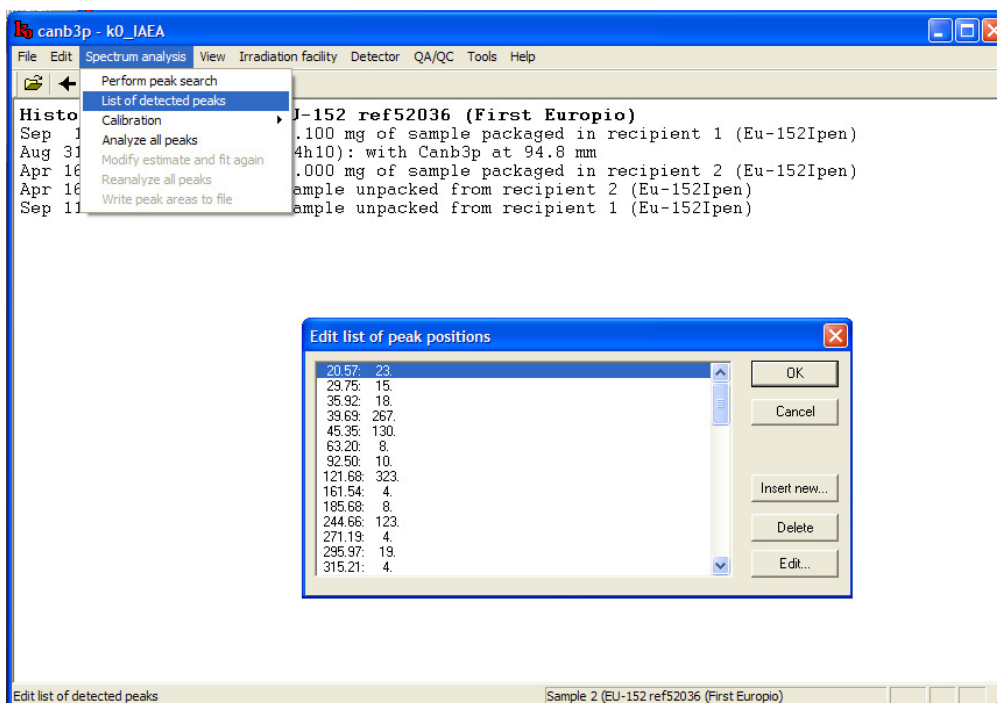


Figura A.54 – Clicar em **Spectrum analysis** → **List of detected peaks**. Delete o primeiro pico e os picos que apresentam apenas 3 contagens.

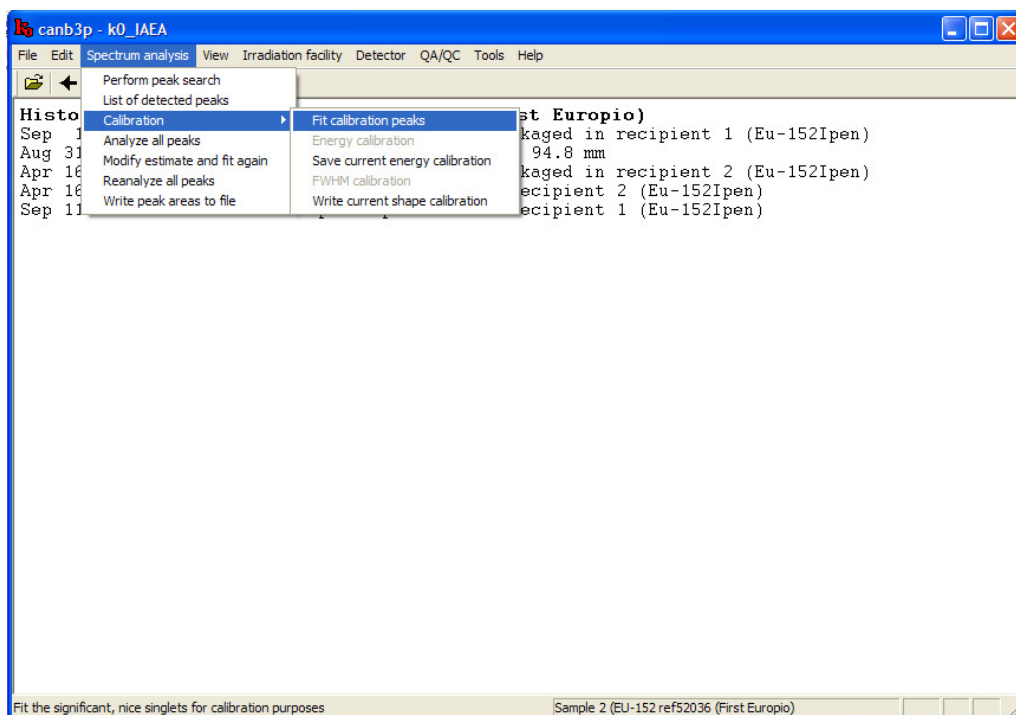


Figura A.55 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Calibration** → **Fit calibration peaks**.

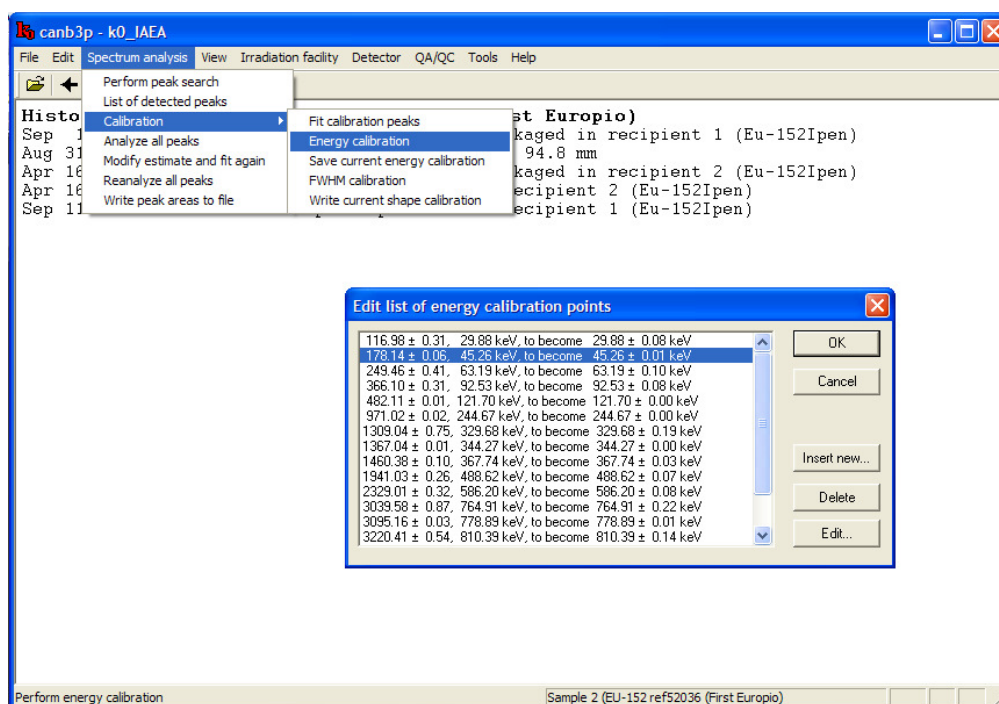


Figura A.56 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Calibration** → **Energy calibration** → dar duplo-clique na linha desejada e acertar o canal com sua respectiva energia.

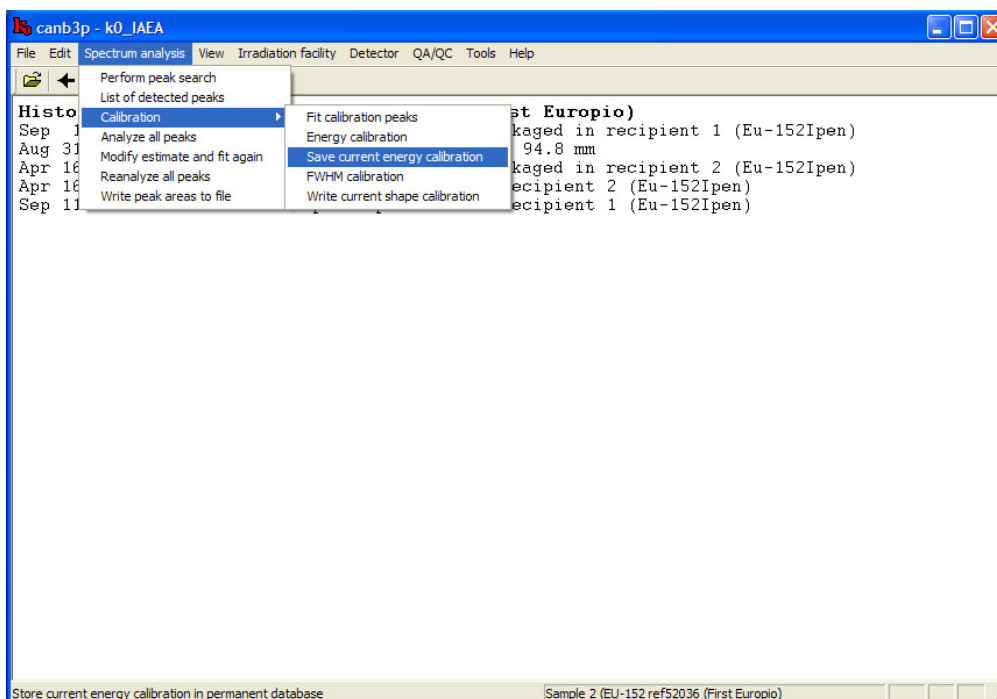


Figura A.57 – Depois de todas as linhas acertadas clicar em **Spectrum analysis** → **Calibration** → **Save current energy calibration**.

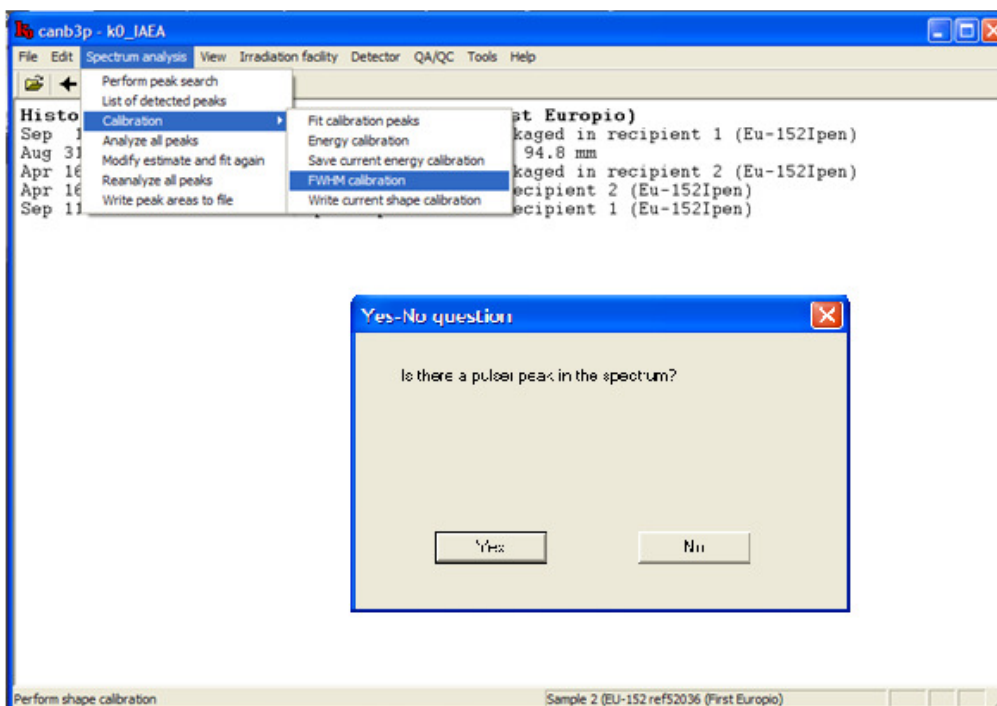


Figura A.58 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Calibration** → **FWHM calibration**. Irá aparecer uma pergunta : *Is there a pulser peak in the spectrum?* Responda que não (No).

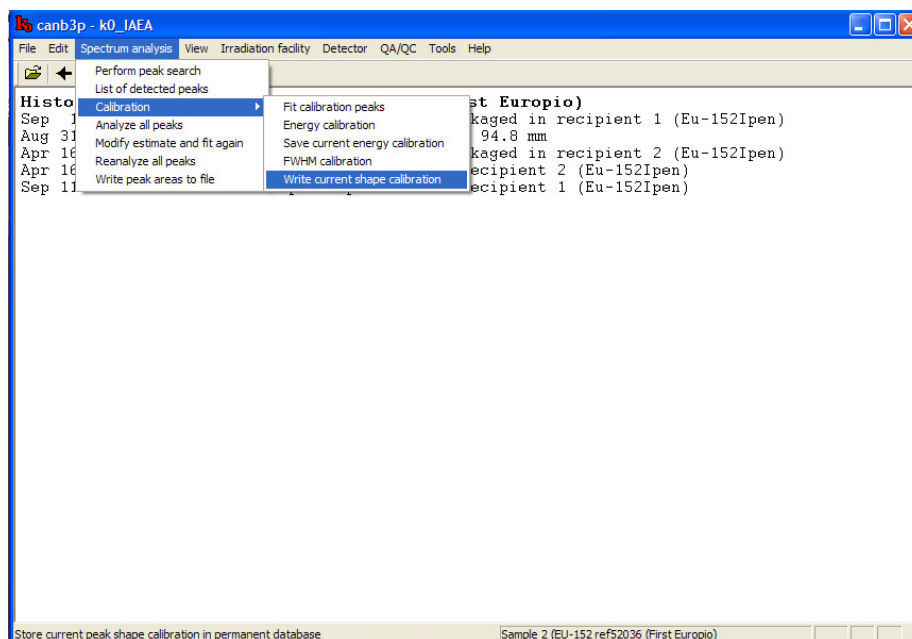


Figura A.59 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Calibration** → **Write current shape calibration**.

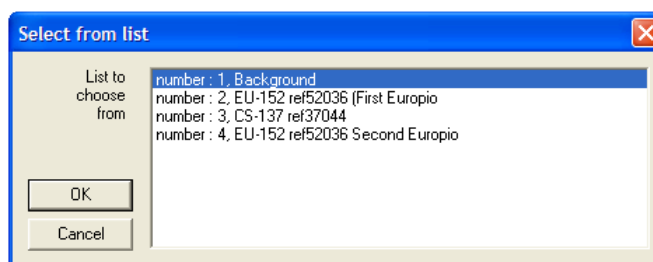


Figura A.60 – Selezione **number:1, Background**.

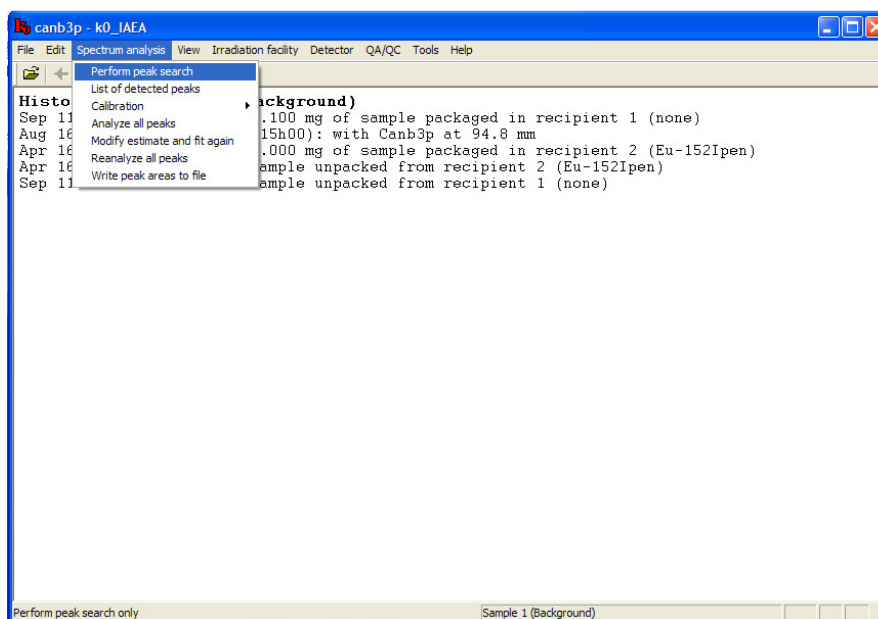


Figura A.61 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Perform peak search**.

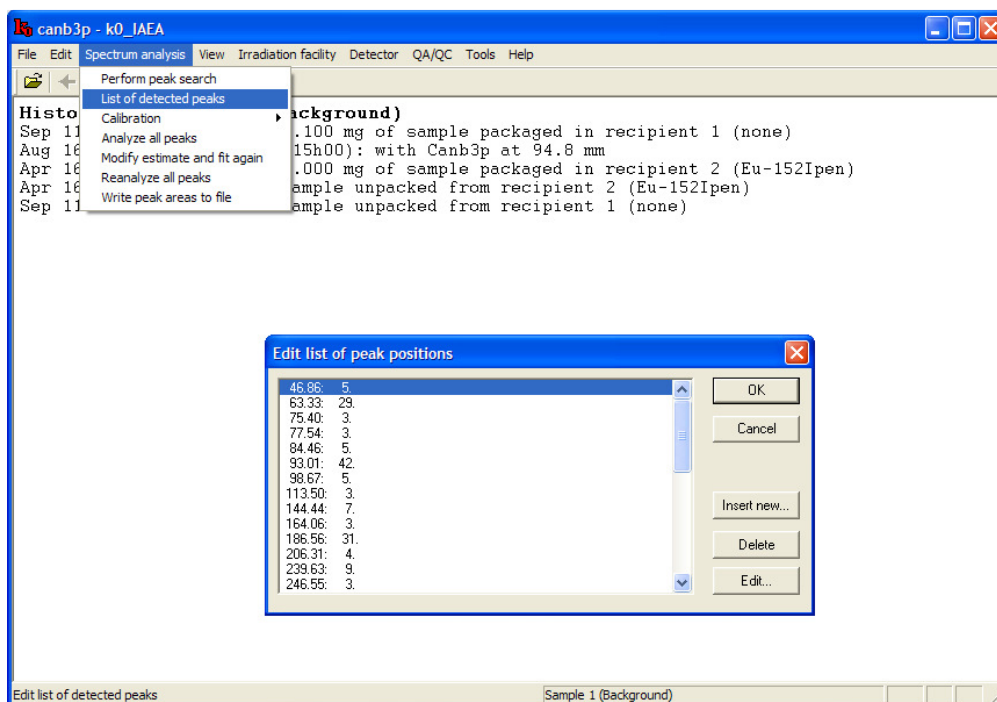


Figura A.62 – Clicar em **Spectrum analysis** → **List of detected peaks**. Delete o primeiro pico.

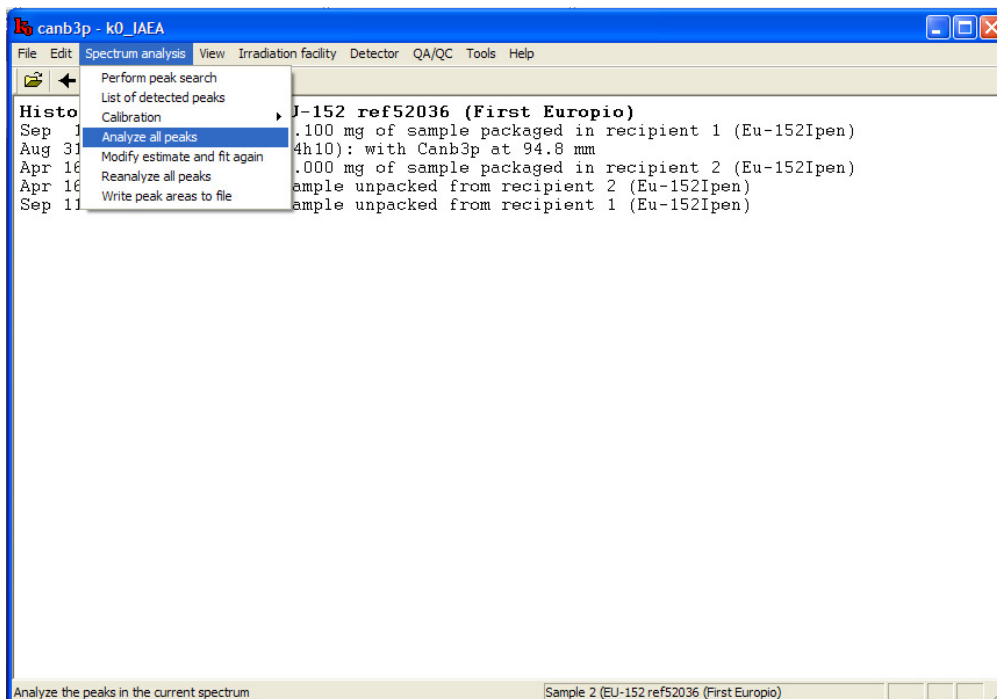


Figura A.63 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Analyze all peaks**.

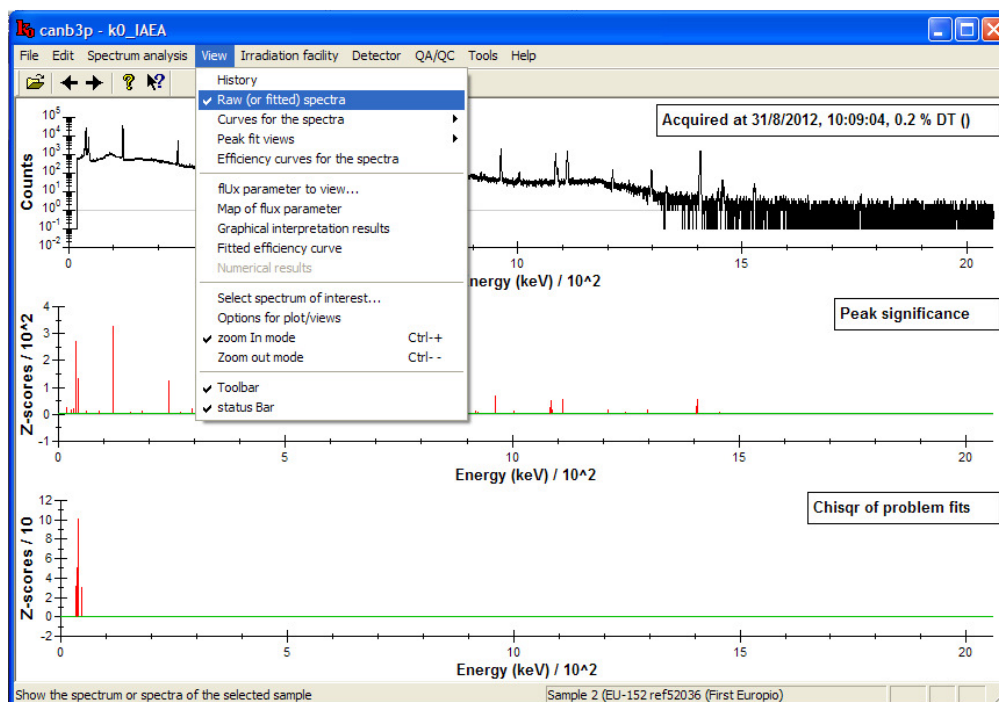


Figura A.64 – Clicar em **View** → **Raw (or fitted) spectra**.

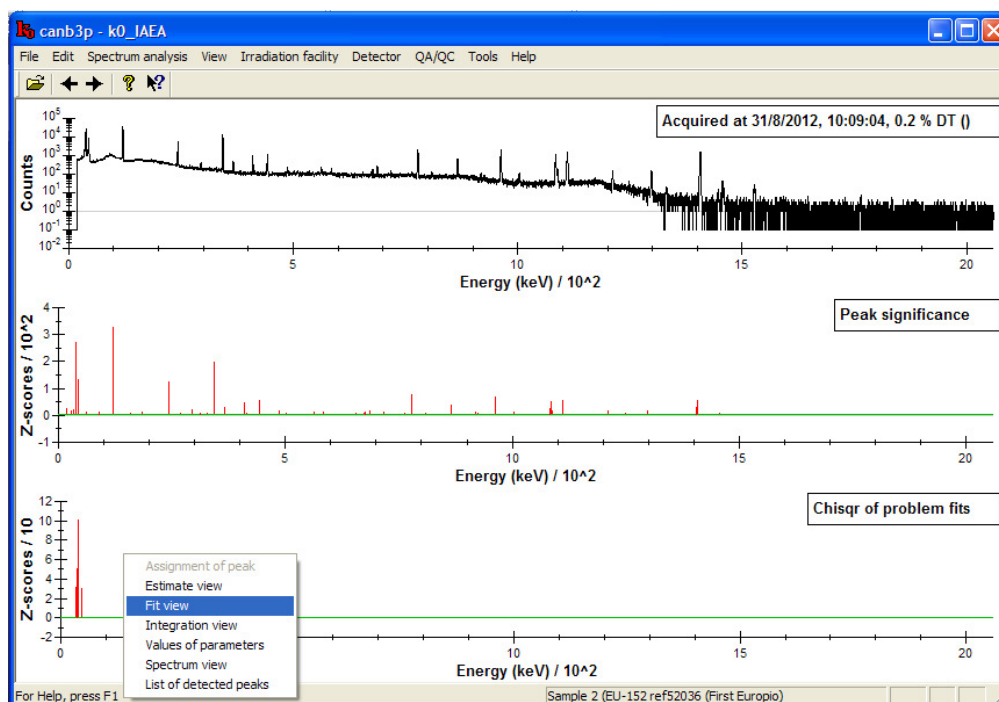


Figura A.65 – Com o botão direito do mouse na tela, depois selecione a opção **Fit view**.

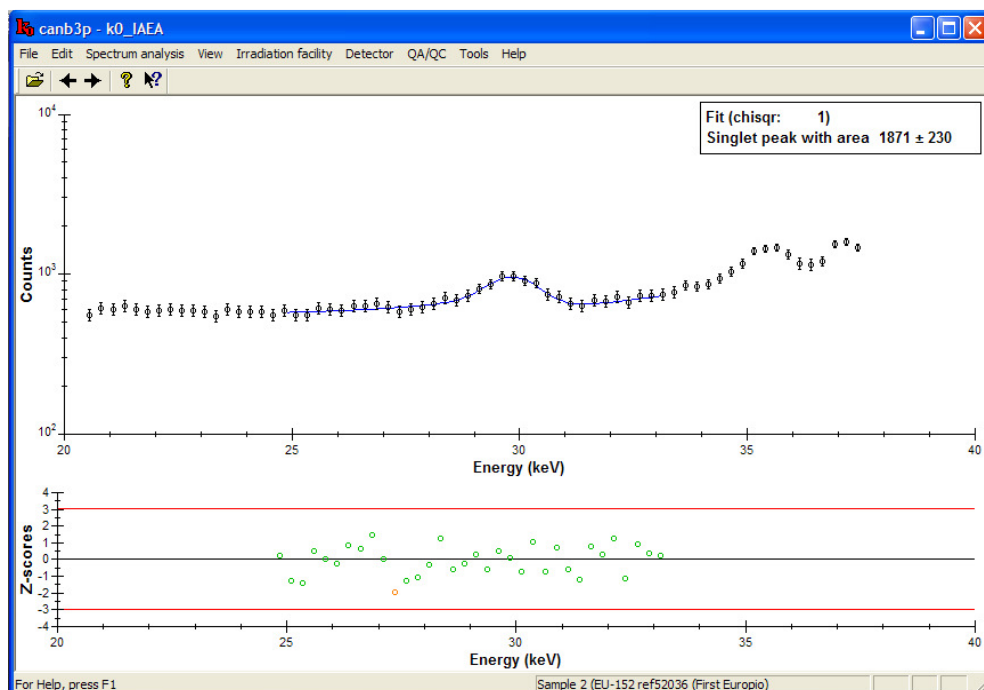


Figura A.66 – Visualize cada pico utilizando as teclas de avanço ou recuo do teclado. Existindo a necessidade de excluir, inserir ou modificar a estimativa de picos poderá ser feito aqui.

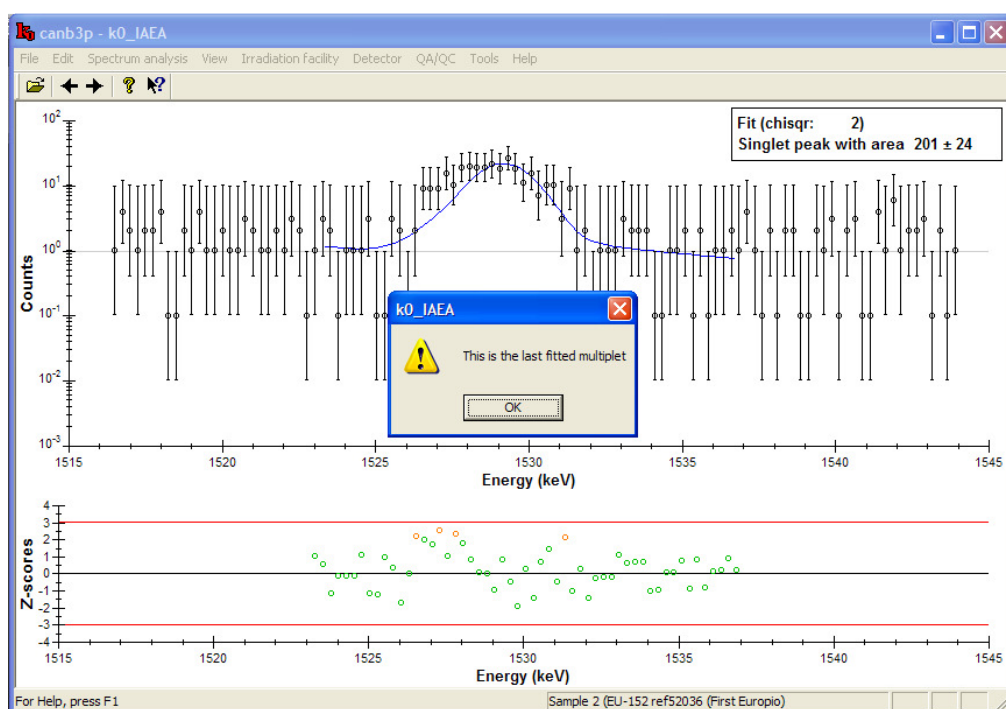


Figura A.67 – Ao visualizar o ultimo pico aparecerá uma mensagem de aviso. Clique em **OK**. Depois clique em **Spectrum analysis** → **Reanalyze All Peaks**.

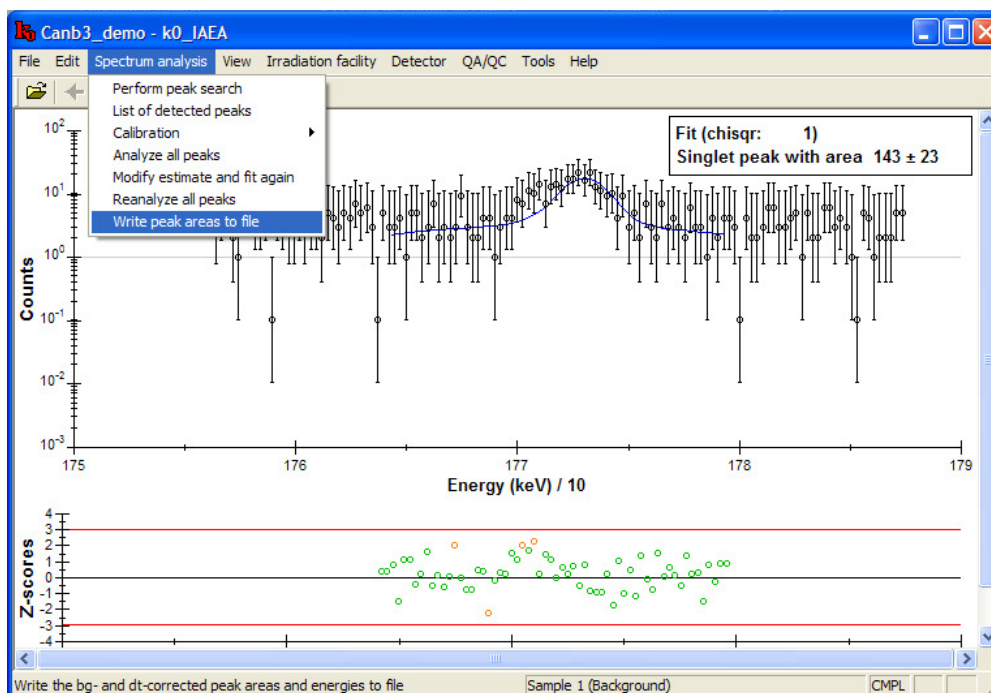


Figura A.68 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Write peak areas to file**.

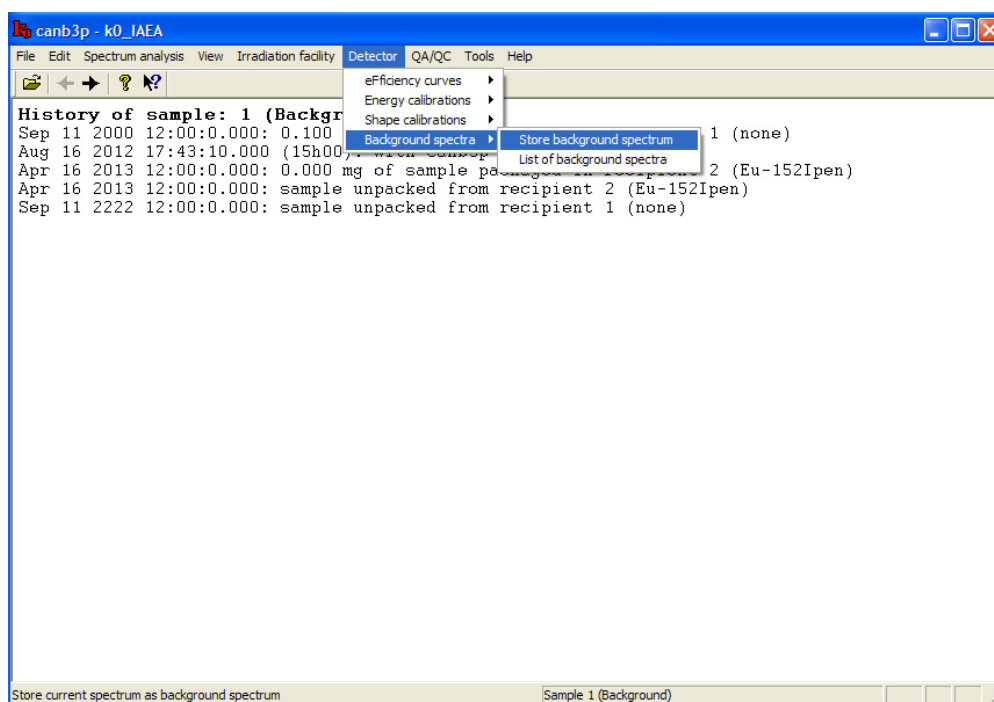


Figura A.69 – Clicar em **Detector** → **Background spectra** → **Store background spectrum**.

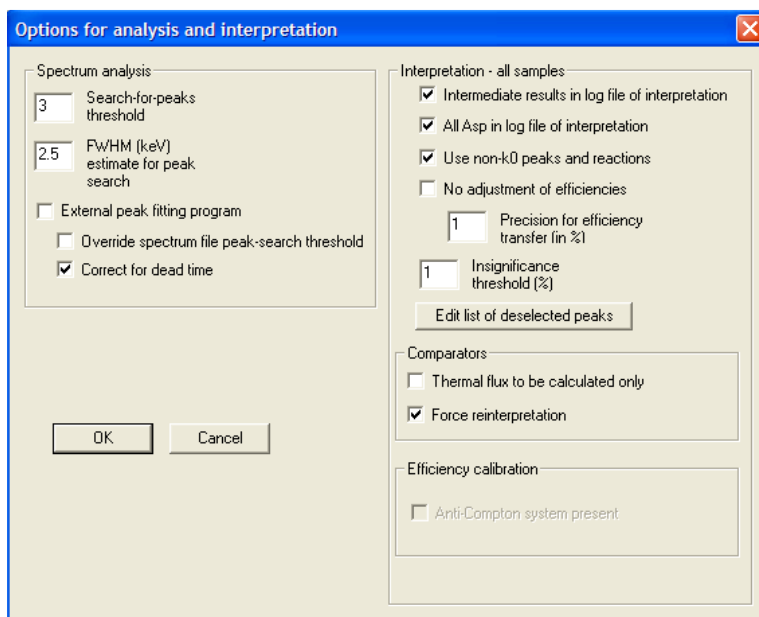


Figura A.70 – Clicar em **Edit** → **Options for interpretation** → selecionar **Correct for dead time**.

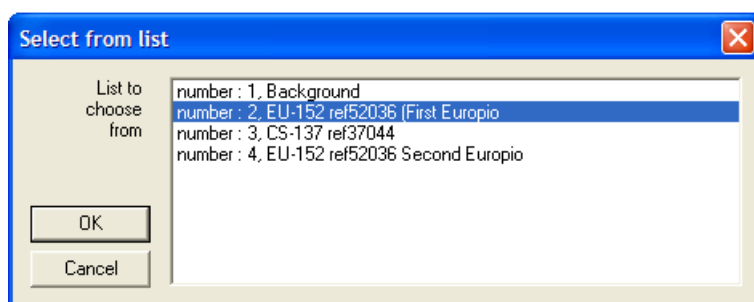


Figura A.71 – Selecionar **number: 2, EU-152 (First Europio)** novamente.

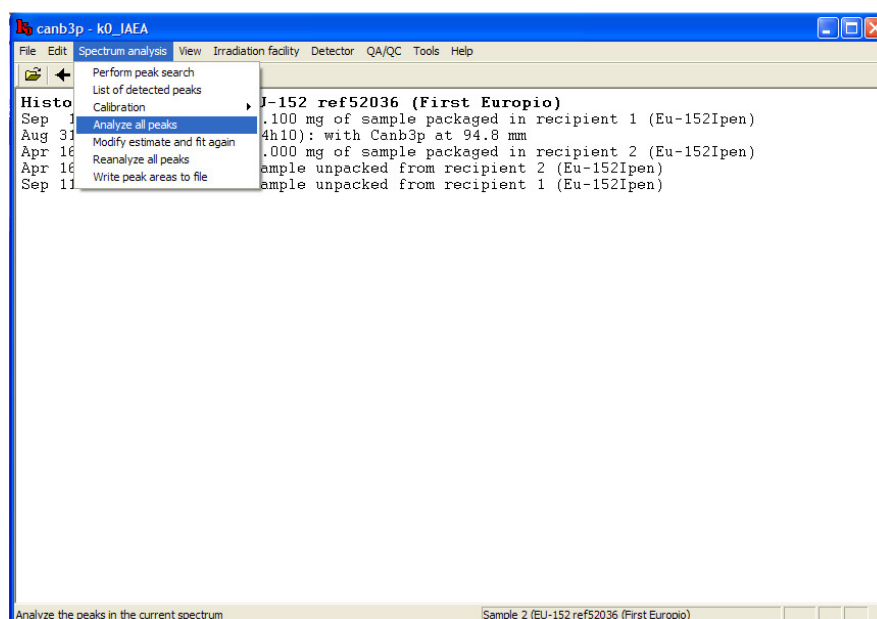


Figura A.72 – Como já foi deletados o primeiro pico e os picos com 3 contagens. Repita o procedimento das FIG. A.63 a A.68.

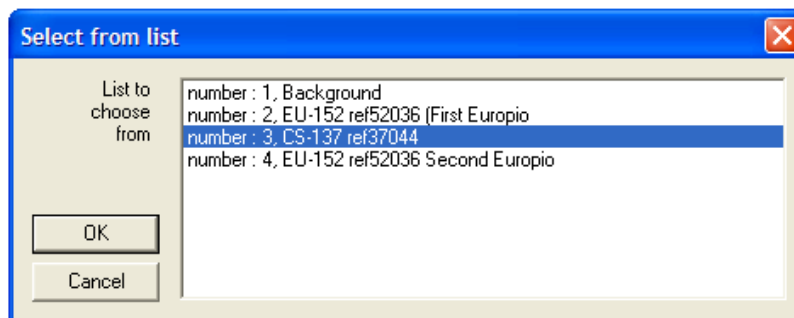


Figura A.73 – Seleção **number: 3, Cs-137**.

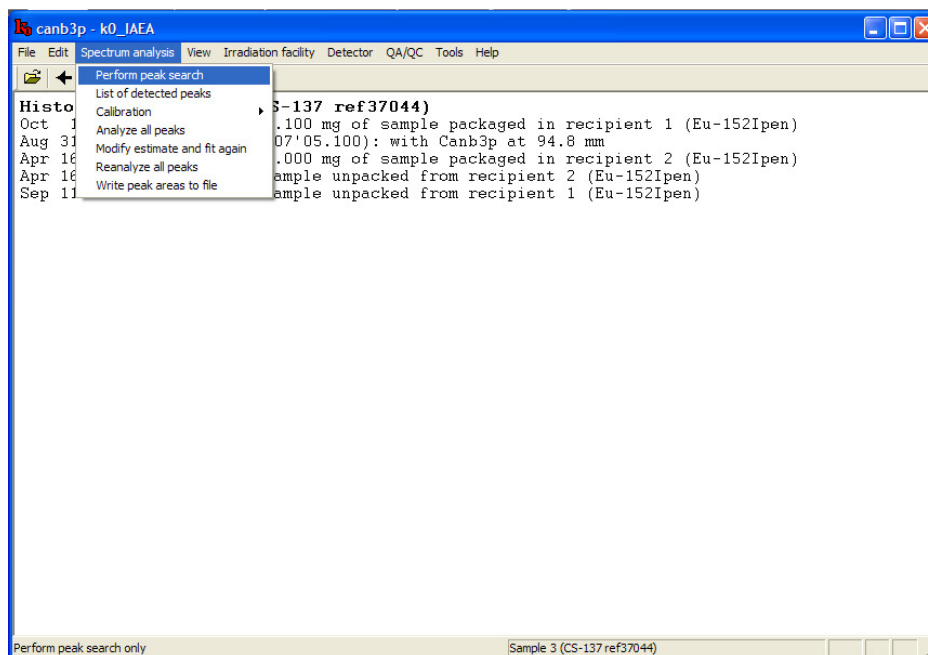


Figura A.74 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Perform peak search**.

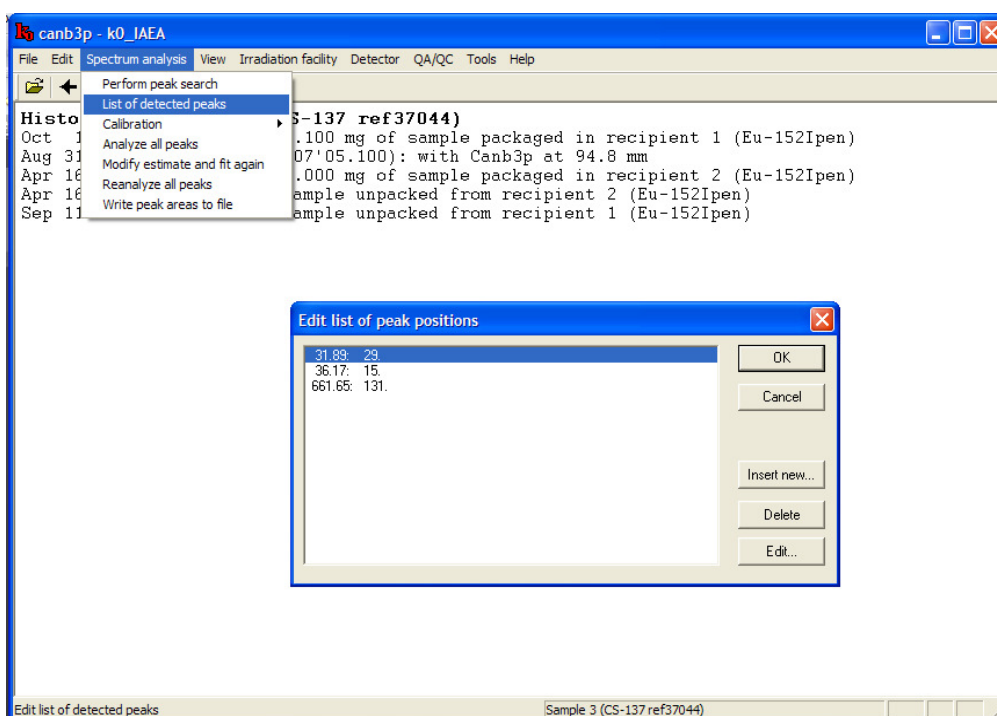


Figura A.75 – Clicar em **Spectrum analysis** → **List of detected peaks**. Delete o primeiro pico.

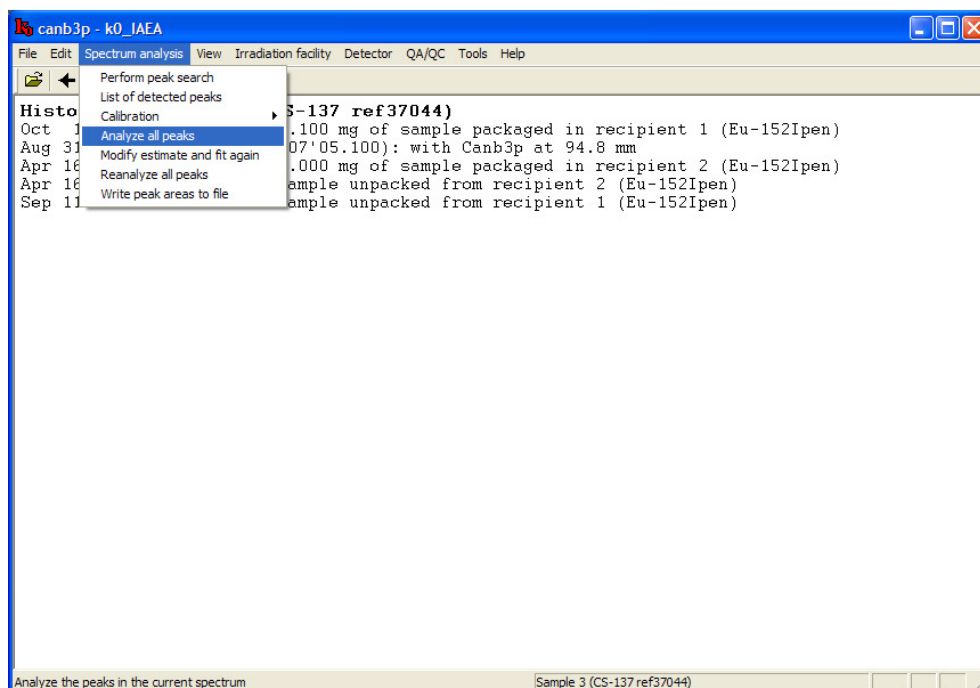


Figura A.76 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Analyze all peaks**. Feito isso, todos os procedimentos realizados nas FIG. A.64 a A.68 devem ser refeitos para o Cs-137.

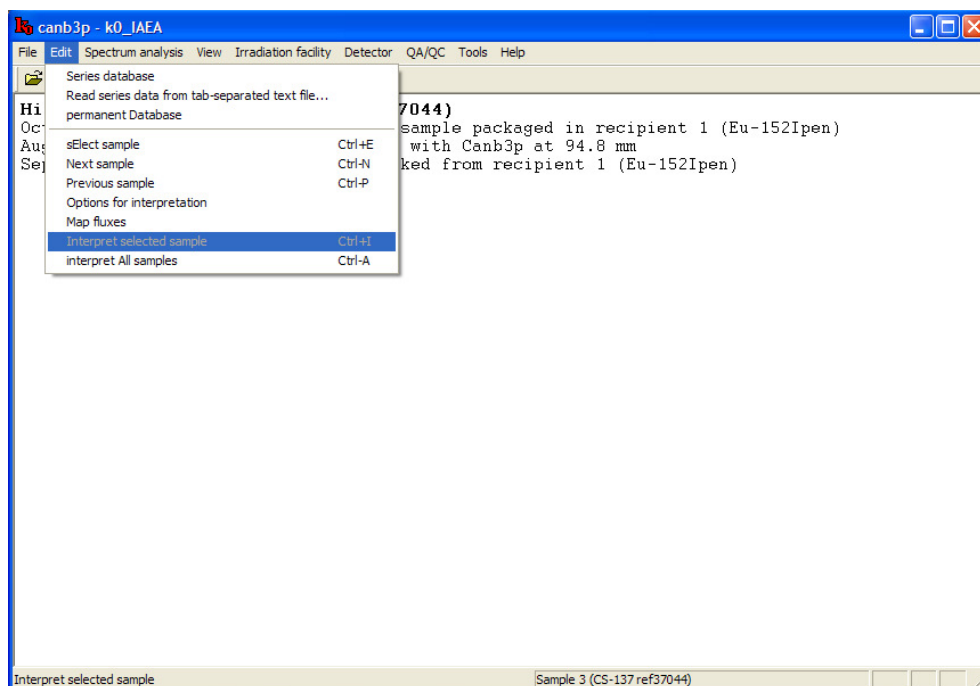


Figura A.77 – Clicar em **Edit** → **Interpret selected sample**.

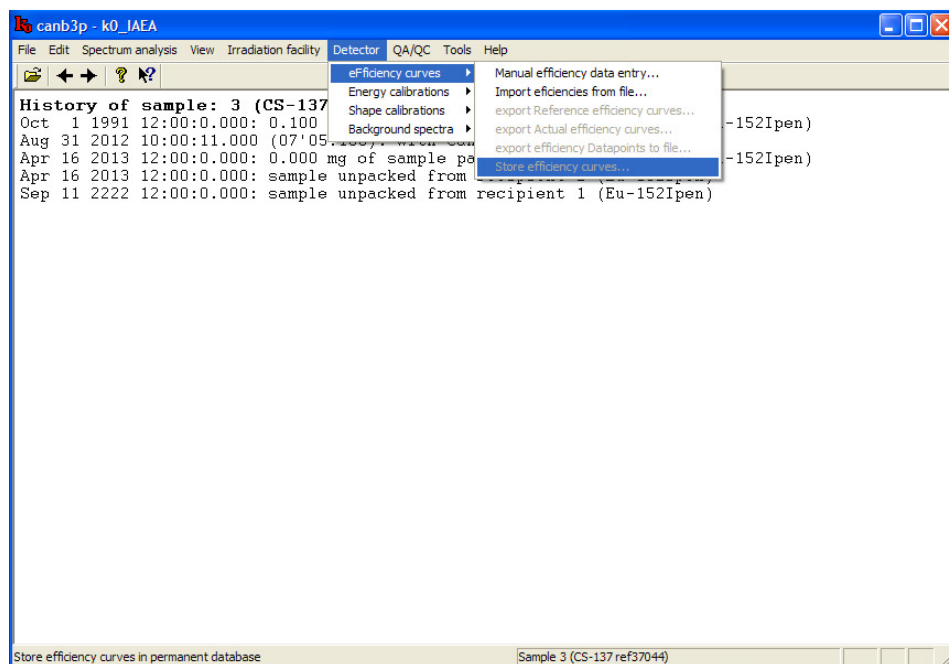


Figura A.78 – Clicar em **Detector** → **Efficiency curves** → **Store efficiency curves**.

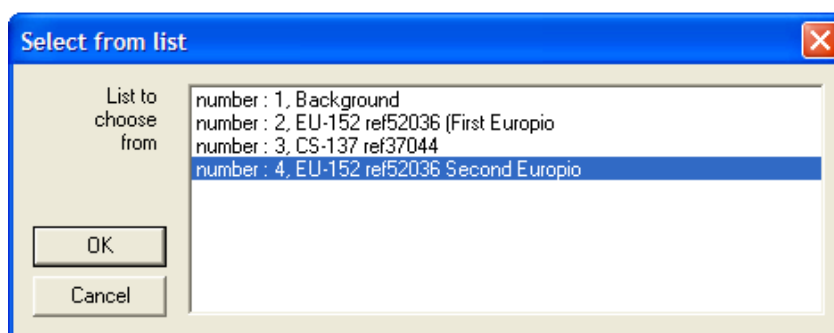


Figura A.79 – Selecionar **number:4, EU-152 Second Europio**.

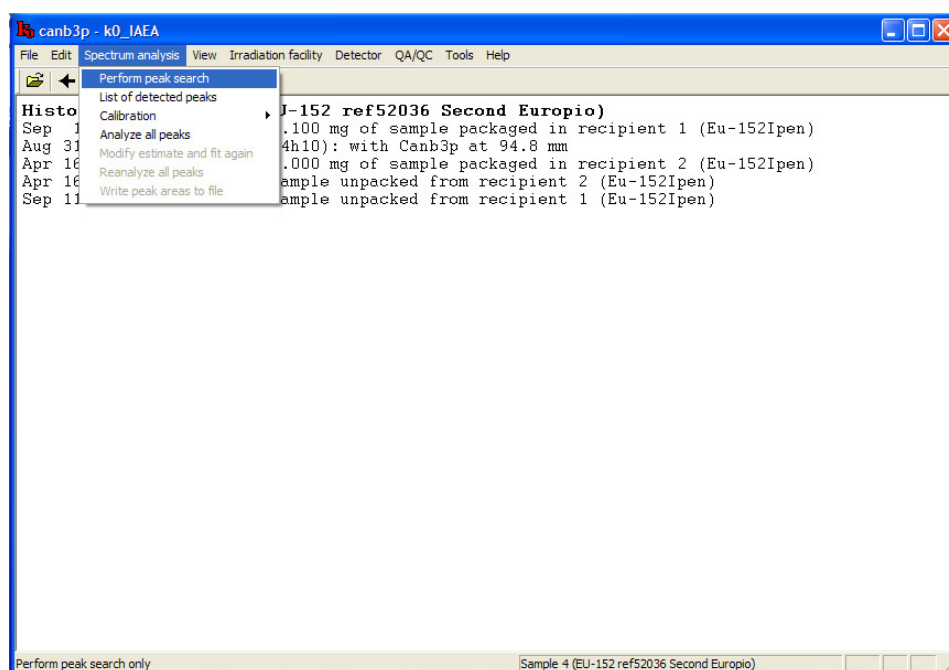


Figura A.80 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Perform peak search**.

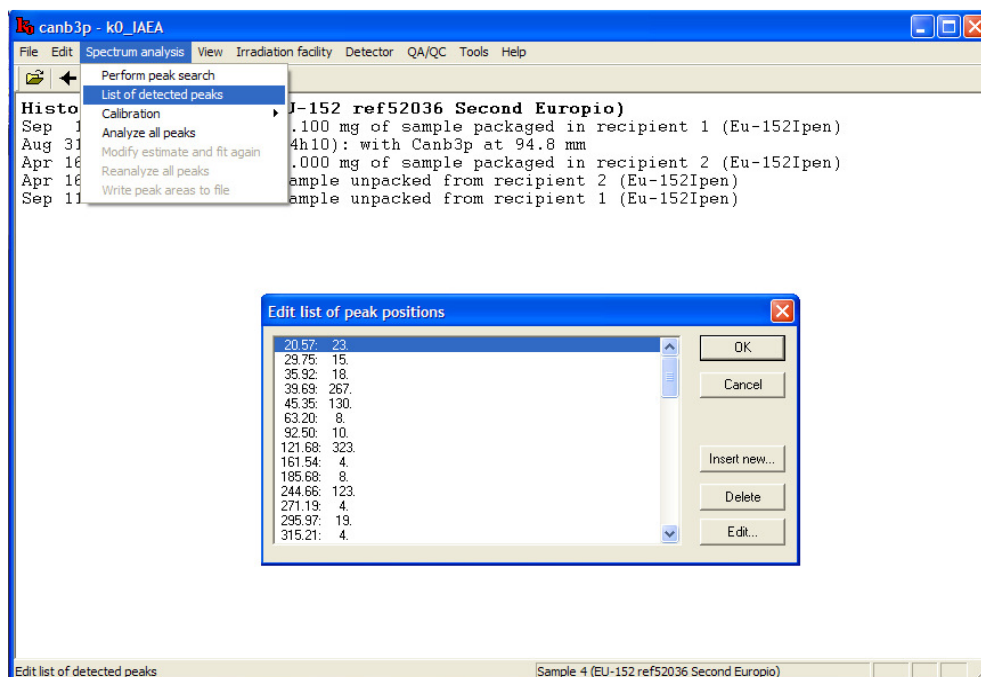


Figura A.81 – Clicar em **Spectrum analysis** → **List of detected peaks**. Delete o primeiro pico e os picos que apresentam apenas 3 contagens.

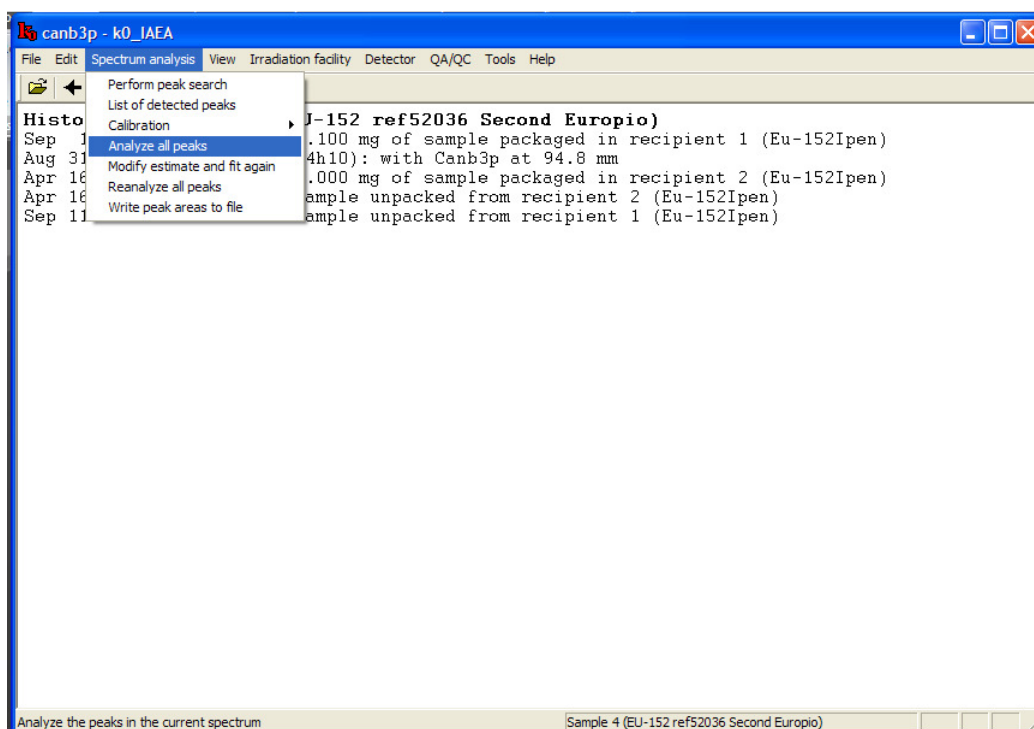


Figura A.82 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Analyze all peaks**. Feito isso, todos os procedimentos realizados nas figura A.64 a A.68 devem ser refeitos para o EU-152 (Second Europio).

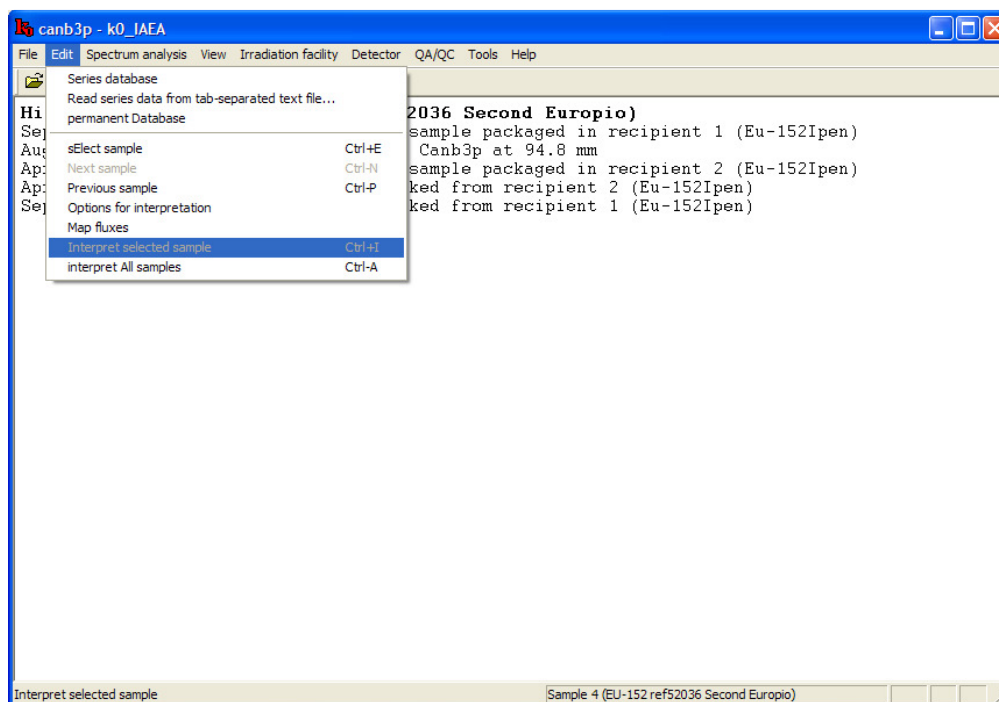


Figura A.83 – Clicar em **Edit** → **Interpret selected sample**.

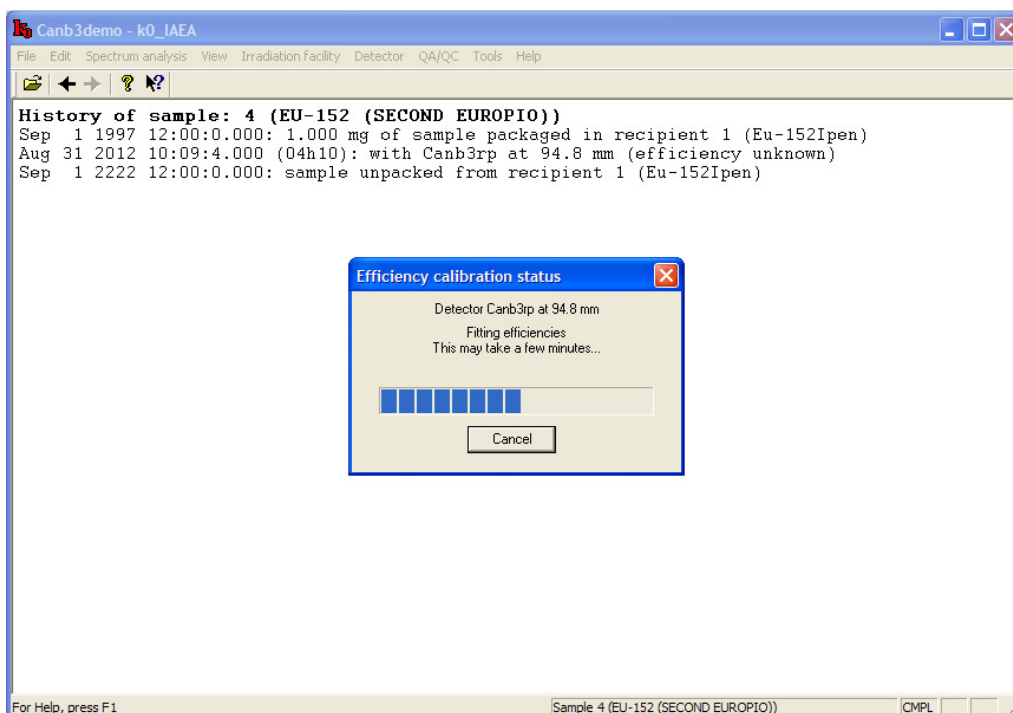


Figura A.84 – Em seguida aparecerá esta janela.

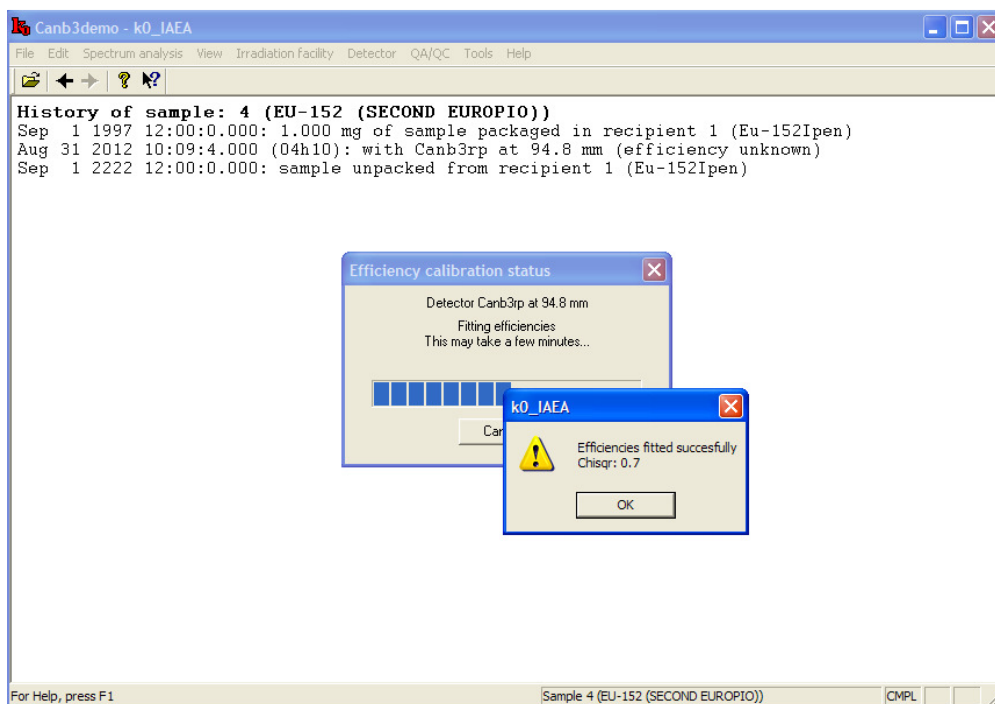


Figura A.85 – Clicar em **OK**.

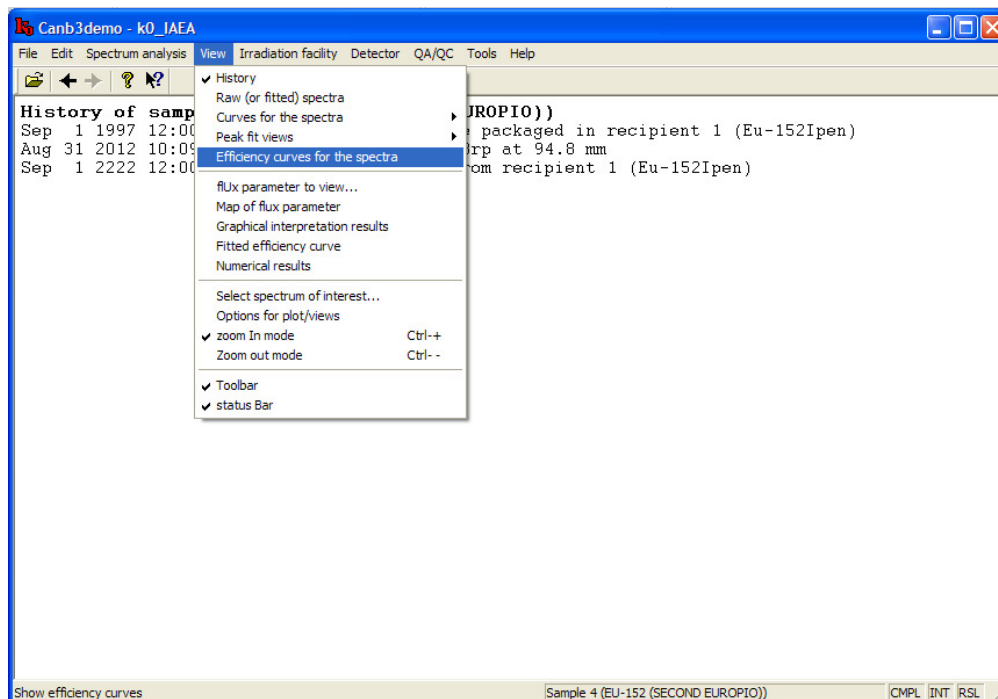


Figura A.86 – Clicar em **View** → **Efficiency curves for the spectra**.

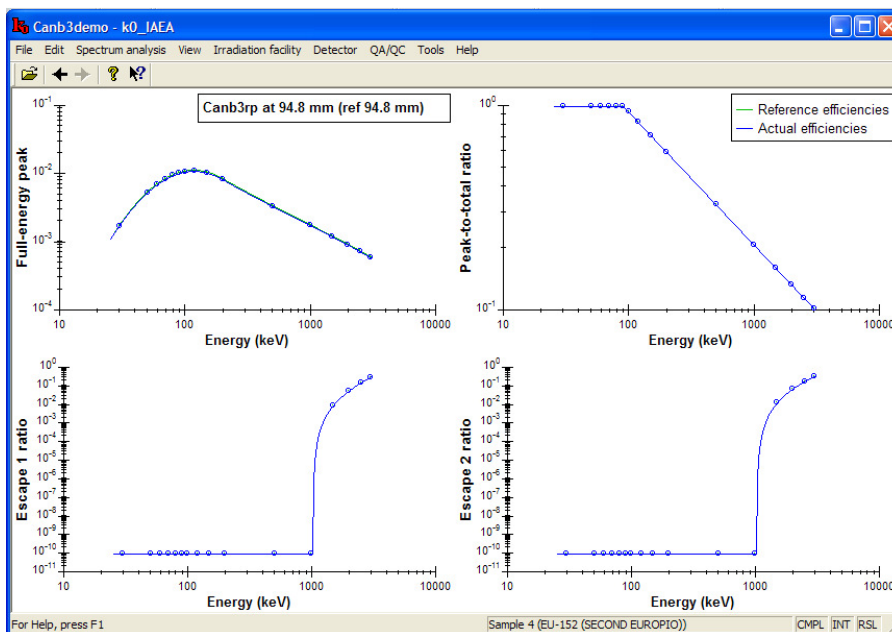


Figura A.87 – Em seguida aparecerá a curva de eficiência.

Se a curva de eficiência apresentar problema, ou o valor de quadrado ficar muito alto, então é necessário fazer uma investigação mais detalhada nos espectros. Se ainda persistir o problema, é recomendado fazer uma nova medida para as fontes de Eu e Cs.

Caso a curva não apresente problema então poderá ser salva realizando os procedimentos abaixo.

Uma vez salva a curva não poderá ser modificada. Para fazer alguma alteração terá que repetir os procedimentos anteriores.

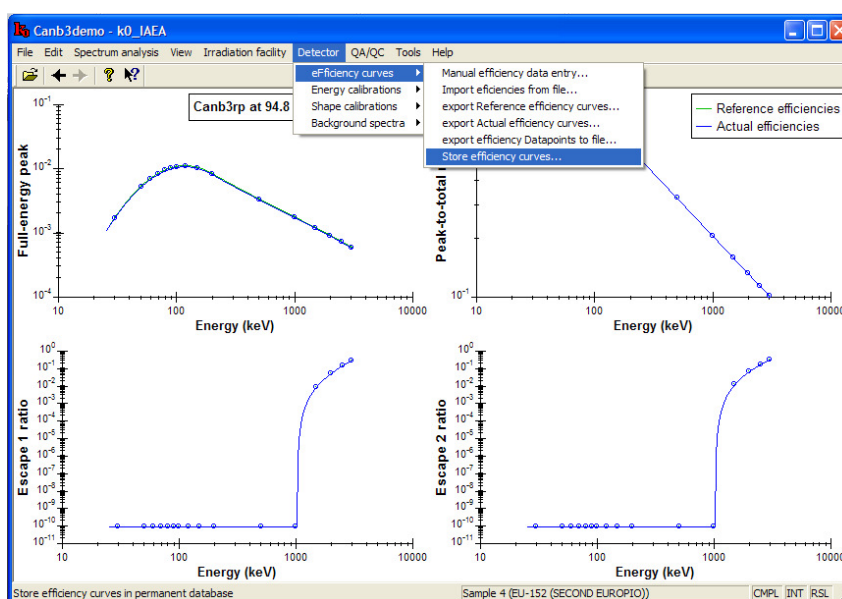


Figura A.88 – Clicar em Detector → Efficiency curves → Store efficiency curves. Feito isso, o detector cadastrado está pronto para ser utilizado.

B. Cálculo dos Parâmetros de Fluxo

A próxima etapa a ser realizada após a calibração do detector é o cálculo dos parâmetros de fluxo.

Esta etapa é a introdução dos dados referente aos monitores de fluxo que são utilizados para a caracterização da posição de irradiação e criação da base para o cálculo dos parâmetros de fluxo.

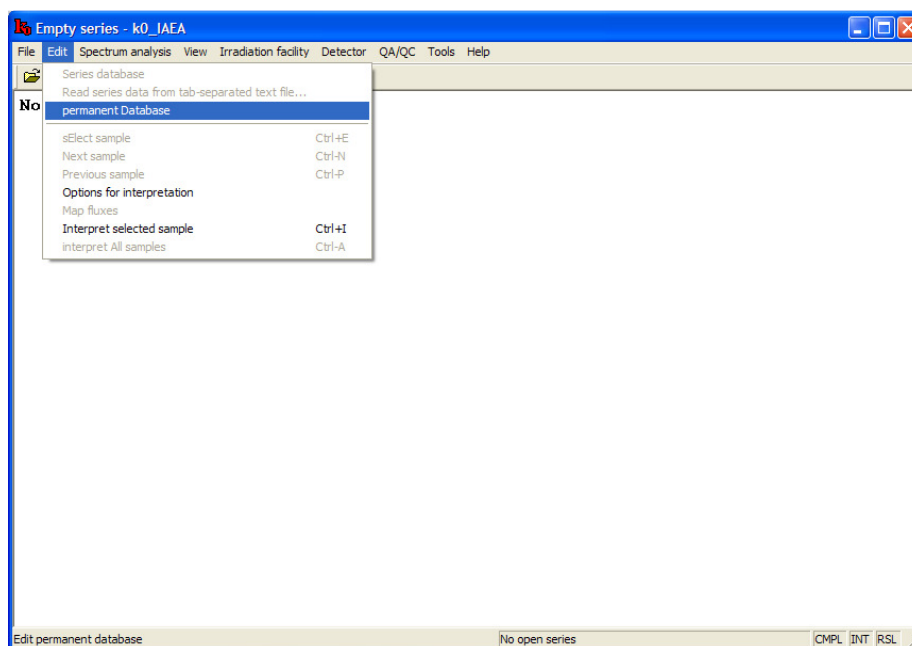


Figura B.1 – Clicar em **Edit** → **permanent Database**

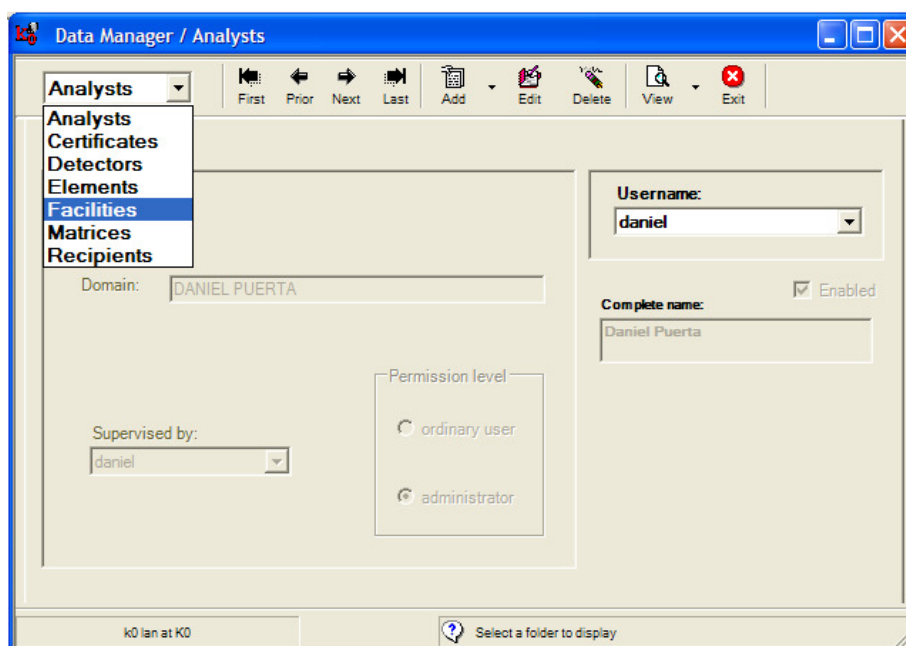


Figura B.2 – Selecionar **Facilities**

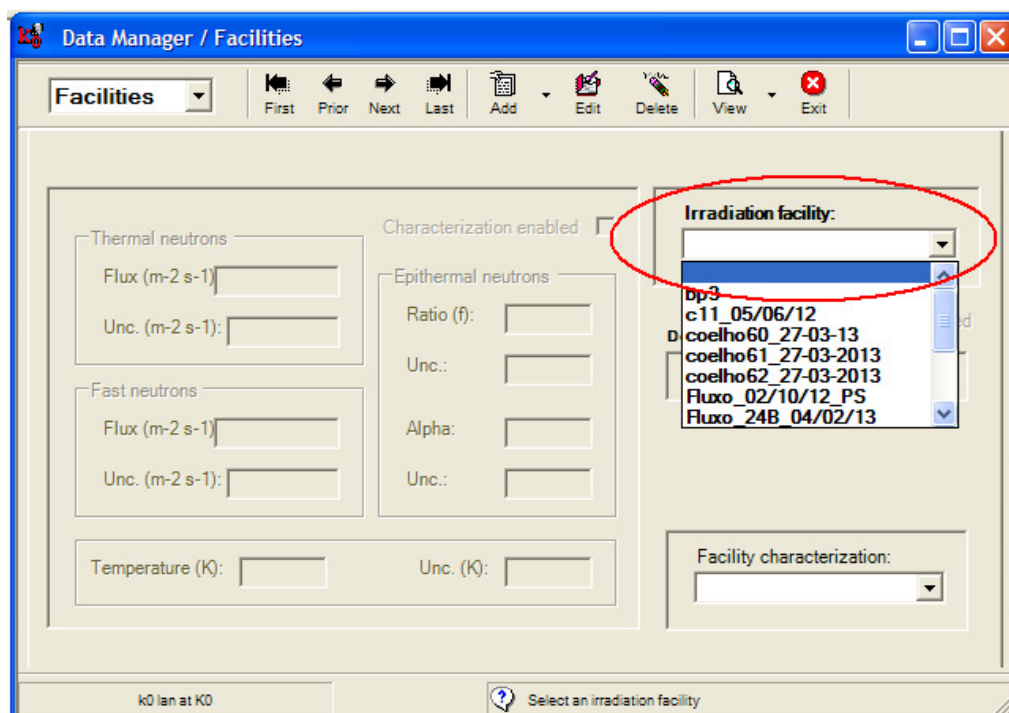


Figura B.3 – Em *Irradiation facility*: clique no espaço em branco (logo acima do bp3). Em seguida clique no ícone **Add**.

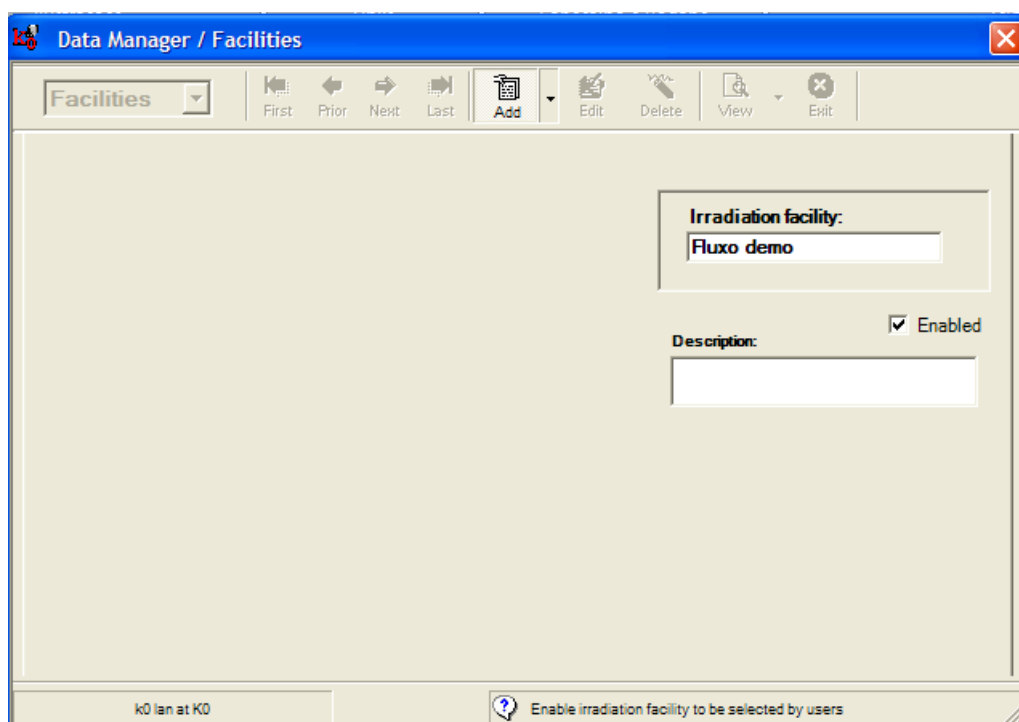


Figura B.4 – Digite o nome desejado e clique em **Add** novamente.

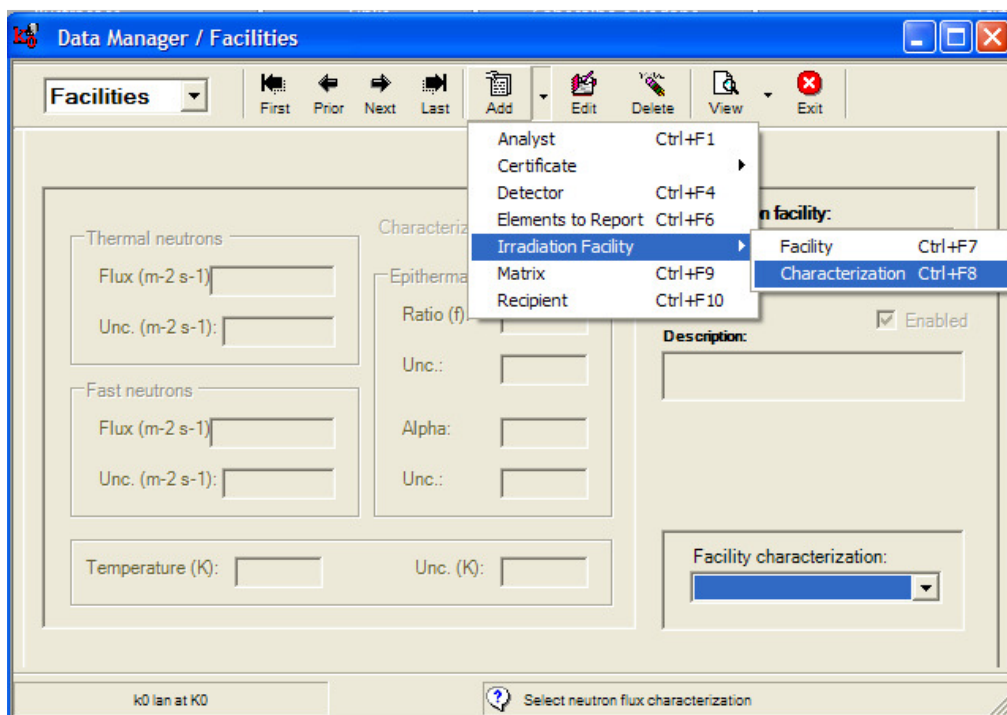


Figura B.5 – Clique na seta ao lado do ícone **Add**. Selecione **Irradiation Facility** → **Characterization**.

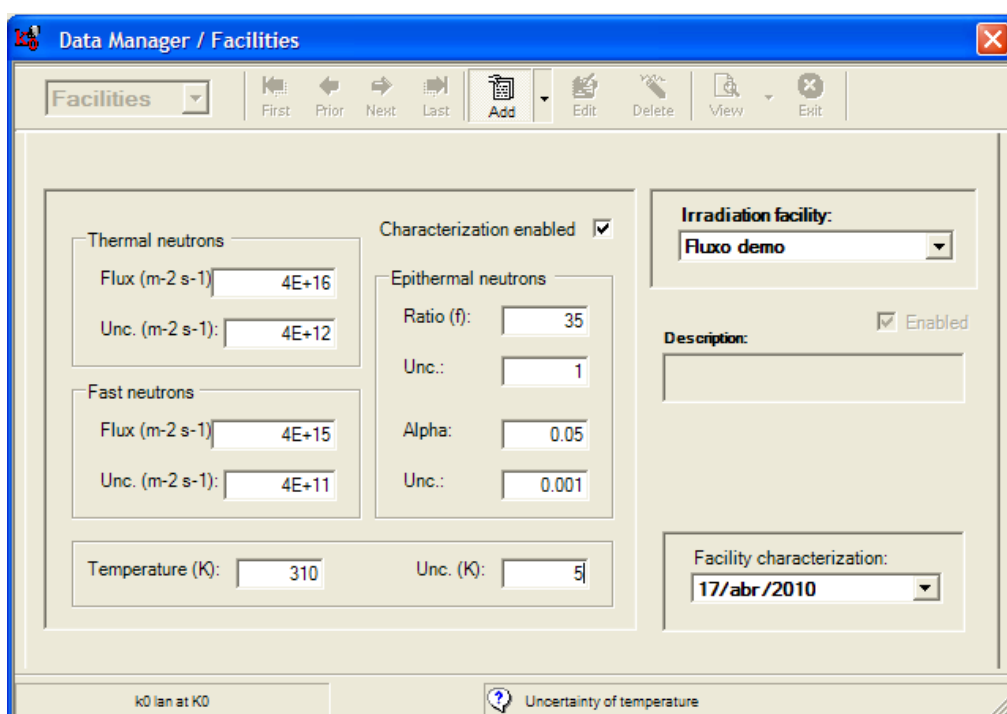


Figura B.6 – Insira os dados.

O autor do programa sugere que, quando for realizar uma primeira caracterização, a data seja anterior à real e os dados acima sejam introduzidos como uma primeira aproximação.

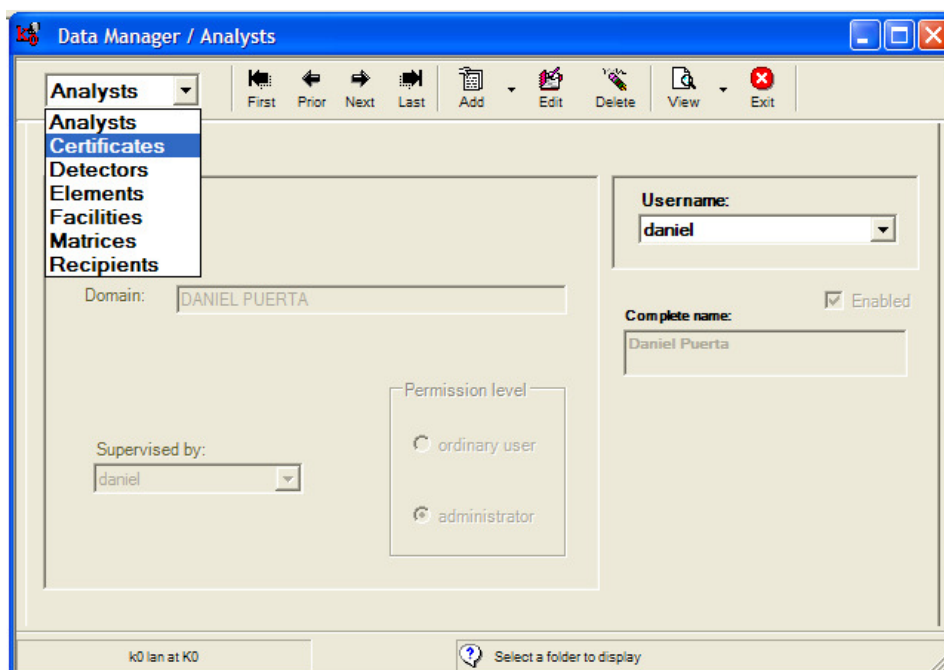


Figura B.7 – Selecionar **Certificates**

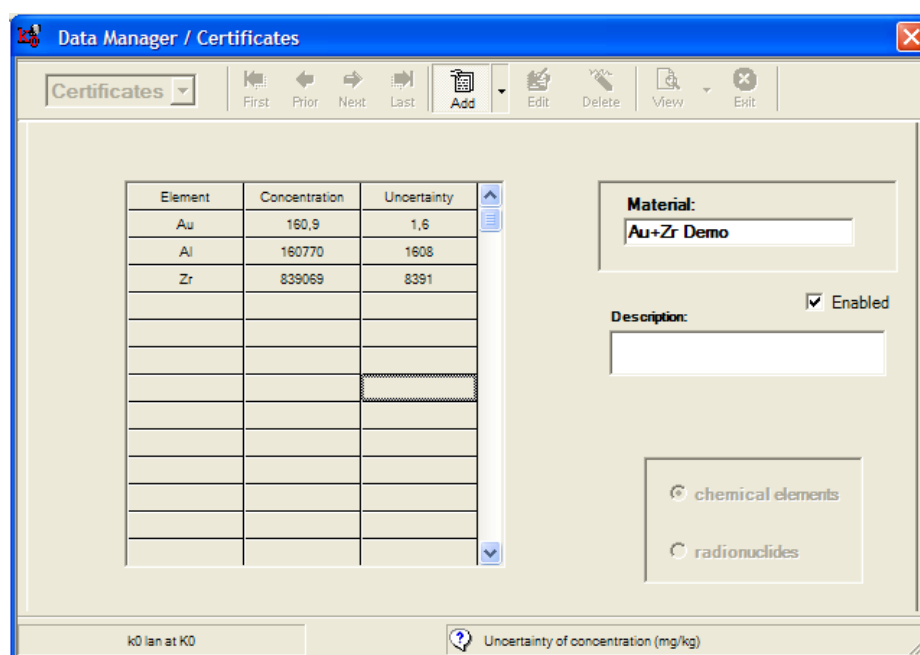


Figura B.8 – Clique em **Add** e cadastrar os monitores de fluxo que serão utilizados para a caracterização. Qualquer dúvida consulte as TAB. 4.5 e 4.6.

Feito esse cadastro, finalizar e sair do **permanent Database**.

Finalizando a etapa anterior, agora vamos criar uma nova **Series** com todos os dados, como data e horário das medições, tempo morto, espessuras, distância da posição de medida até o detector, entre outros.

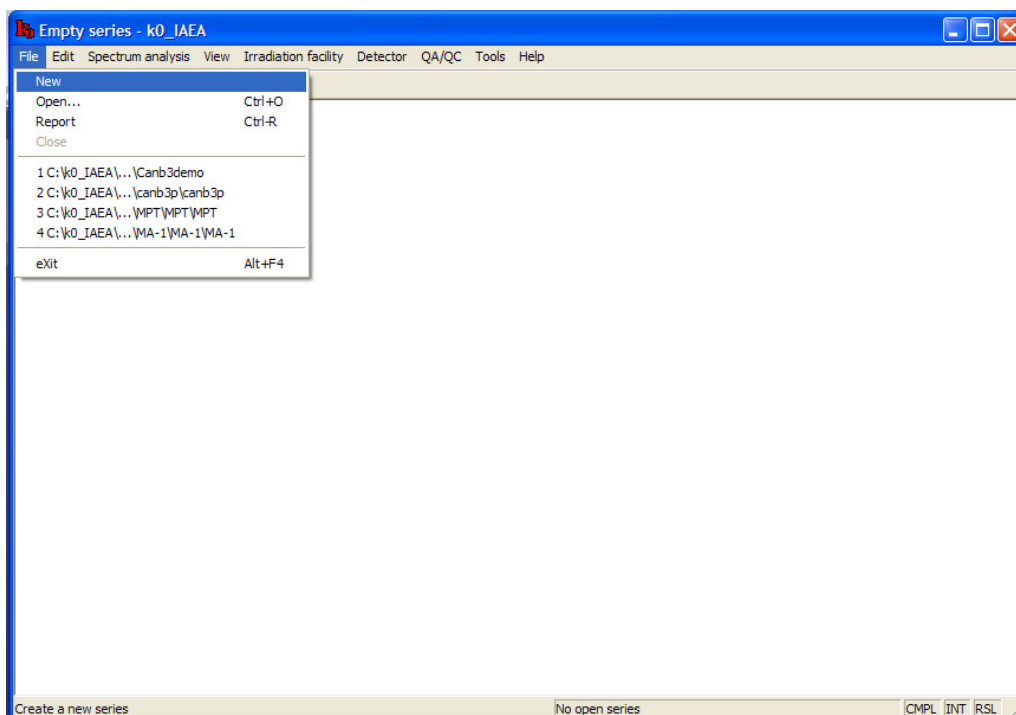


Figura B.9 – Abra o programa k_0 -IAEA e clique em **File** → **New**.

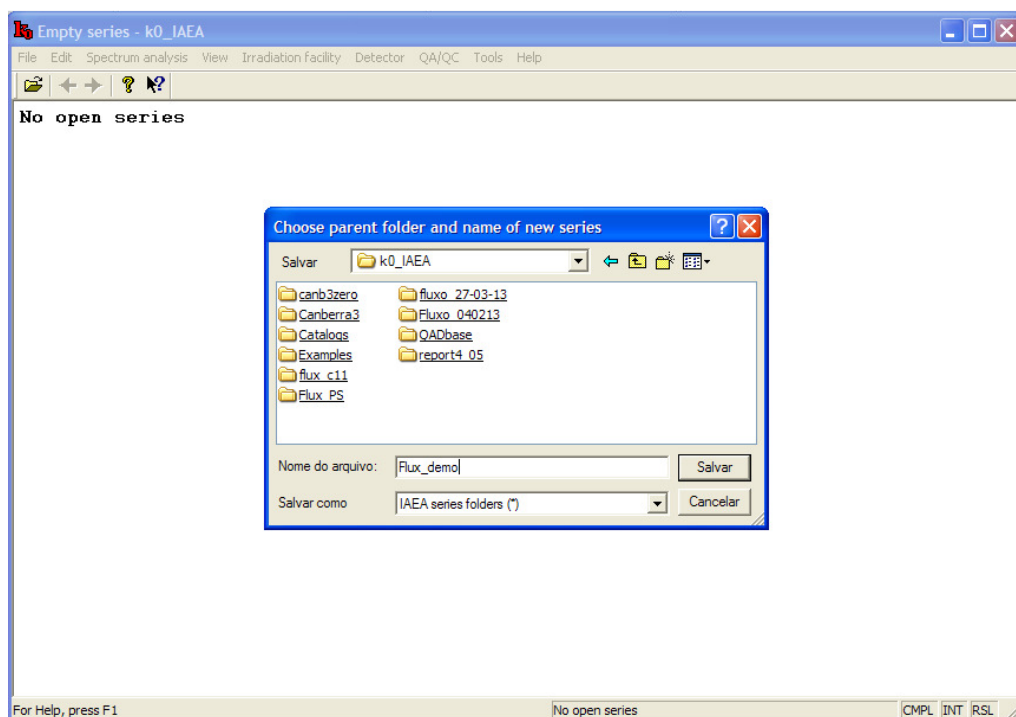


Figura B.10 – Ir à pasta k_0 -IAEA que está em *C:* e dar um duplo clique. Em seguida nomear o trabalho e clicar em *salvar*.

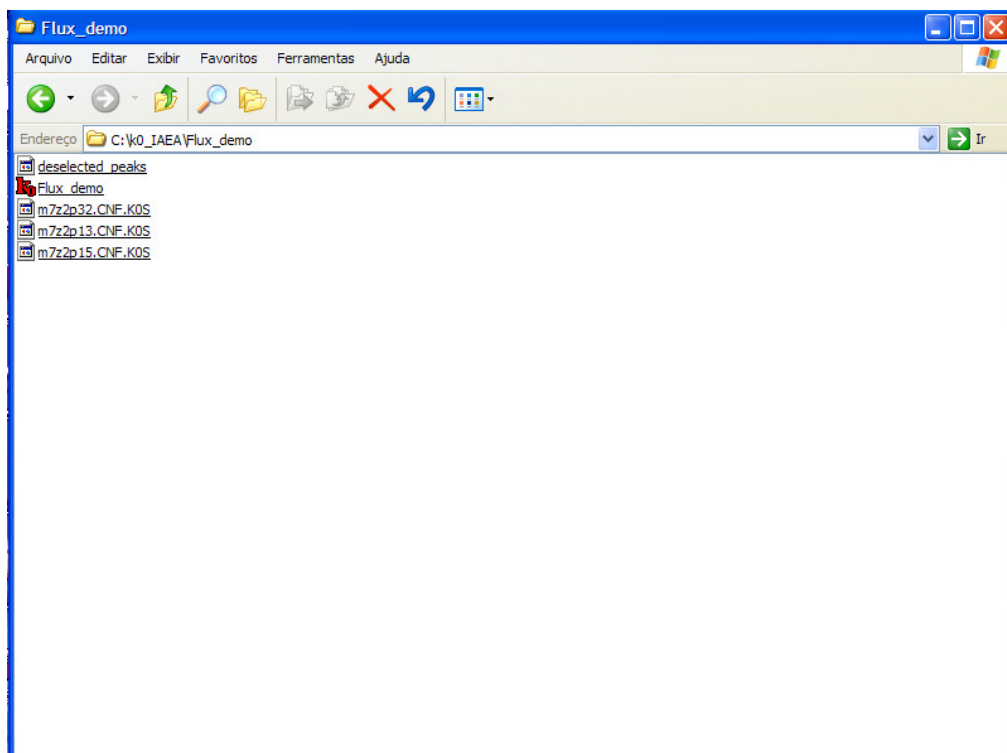


Figura B.11 – Copiar os arquivos das medições (espectros) dentro da pasta que foi criada com o nome dado no item anterior.

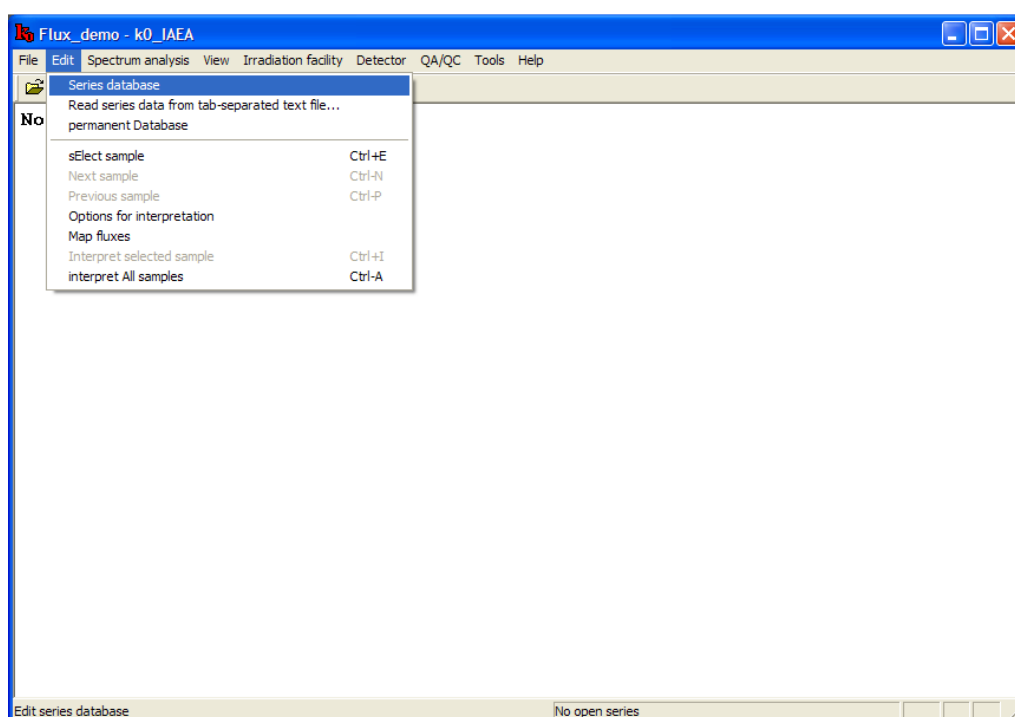


Figura B.12 – Clicar em **Edit** → **Series database**.

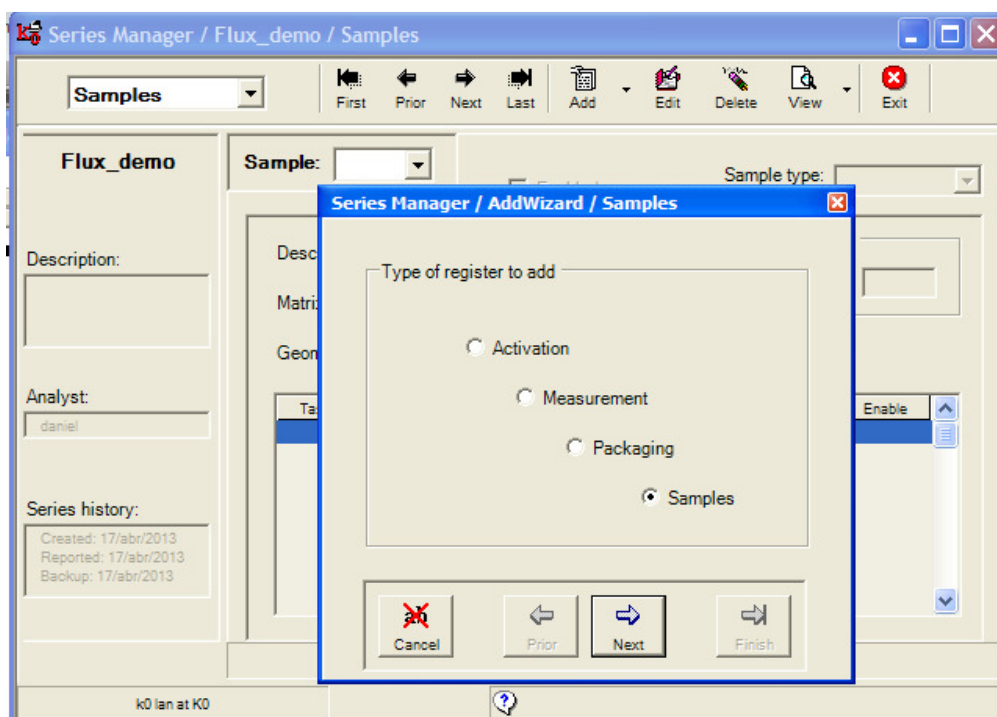


Figura B.13 – Clique em **Add** → **Samples**.

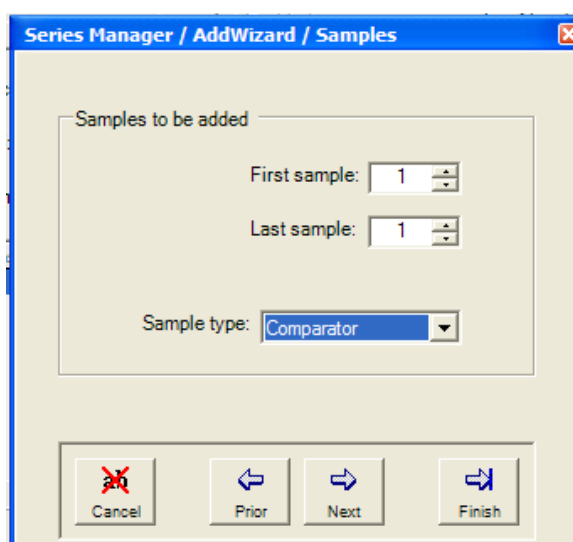


Figura B.14 – Introduzir a quantidade de espectros a serem analisados e selecionar *Comparator*.

The screenshot shows the 'Series Manager / AddWizard / Samples' dialog box. The 'Matrix information' section contains two dropdown menus: 'Matrix type' set to 'Al-Au+Zr' and 'Geometry' set to 'Wire'. At the bottom, there are four buttons: 'Cancel' (with a red X icon), 'Prior' (with a left arrow icon), 'Next' (with a right arrow icon), and 'Finish' (with a double right arrow icon).

Figura B.15 – Selecionar o tipo de Matriz e a Geometria.

The screenshot shows the 'Series Manager / AddWizard / Samples' dialog box. The 'Moisture correction' section contains two text input fields: 'Dry/wet ratio' with the value '1,0000' and 'Uncertainty' with the value '0,0000'. At the bottom, there are four buttons: 'Cancel' (with a red X icon), 'Prior' (with a left arrow icon), 'Next' (with a right arrow icon), and 'Finish' (with a double right arrow icon).

Figura B.16 – Inserir a medida de *Dry/wet ratio*.

The screenshot shows the 'Series Manager / AddWizard / Samples' dialog box. The 'Samples identification' section contains a text input field for 'General description' with the text 'Au+Zr (Demo)'. At the bottom, there are four buttons: 'Cancel' (with a red X icon), 'Prior' (with a left arrow icon), 'Next' (with a right arrow icon), and 'Finish' (with a double right arrow icon).

Figura B.17 – Digitar o nome do monitor.

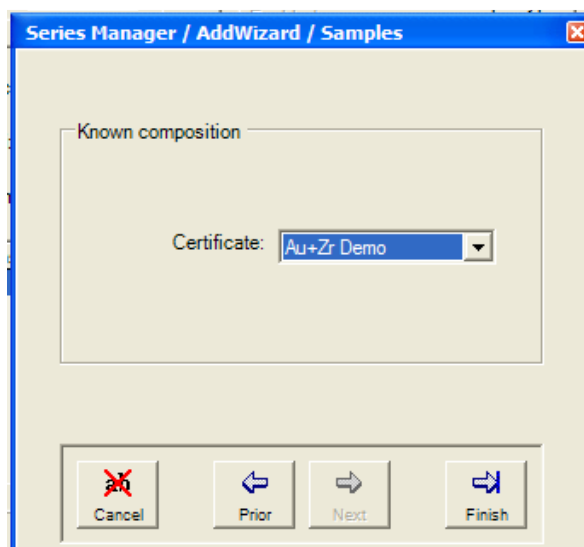


Figura B.18 – Selecionar o *Certificate* do monitor. E clicar em **Finish**.

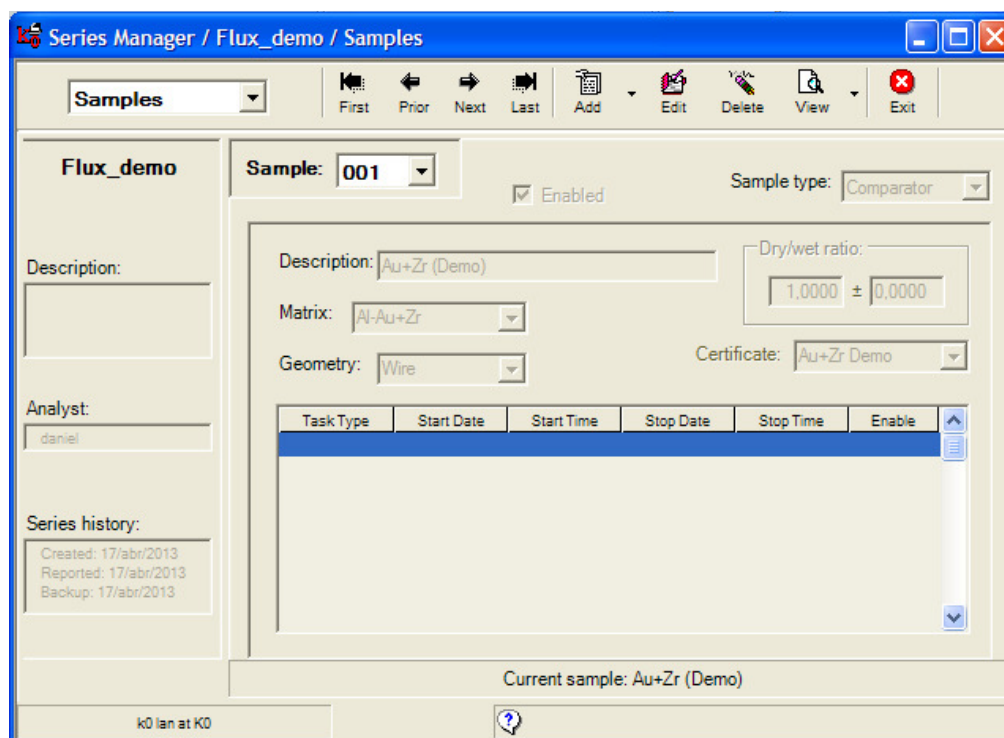


Figura B.19 – Imagem da *Sample 1* com os dados cadastrados.

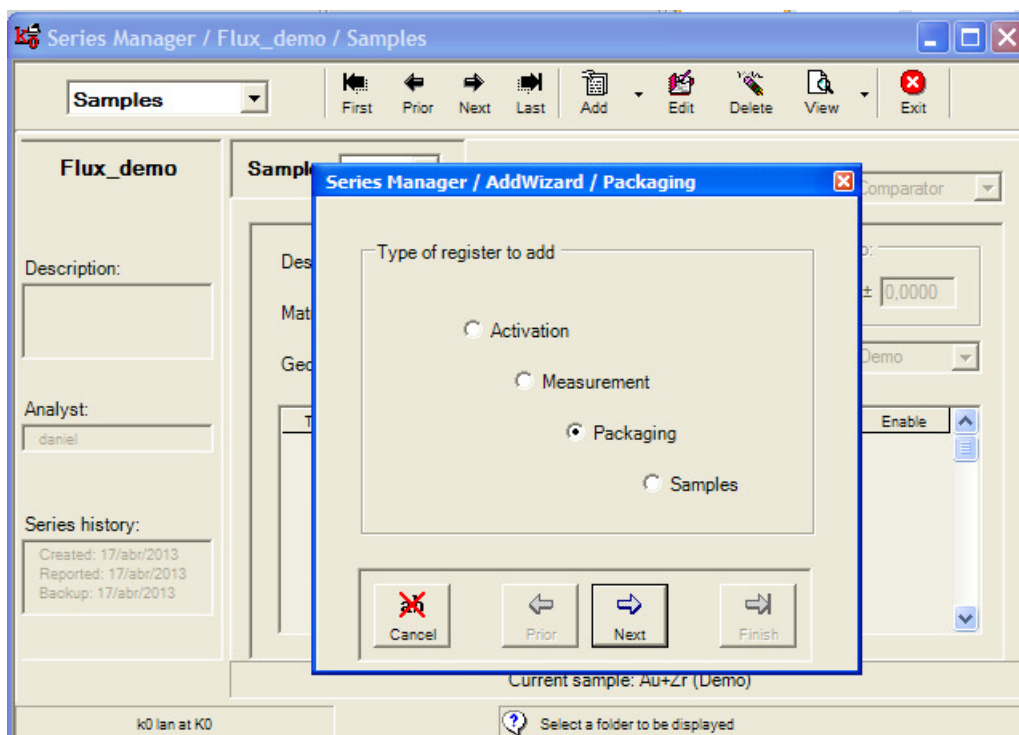


Figura B.20 – Clicar em **Add** → Seleccione *Packaging*.

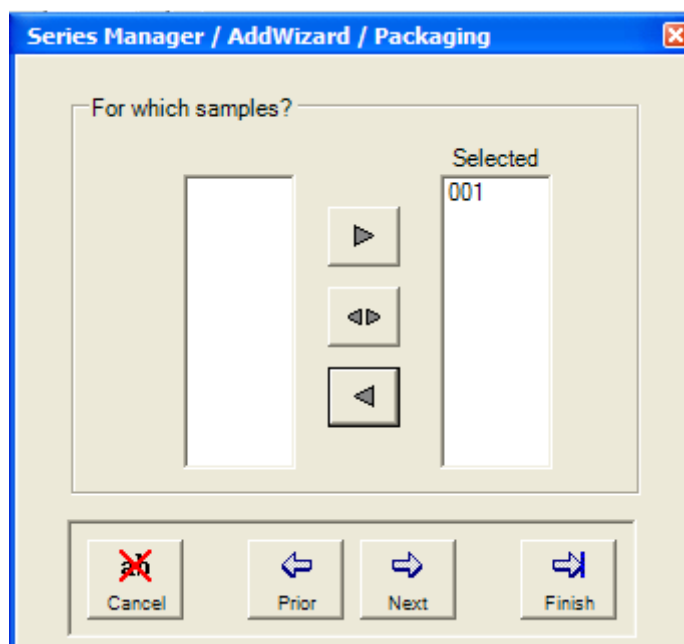


Figura B.21 – Seleccione o item desejado.

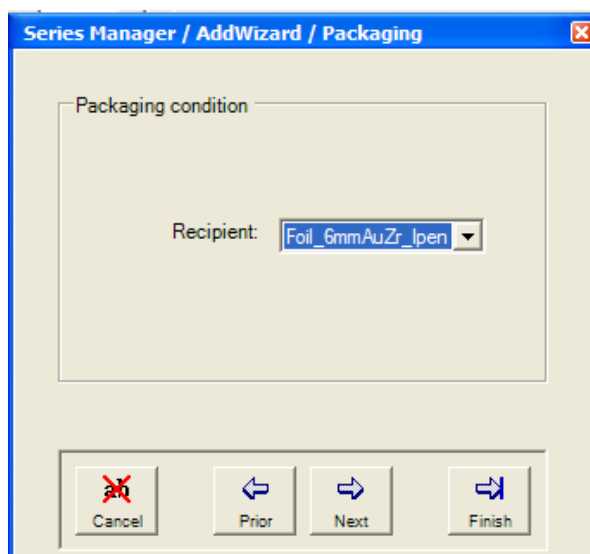


Figura B.22 – Selecionar o recipiente desejado.

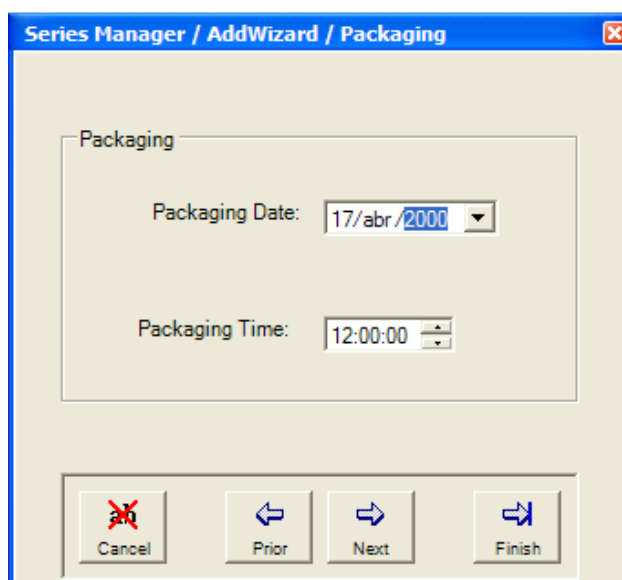


Figura B.23 – Data e horário de preparação do monitor. O autor sugere que coloque uma data anterior da caracterização do fluxo inicial.

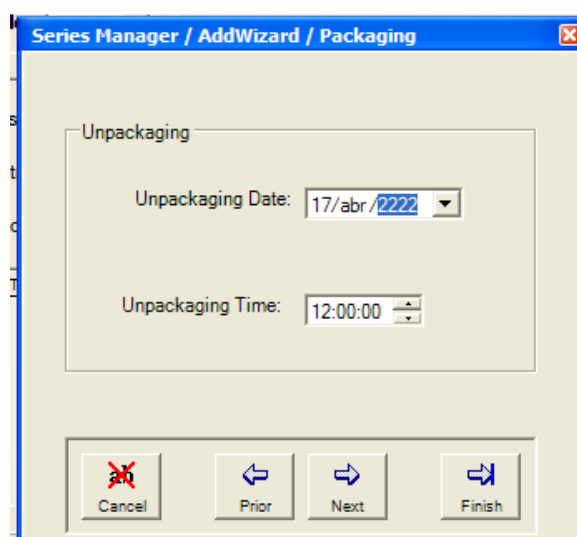


Figura B.24 – Data e horário da validade do monitor.

The screenshot shows a software window titled "Series Manager / AddWizard / Packaging". Inside, there is a tab labeled "Filling". Below the tab, there are two input fields: "Height (mm):" with the value "1" entered, and "Uncertainty (mm):" which is empty. At the bottom of the window, there are four buttons: "Cancel" (with a red X icon), "Prior" (with a left arrow icon), "Next" (with a right arrow icon), and "Finish" (with a double right arrow icon).

Figura B.25 – Altura do monitor. Caso não seja possível a medição o autor do programa sugere colocar 1mm.

The screenshot shows the same software window, but with the "Mass" tab selected. Below the tab, there are three input fields: "Total (mg):" with the value "53,28" entered, "Tare (mg):" which is empty, and "Uncertainty (mg):" with the value "0,01" entered. The same four buttons ("Cancel", "Prior", "Next", "Finish") are at the bottom.

Figura B.26 – Massa dos monitores de Au + Zr. Clique em Finish.

Series Manager / Flux_demo / Packaging

Flux_demo

Sample: 001

Enabled

Packaging: 17/abr/2000 - 12:00:00

Description:

Analyst: daniel

Series history:

Created: 17/abr/2013
Reported: 17/abr/2013
Backup: 17/abr/2013

Packaging

Time: 12:00:00

Date: 17/abr/2000

Geometry

Recipient: Foil_6mmAuZr_lpe

Fillheight (mm): 1,00 ± 0,00

Mass (mg)

Total: 53,28

Tare: 0,00

Net: 53,28

Uncert.: 0,01

Unpacking

Time: 12:00:00

Date: 17/abr/2022

Current sample: Au+Zr (Demo)

k0 lan at K0

Select a sample to be displayed

Figura B.27 – Imagem da *Sample 1* com os dados de *Packaging* cadastrados.

Series Manager / Flux_demo / Measurement

Flux_demo

Sample: 001

Enabled

Add new information

Measurement:

Start

Time:

Date:

Distance (mm):

Orientation:

Stop

Time:

Date:

Spectrum filename:

Peak areas filename:

Detector:

Timing

Dead Time (%):

Current sample: Au+Zr (Demo)

k0 lan at K0

Select a folder to be displayed

Figura B.28 – Selecionar **Measurement** → **Add**.

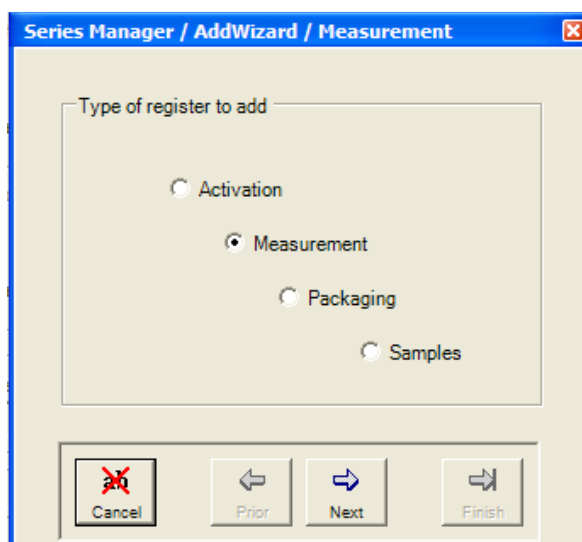
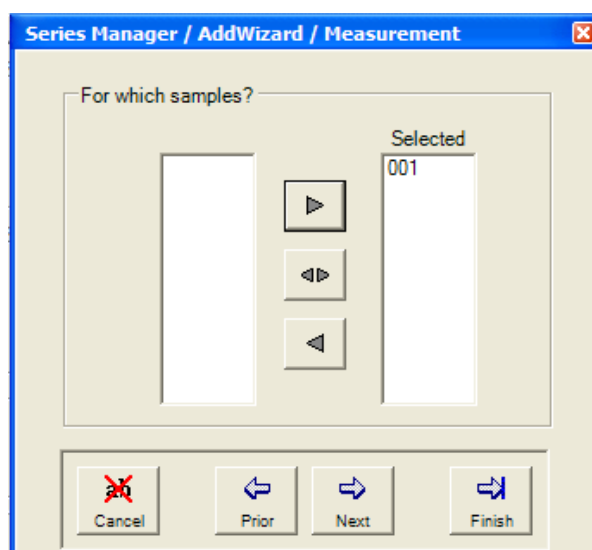
Figura B.29 – Selecionar **Measurement**.

Figura B.30 – Selecionar o item desejado

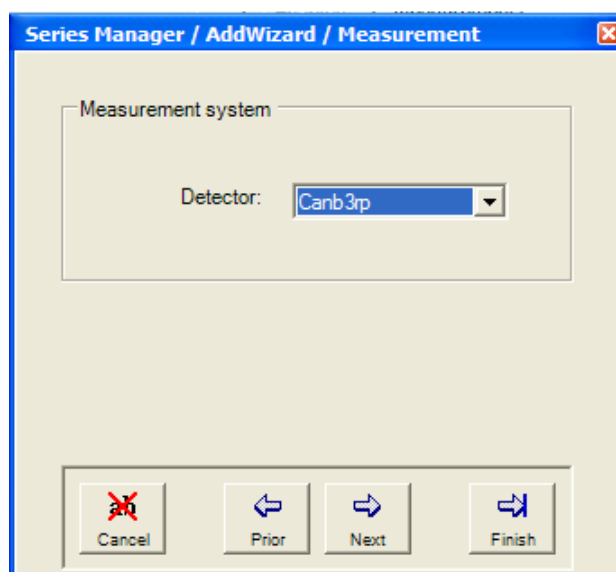


Figura B.31 – Selecionar o detector onde foram feitas as medições das fontes.

Series Manager / AddWizard / Measurement

Measurement

Start Date: 19/abr/2013

Start Time: 12:00:00

Cancel Prior Next Finish

Figura B.32 – Não é necessário introduzir manualmente data e horário, pois o programa lê automaticamente dos arquivos.

Series Manager / AddWizard / Measurement

Measurement

Stop Date: 19/abr/2013

Stop Time: 12:00:00

Cancel Prior Next Finish

Figura B.33 – Não é necessário introduzir manualmente data e horário, pois o programa lê automaticamente dos arquivos.

Series Manager / AddWizard / Measurement

Position of sample

Distance (mm): 94,8

Uncertainty (mm): 0,05

Orientation: Normal

Cancel Prior Next Finish

Figura B.34 – Distância da posição de contagem até o detector.

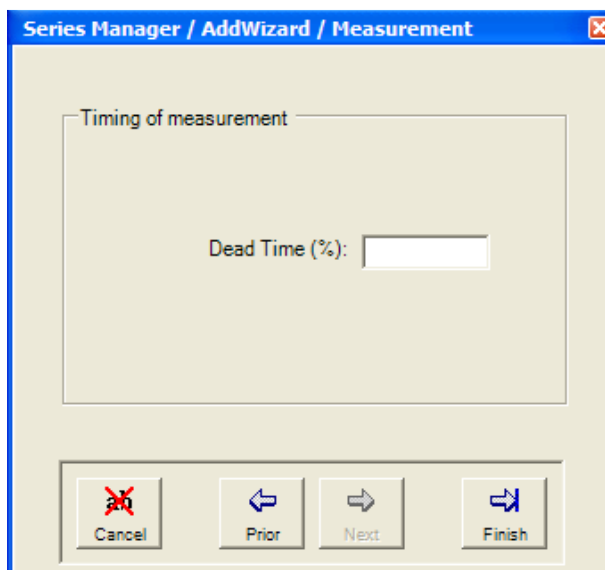


Figura B.35 – Não é necessário introduzir manualmente o tempo morto, pois o programa lê automaticamente do arquivo. Clique em *Finish* para finalizar.

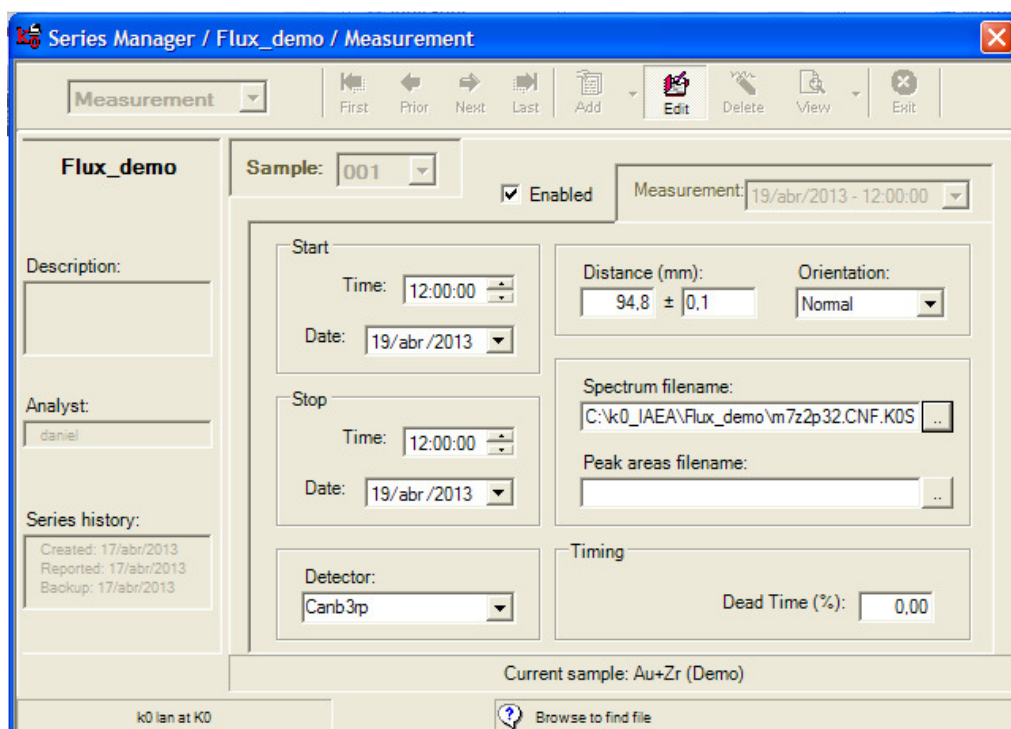


Figura B.36 – Selecionar **Measurement** → **Sample: 1** → **Edit** → **Spectrum filename** selecione o espectro a ser analisado. Depois clicar em **Edit** novamente.

Series Manager / Flux_demo / Measurement

Measurement

First Prior Next Last Add Edit Delete View Exit

Flux_demo

Sample: 001

Enabled

Measurement: 02/out/2012 - 09:57:52

Start

Time: 09:57:52

Date: 02/out/2012

Distance (mm): 94,8 ± 0,1

Orientation: Normal

Stop

Time: 10:00:24

Date: 02/out/2012

Spectrum filename: m7z2p32.CNF.K0S

Peak areas filename:

Detector: Canb3p

Timing

Dead Time (%): 1,57

Current sample: Au+Zr (Demo)

Series history:

Created: 17/abr/2013
Reported: 17/abr/2013
Backup: 17/abr/2013

Analyst: daniel

Description:

k0 lan at K0

Select a sample to be displayed

Figura B.37 – Como foram realizadas três medidas, o próximo passo será analisá-las. As etapas são semelhantes as das figuras B.28 a B.35. Selecione **Measurement** → **Edit**.

Series Manager / AddWizard / Measurement

Type of register to add

☐ Activation
☒ Measurement
☐ Packaging
☐ Samples

Figura B.38 – Selecionar **Measurement**.

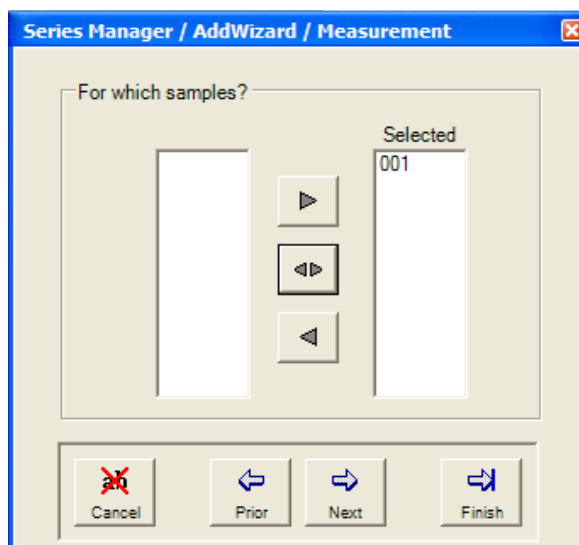


Figura B.39 – Selecione o item desejado.

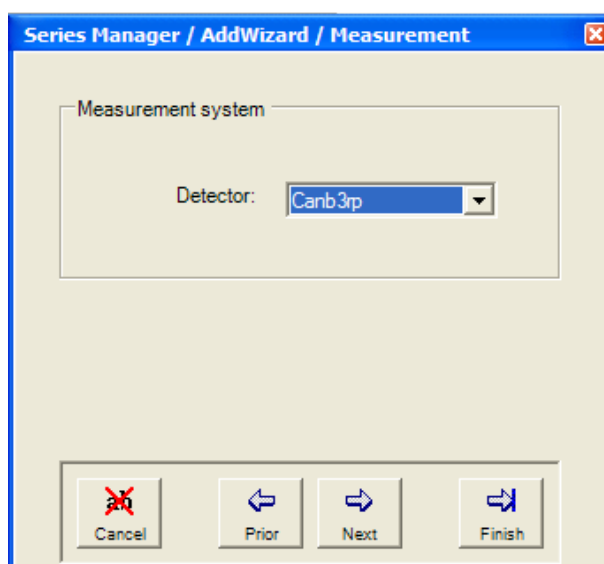


Figura B.40 – Selecionar o detector onde foram feitas as medições das fontes.

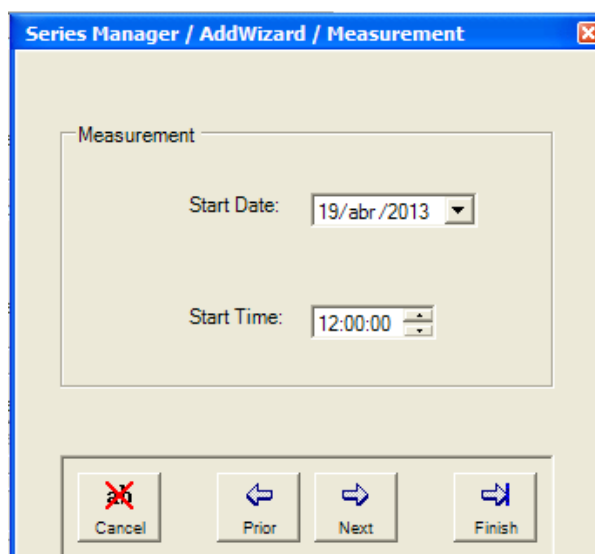
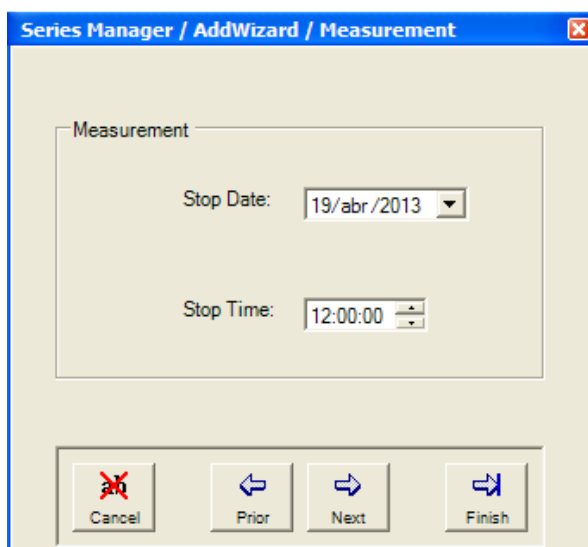


Figura B.41 – Não é necessário introduzir manualmente data e horário, pois o programa lê automaticamente dos arquivos.



Series Manager / AddWizard / Measurement

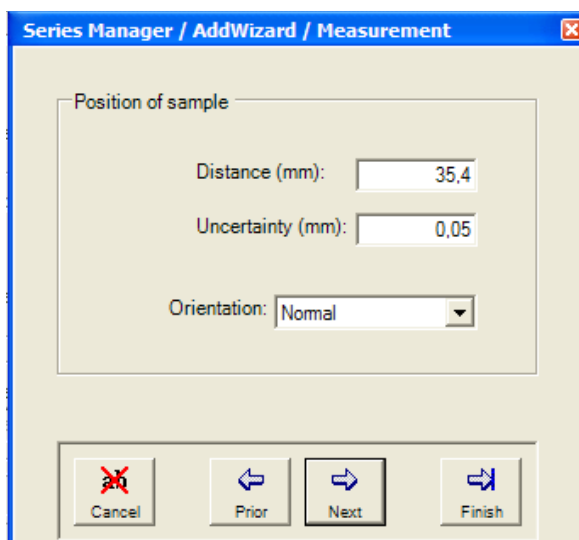
Measurement

Stop Date: 19/abr/2013

Stop Time: 12:00:00

Cancel Prior Next Finish

Figura B.42 – Não é necessário introduzir manualmente data e horário, pois o programa lê automaticamente dos arquivos.



Series Manager / AddWizard / Measurement

Position of sample

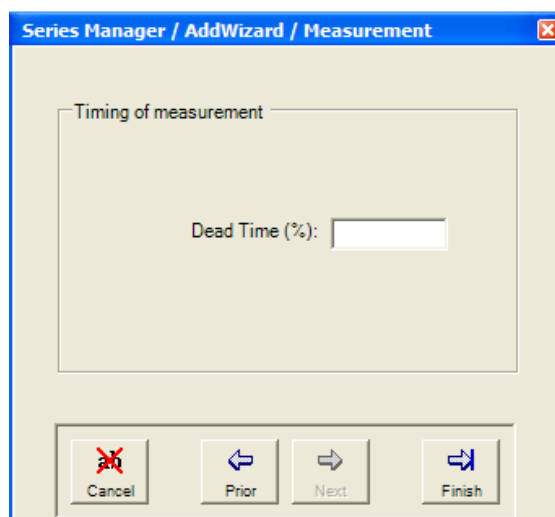
Distance (mm): 35,4

Uncertainty (mm): 0,05

Orientation: Normal

Cancel Prior Next Finish

Figura B.43 – Distância da posição de contagem até o detector.



Series Manager / AddWizard / Measurement

Timing of measurement

Dead Time (%):

Cancel Prior Next Finish

Figura B.44 – Não é necessário introduzir manualmente o tempo morto, pois o programa lê automaticamente do arquivo. Depois clique em *Finish* para finalizar.

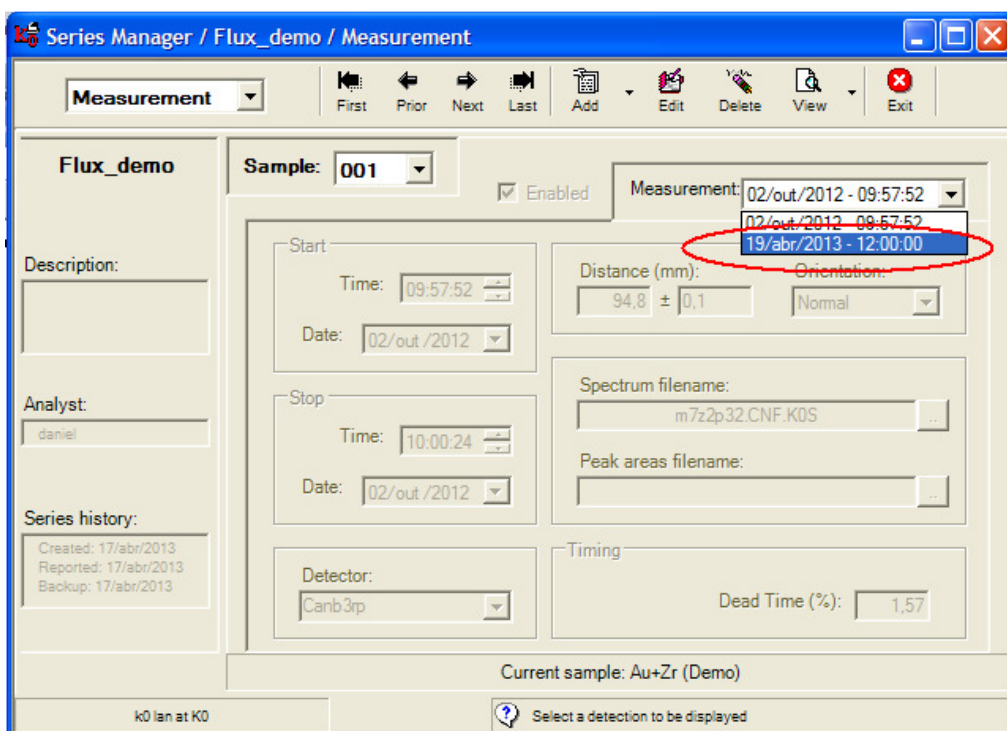


Figura B.45 – Clicar na seta ao lado de Measurement. Selecione o outro espectro a ser analisado.

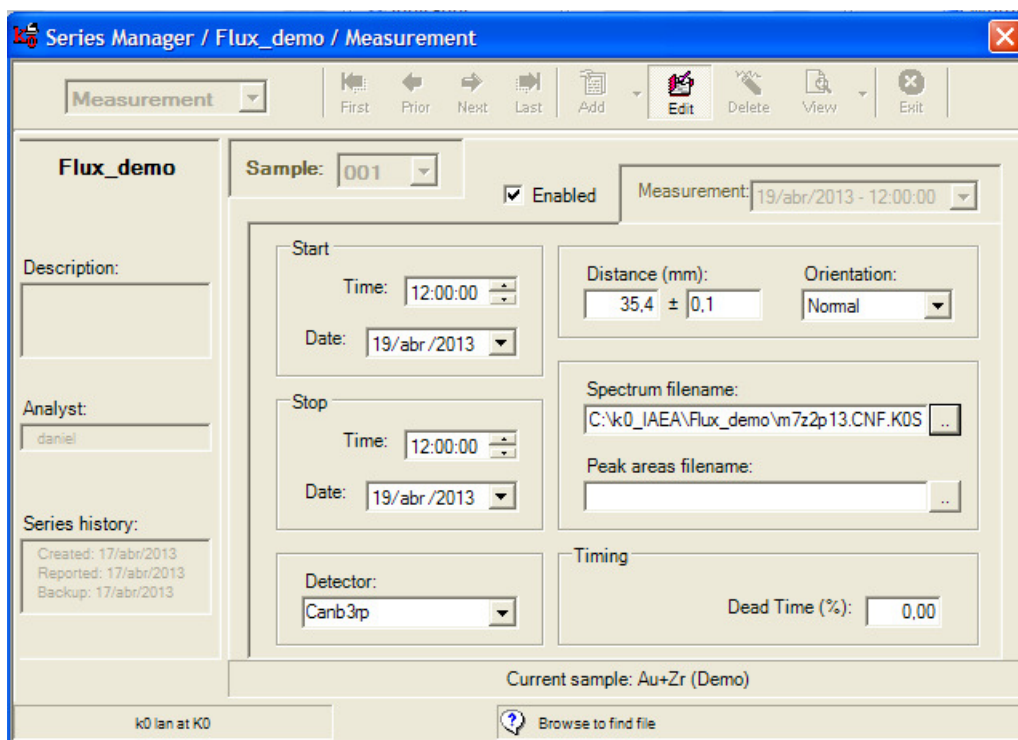


Figura B.46 – Depois de selecionado, clicar em **Edit**. Selecionar o *Spectrum filename* a ser analisado. Depois clicar em **Edit** novamente.

Series Manager / Flux_demo / Measurement

Measurement

First Prior Next Last Add Edit Delete View Exit

Flux_demo

Sample: 001

Add new information

Enabled

Measurement: 19/abr/2013 - 12:00:00

Description:

Analyst: daniel

Series history:

Created: 17/abr/2013
Reported: 17/abr/2013
Backup: 17/abr/2013

Start

Time: 12:00:00

Date: 19/abr/2013

Distance (mm): 35,4 ± 0,1

Orientation: Normal

Stop

Time: 12:00:00

Date: 19/abr/2013

Spectrum filename: C:\nk0_IAEA\...m7z2p13.CNF.K0S

Peak areas filename:

Detector: Canb3p

Timing

Dead Time (%): 0,00

Current sample: Au+Zr (Demo)

k0 lan at K0

Figura B.47 – Repetir o procedimento das figuras de B.37 a B.46.

Series Manager / Flux_demo / Activation

Activation

First Prior Next Last Add Edit Delete View Exit

Flux_demo

Sample: 001

Add new information

Enabled

Activation:

Description:

Analyst: daniel

Series history:

Created: 17/abr/2013
Reported: 17/abr/2013
Backup: 17/abr/2013

Start

Time:

Date:

Stop

Time:

Date:

Irradiation facility:

Thermal flux (m-2 s-1):

Thermal/Epithermal ratio:

Alpha:

Fast flux (m-2 s-1):

Temperature (K):

Position

Rabbit:

Col:

Row:

Current sample: Au+Zr (Demo)

k0 lan at K0

Select a folder to be displayed

Figura B.47 – Selecionar **Activation** → **Add**.

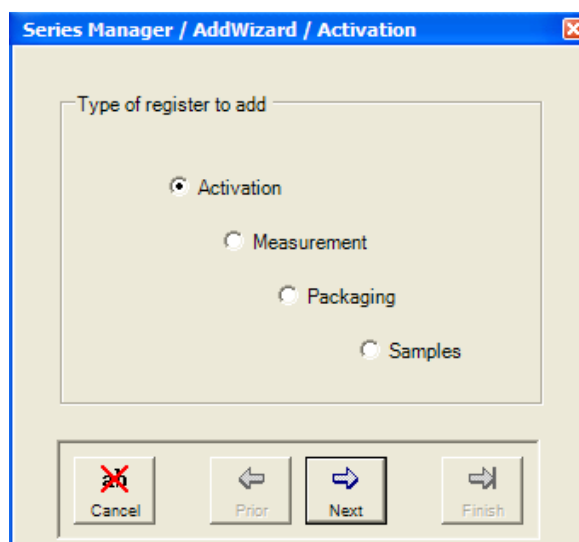


Figura B.48 – Selecionar *Activation*.

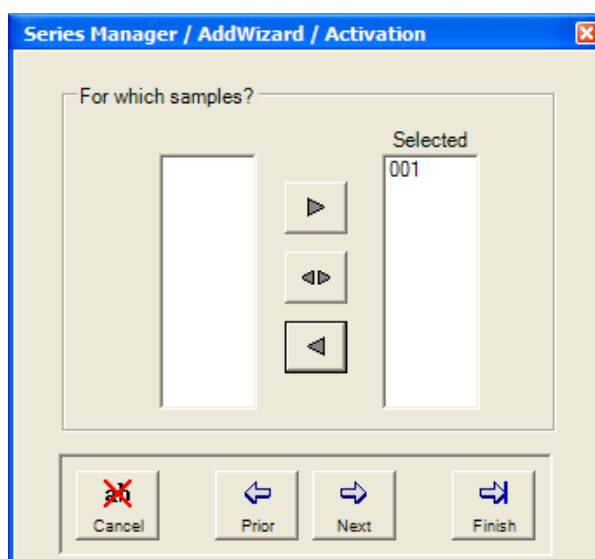


Figura B.49 – Selecionar o item desejado.

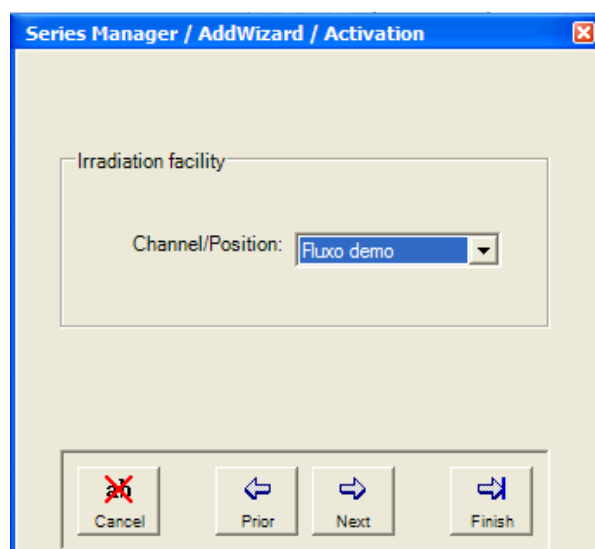


Figura B.50 – Selecionar *Channel/Position* cadastrado anteriormente.

Series Manager / AddWizard / Activation

Irradiation

Start Date: 02/out /2012

Start Time: 09:33:24

Cancel Prior Next Finish

Figura B.51 – Colocar data e horário do início da irradiação.

Series Manager / AddWizard / Activation

Irradiation

Stop Date: 02/out /2012

Stop Time: 09:35:24

Cancel Prior Next Finish

Figura B.52 – Colocar data e horário do final da irradiação. Clicar em *Finish*.

Series Manager / Flux_demo / Activation

Activation: [Click here to leave edition mode](#)

Sample: 001 ☒ Enabled Activation: 02/out/2012 - 09:33:24

Flux_demo

Description:

Analyst: daniel

Series history:

Created: 17/abr/2013
Reported: 17/abr/2013
Backup: 17/abr/2013

Start Time: 09:33:24 Date: 02/out/2012

Stop Time: 09:35:24 Date: 02/out/2012

Irradiation facility: Fluxo demo

Thermal flux (m⁻² s⁻¹): 4,000e16 ± 4,000e12

Thermal/Epithermal ratio: 35,0 ± 1,0

Alpha: 0,050 ± 0,001

Fast flux (m⁻² s⁻¹): 4,000e15 ± 4,000e11

Temperature (K): 310,0 ± 5,0

Position: Rabbit: 0 Col: 0 Row: 0

Current sample: Au+Zr (Demo)

k0 lan at K0

Figura B.53 – Imagem dos dados de ativação cadastrados. Caso exista necessidade de editar, clicar no ícone **Edit**. Feito isso, clicar em **Exit** para sair do **Series database**.

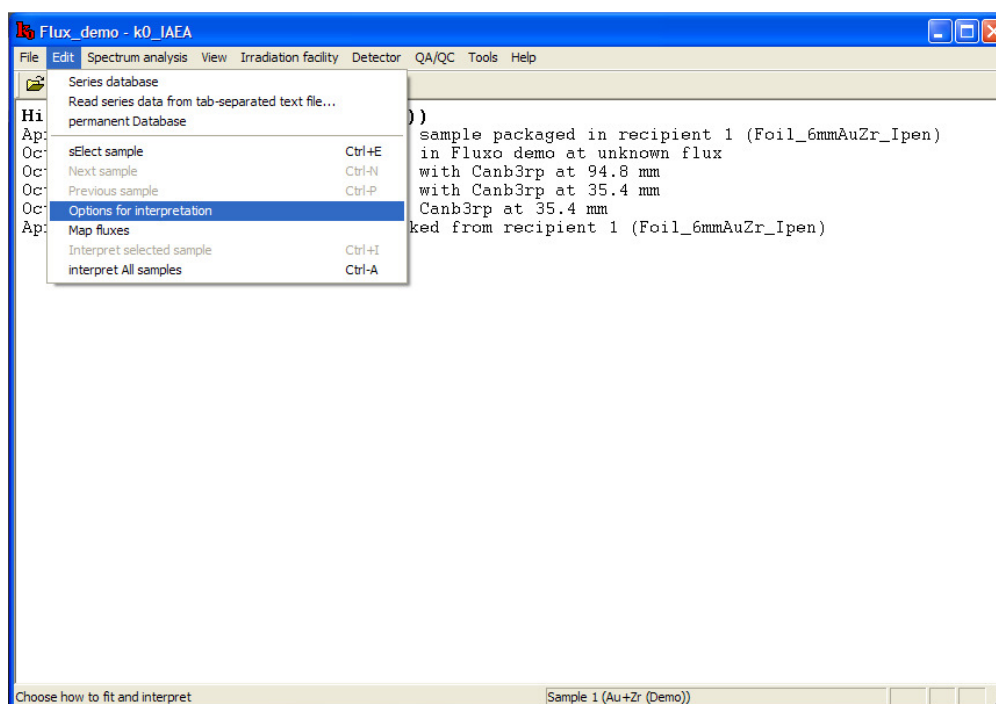


Figura B.54 – Clicar em **Edit** → **Options for interpretation**.

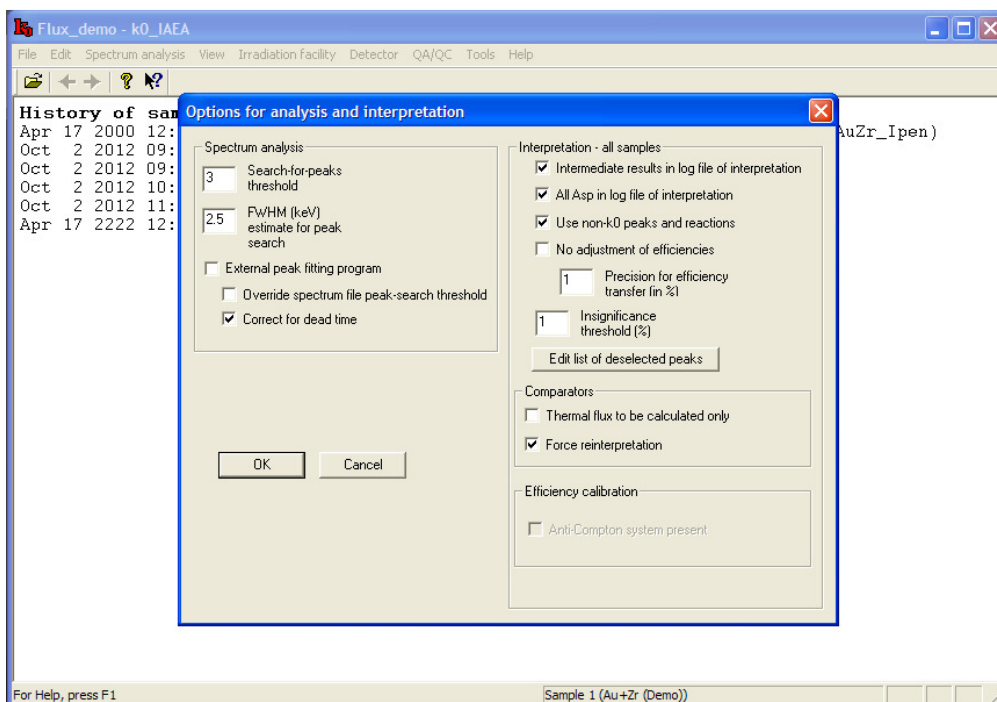


Figura B.55 – Marcar os itens.

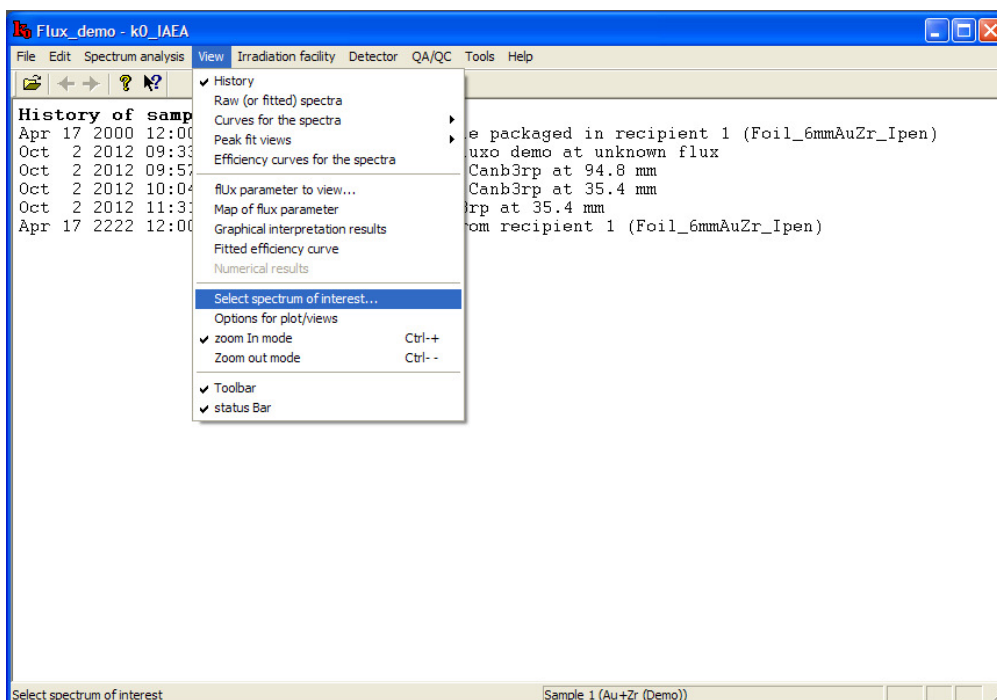


Figura B.56 – Como são três espectros para serem analisados. Clicar em **View** → **Select spectrum of interest**.

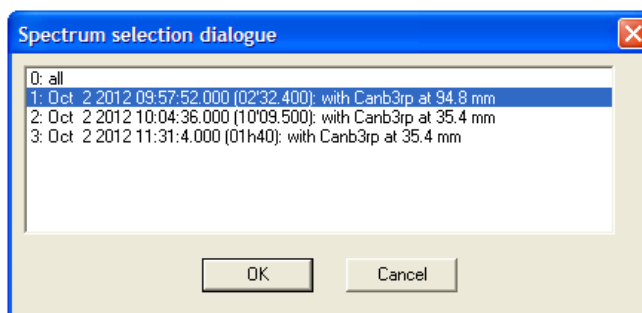


Figura B.57 – Selecionar o primeiro espectro.

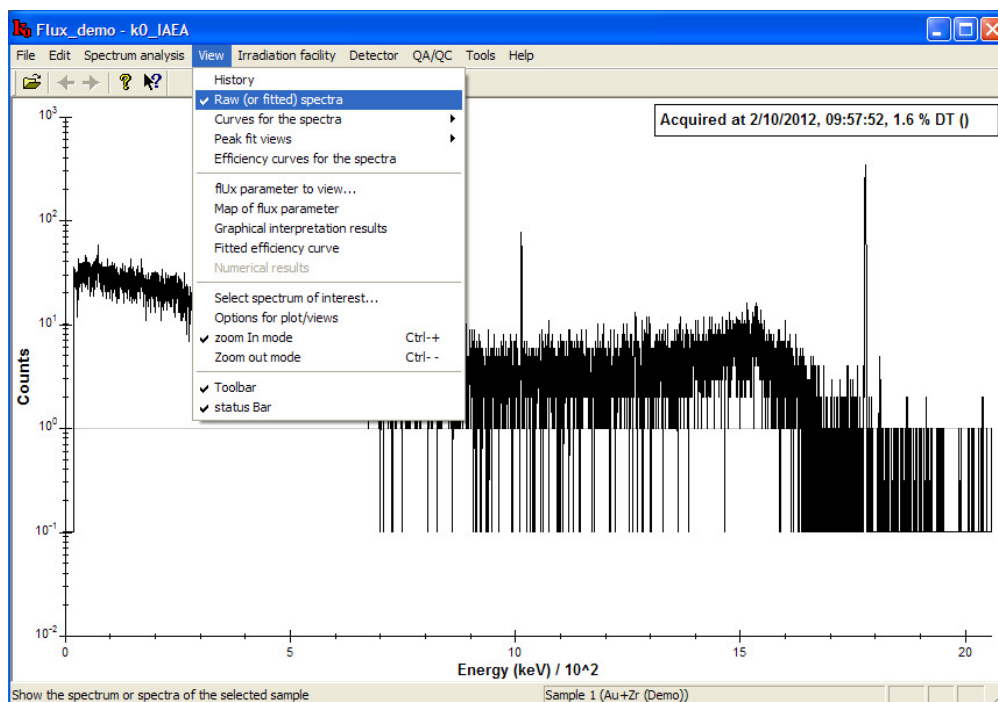


Figura B.58 – Clicar em **View** → **Raw (or fitted) spectra**.

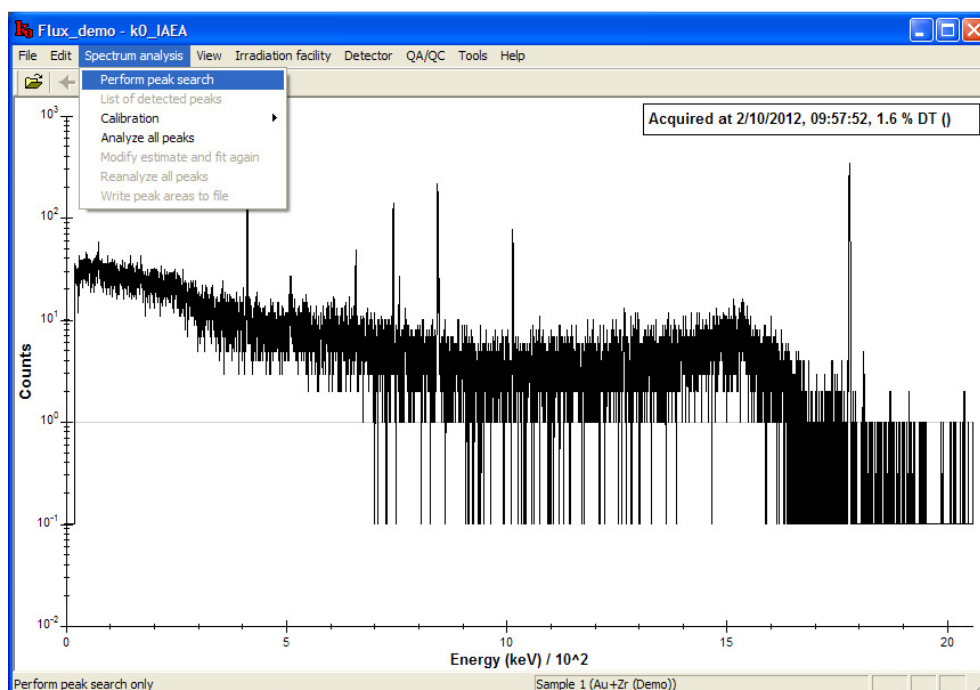


Figura B.59 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Perform peak search**.

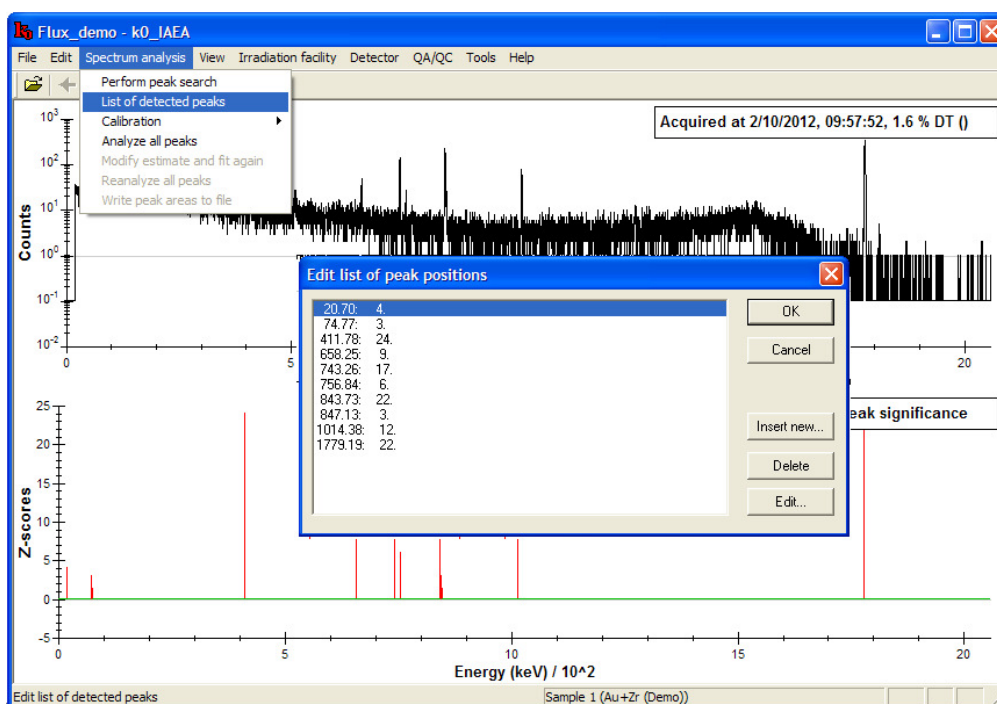


Figura B.60 – Clicar em **Spectrum analysis** → **List of detected peaks**. Deletar o primeiro pico e clicar OK.

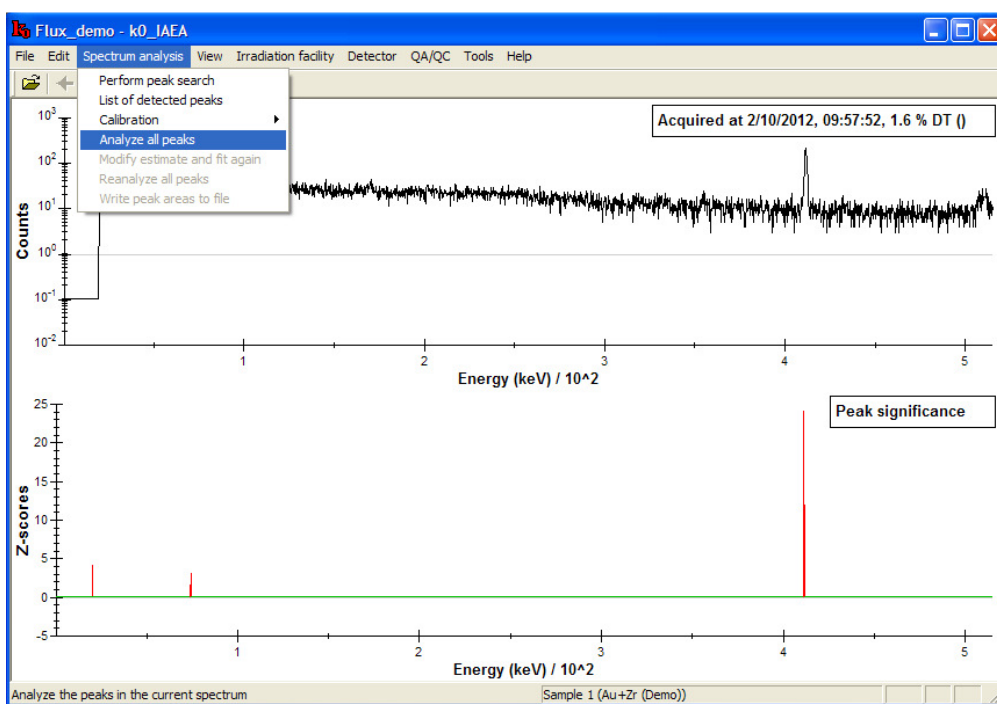


Figura B.61 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Analyze all peaks**.

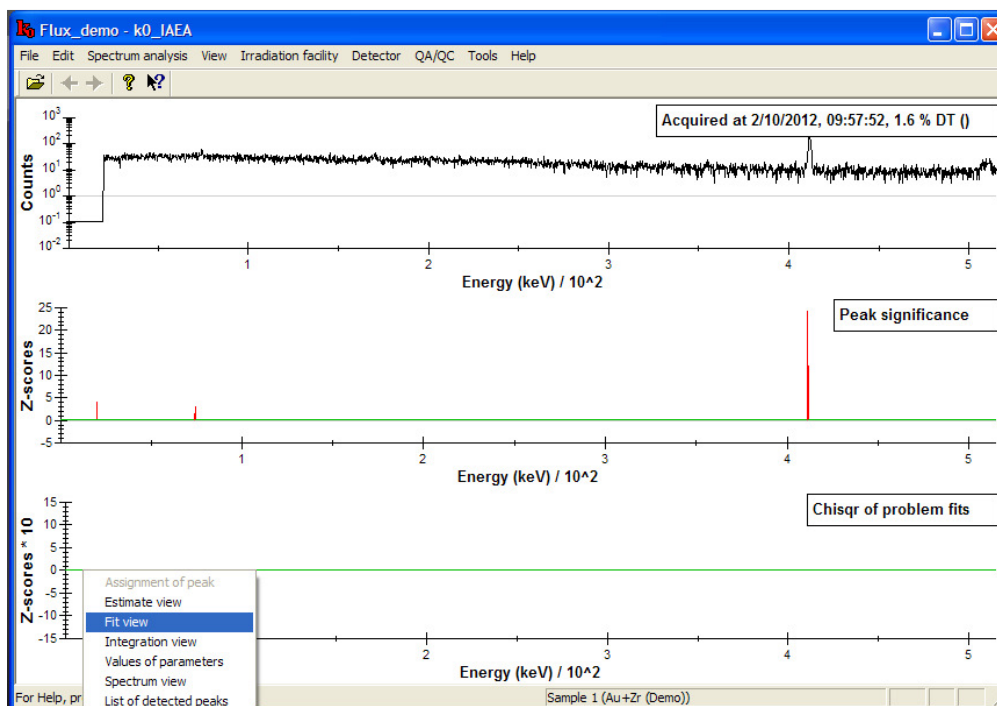


Figura B.62 – No canto inferior da tela clicar com a tecla direita do mouse. Depois selecionar *Fit view*.

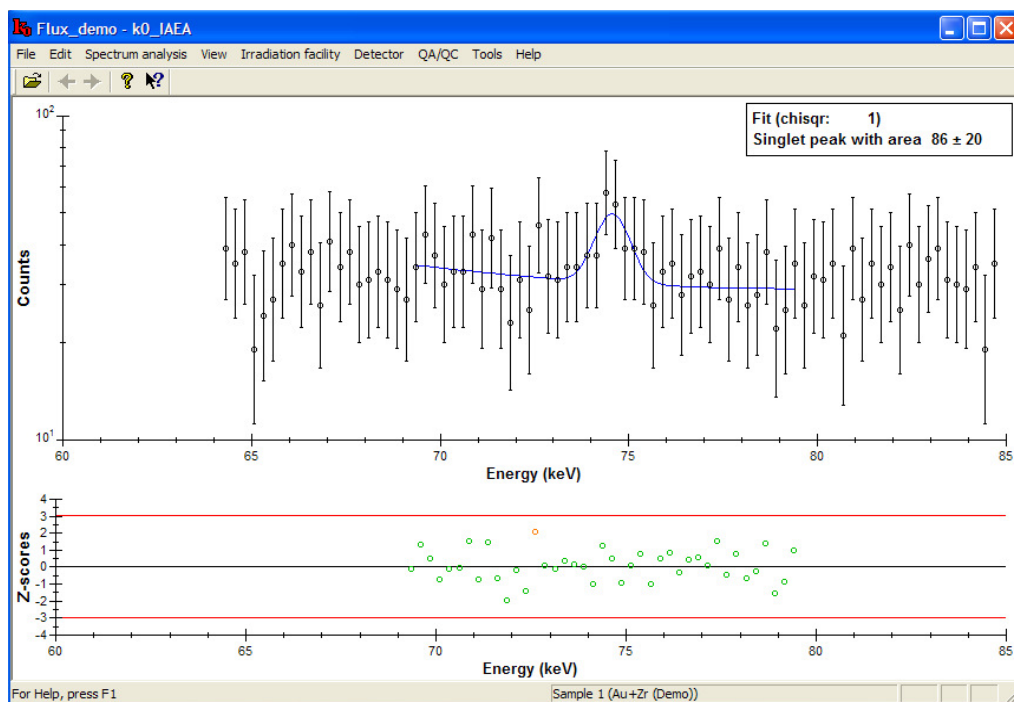


Figura B.63 – Visualize cada pico utilizando as teclas de avanço ou recuo do teclado. Existindo a necessidade de excluir, inserir ou modificar algum pico poderá ser feito aqui.

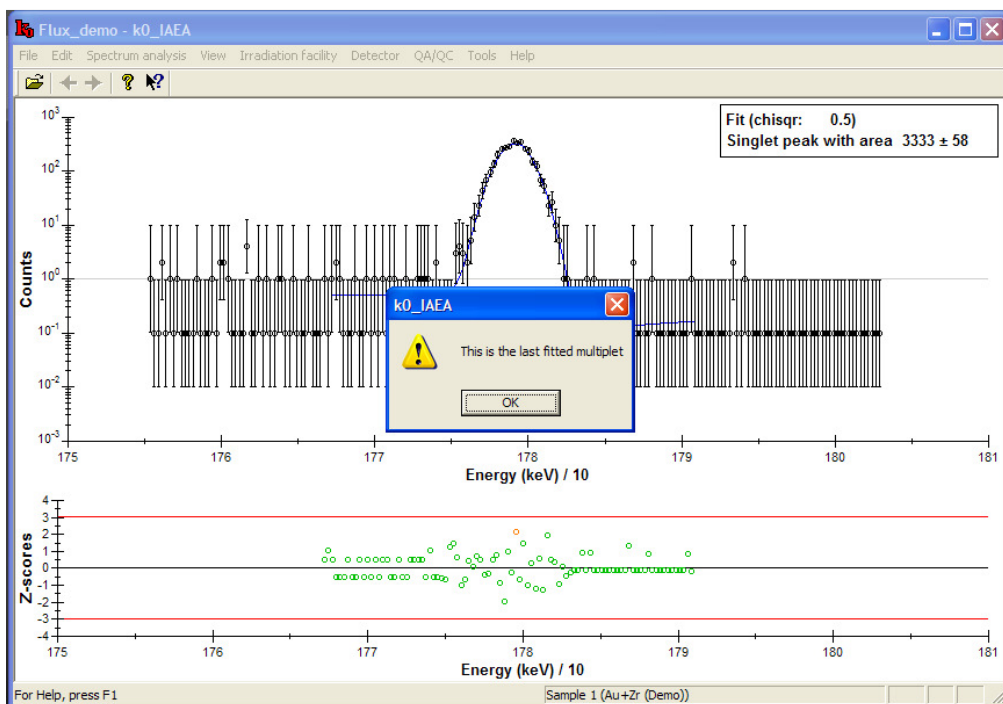


Figura B.64 – Ao final aparecerá essa mensagem. Clicar em **OK** para sair.

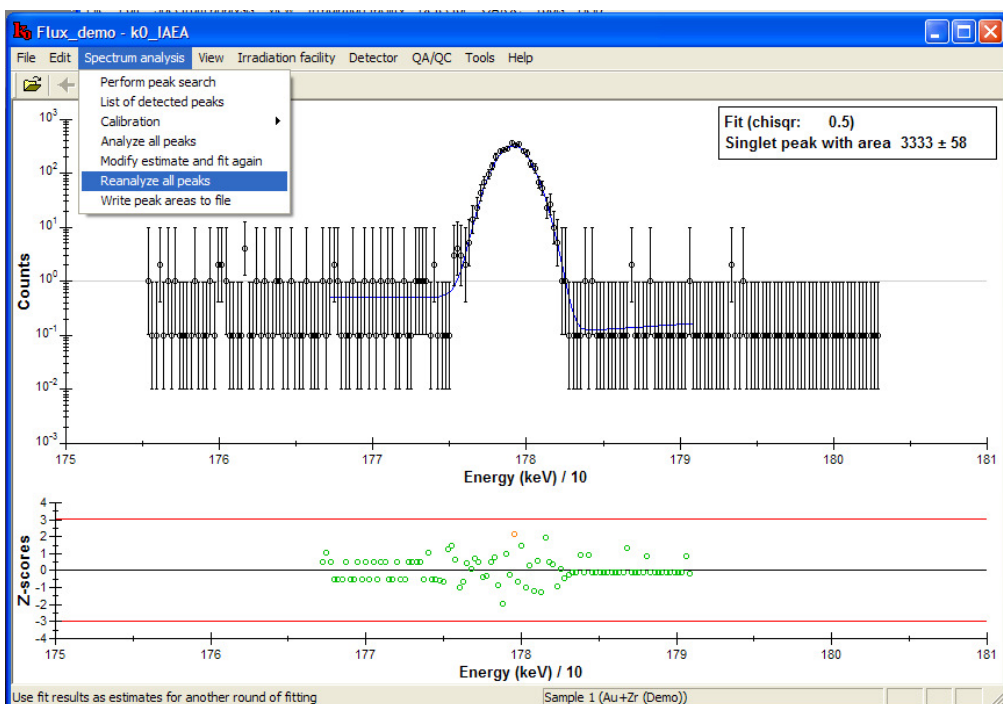


Figura B.65 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Reanalyze all peaks**, para salvar todas as modificações realizadas nos picos de energias. Depois clicar em **Spectrum analysis** → **Write peak areas to file**.

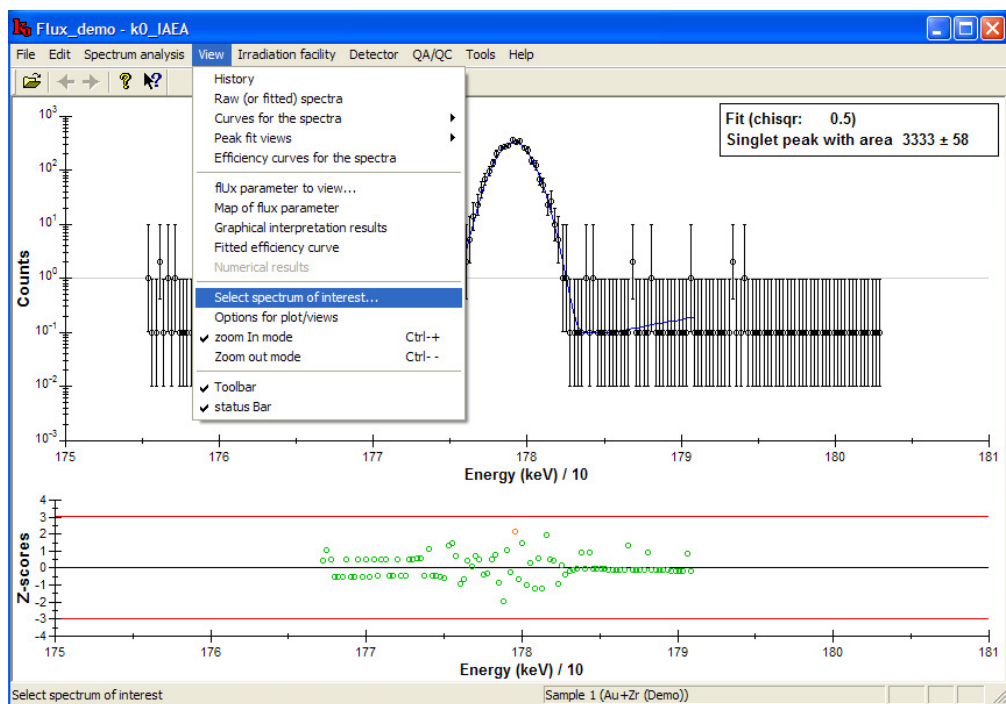


Figura B.66 – Repetir o procedimento das figuras B.56 a B.65 para os demais espectros cadastrados.

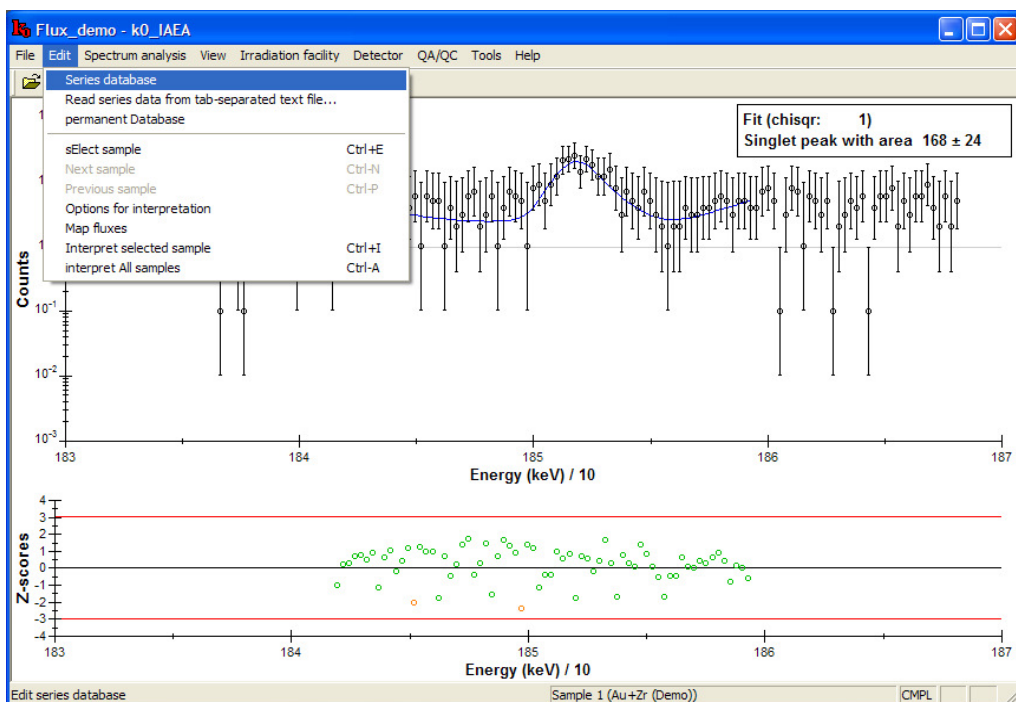


Figura B.67 – Se algum espectro não ficou adequado ou caso queira selecionar algum específico. Clicar em **Edit** → **Series database**

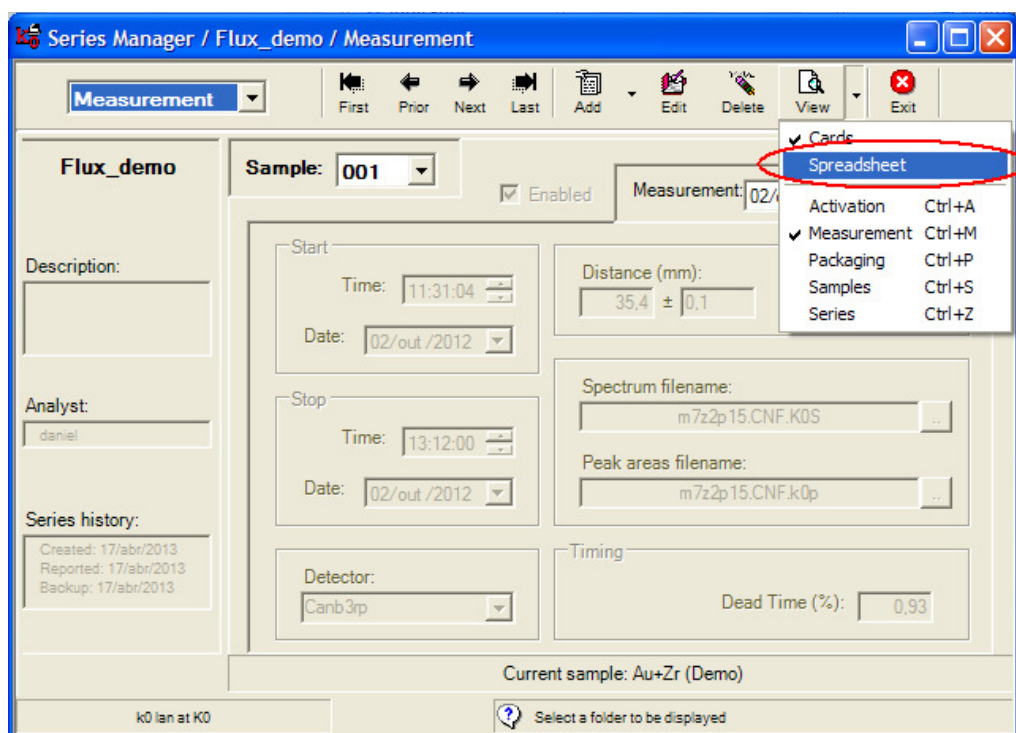


Figura B.68 – Selecionar **Measurement**. Na seta ao lado de *View* selecione *Spreadsheet*.

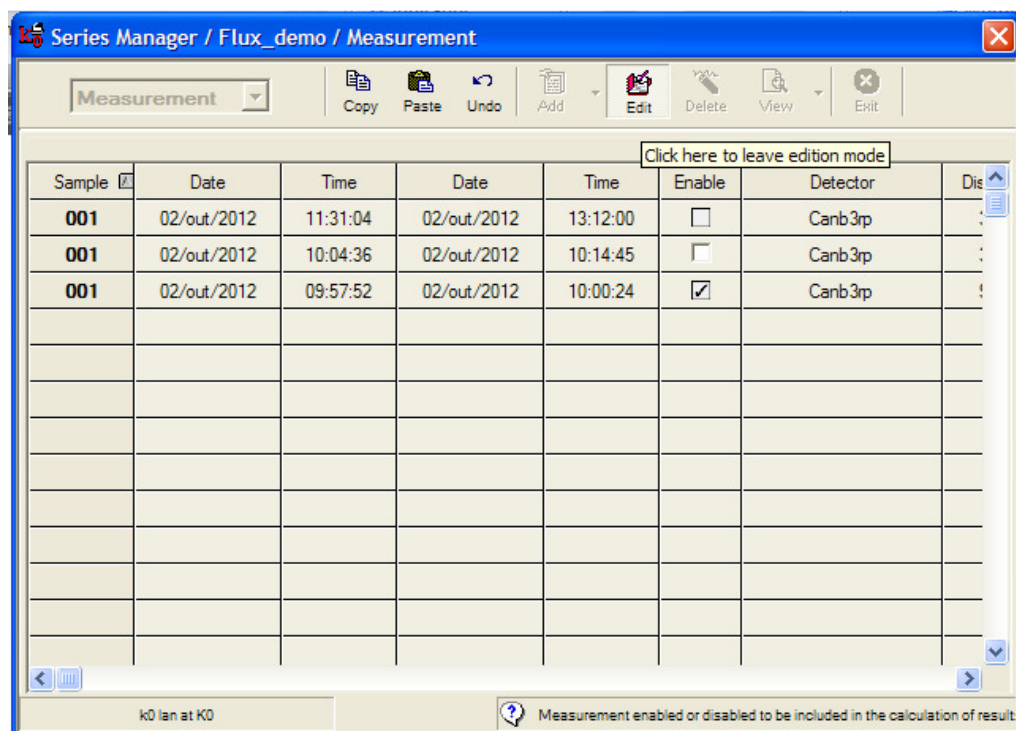


Figura B.69 – Clicar em **Edit** e desabilite os espectros se achar necessário. Depois clicar novamente em **Edit** para sair da tela. Clicar no **Exit** para sair do **Series database**.

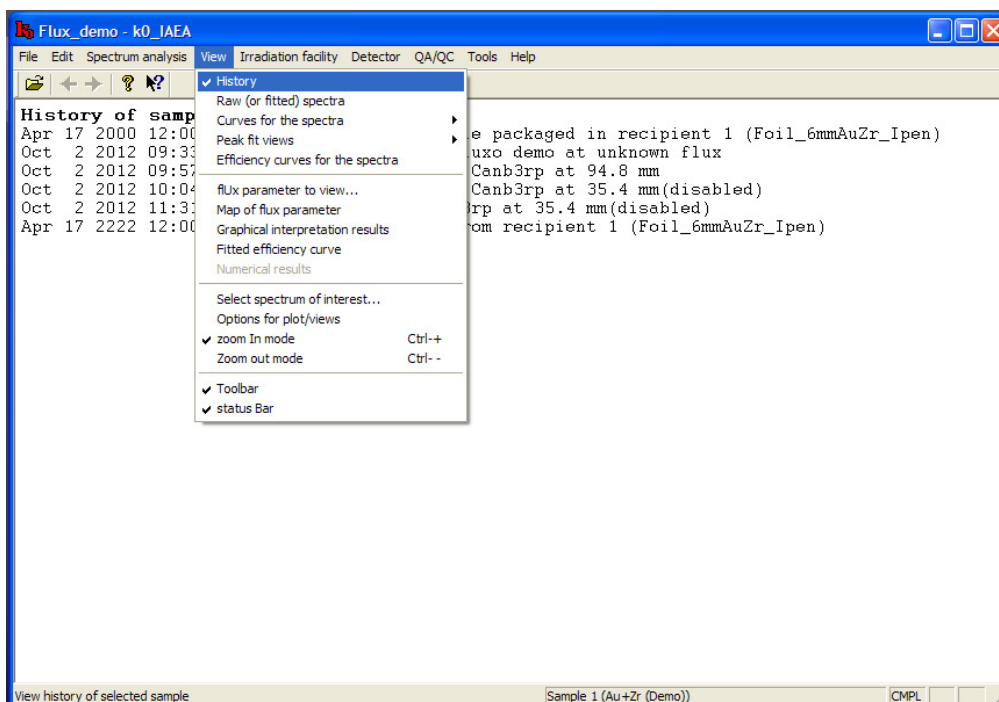


Figura B.70 – Clicar em **View** → **History**.

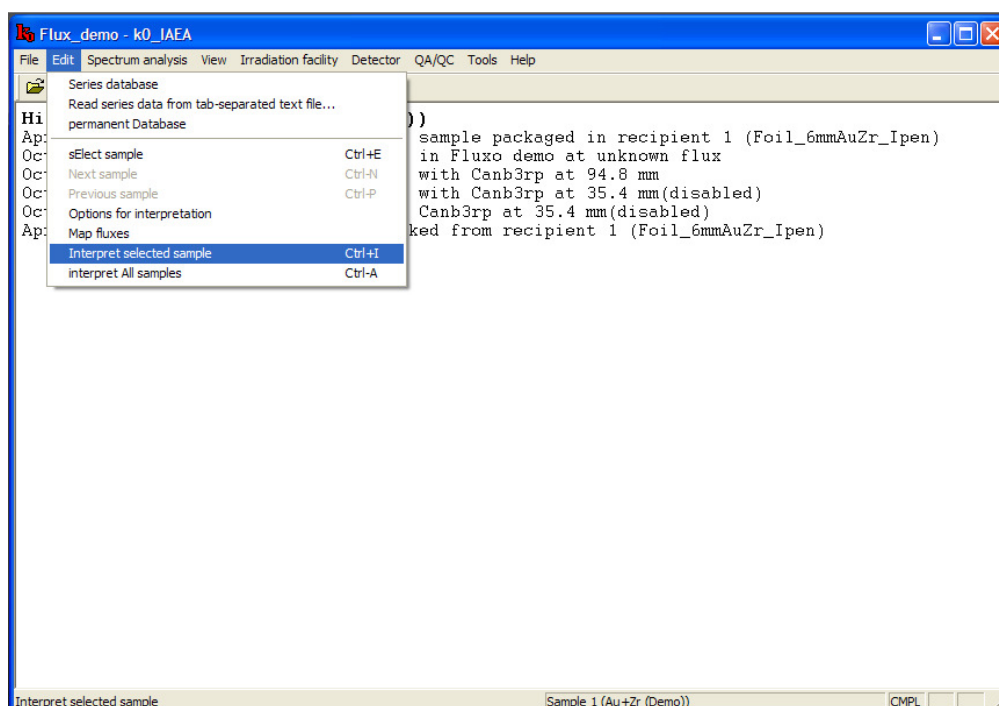


Figura B.71 – Clicar em **Edit** → **Interpret selected sample**. Caso tenha habitado mais de um espectro, selecionar **Interpret All samples**.

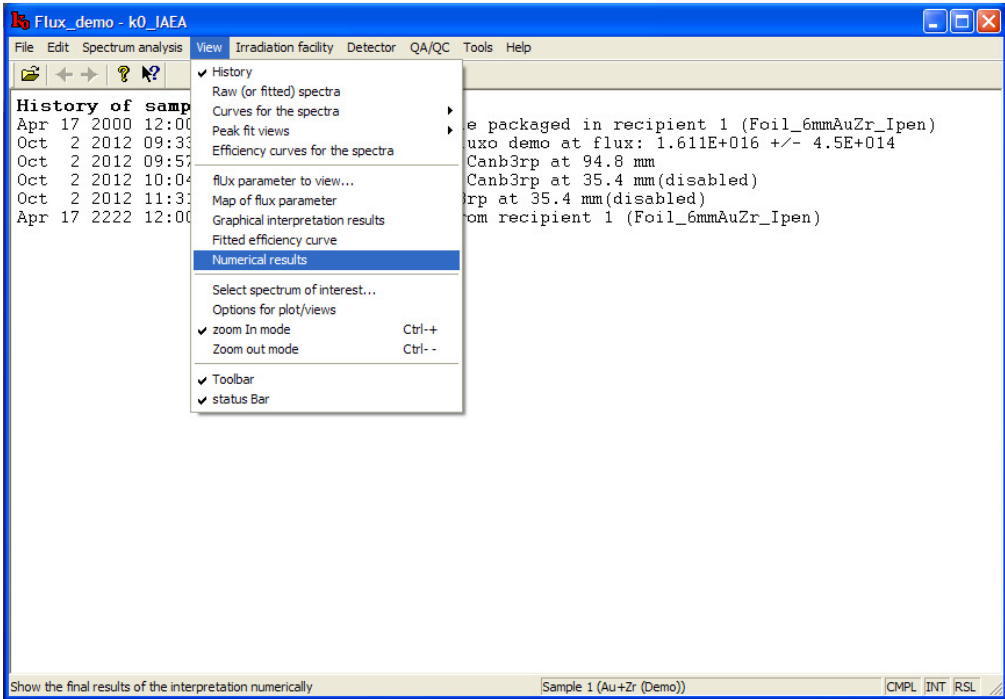


Figura B.72 – Clicar em **View** → **Numerical results**.

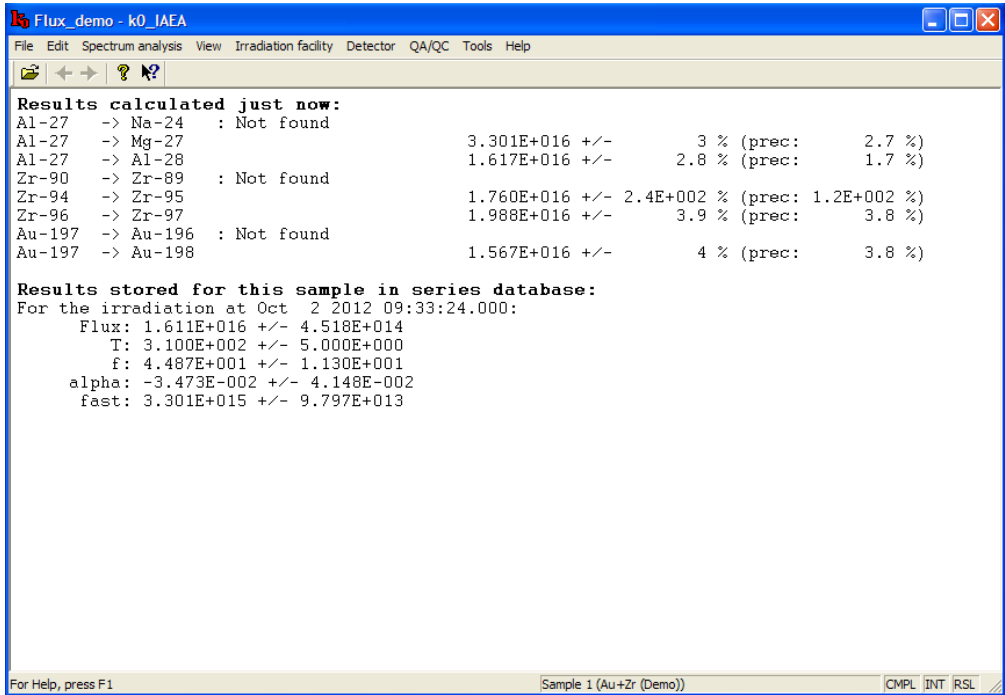


Figura B.73 – Tela com os resultados obtidos.

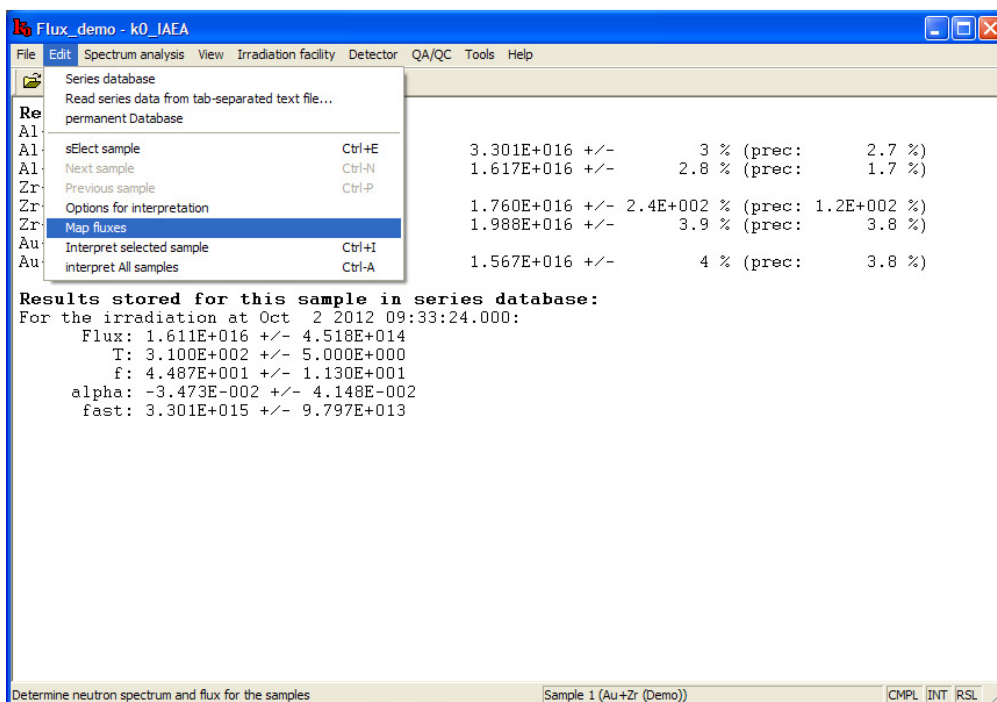


Figura B.74 – Clicar em Edit → **Map fluxes**.

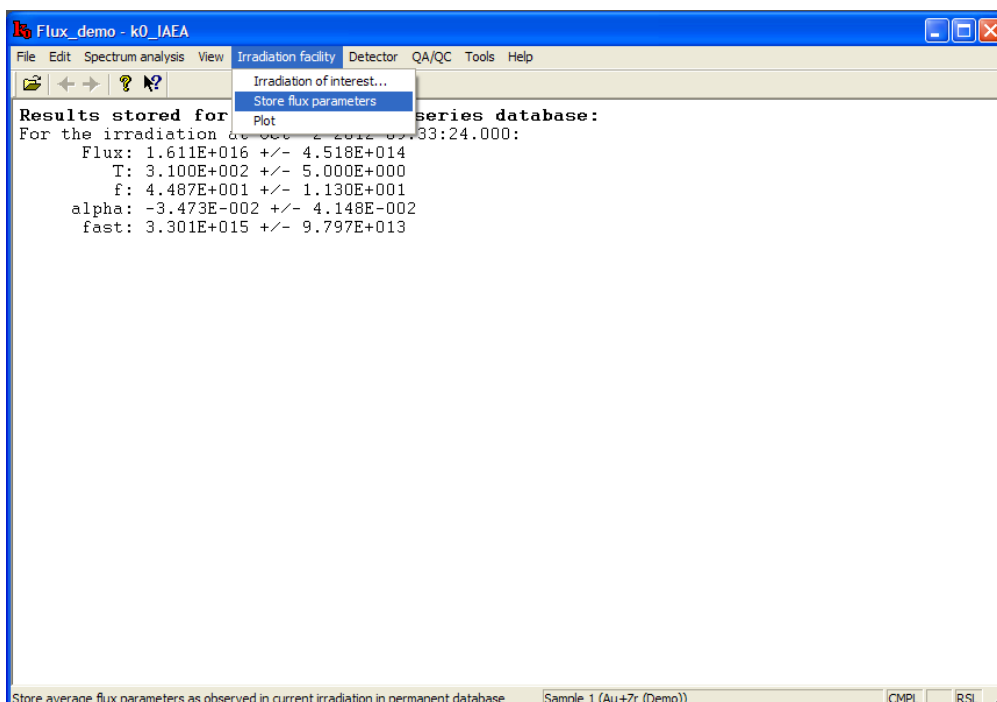


Figura B.75 – Clicar em **Irradiation facility** → **Store flux parameters**. Ao fazer isso, os valores serão gravados no banco de dados.

C. Análise de amostras

Nessa etapa, será mostrado como são feitas as análises das amostras. A criação da Series e a introdução dos dados é semelhante ao passo anterior.

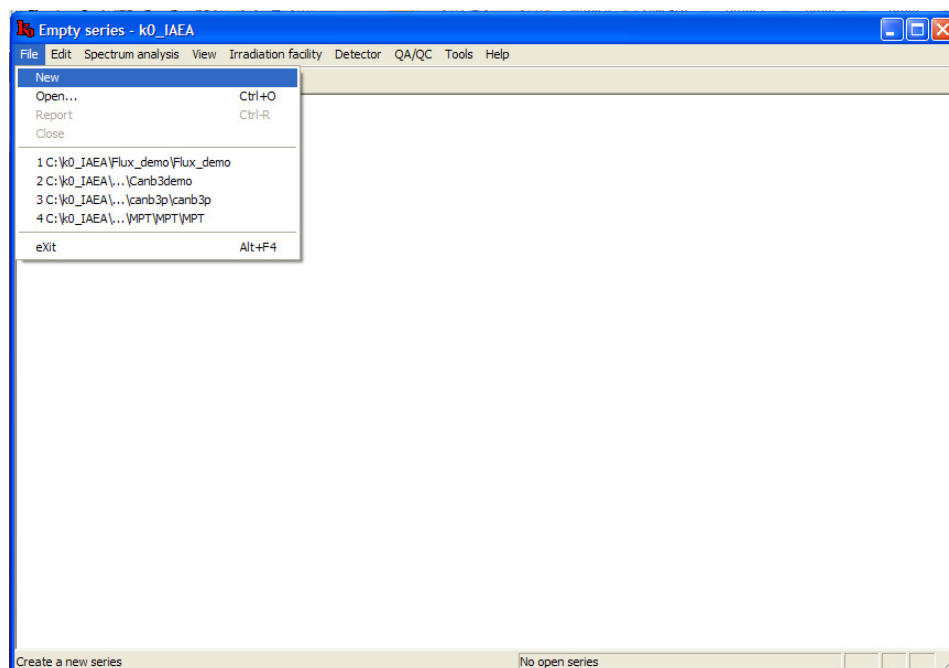


Figura C.1 – Abra o programa k_0 -IAEA e clique em **File** → **New**.

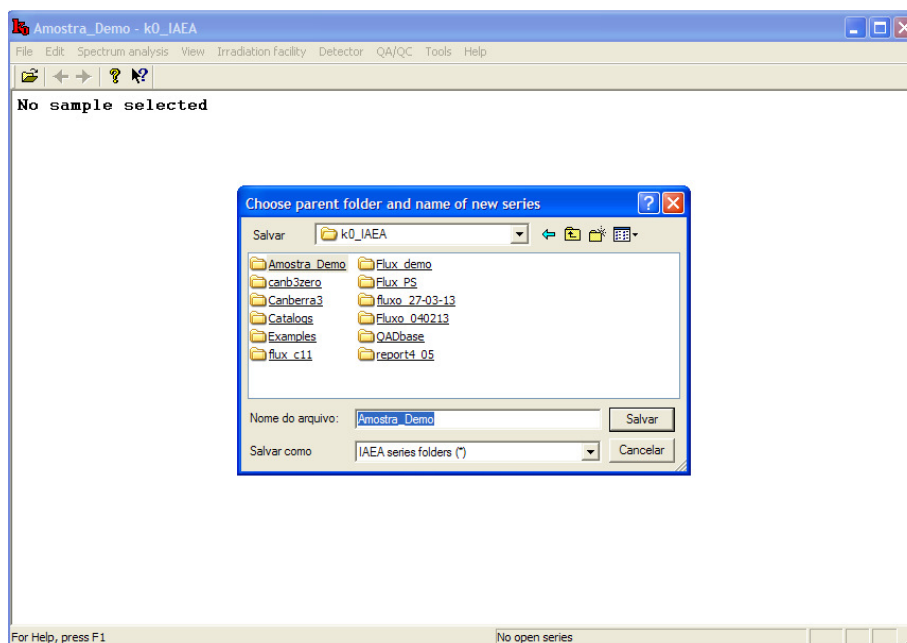


Figura C.2 – Ir à pasta k_0 -IAEA que está em C: dar um *duplo-click* depois dar o nome desejado e clicar em salvar.

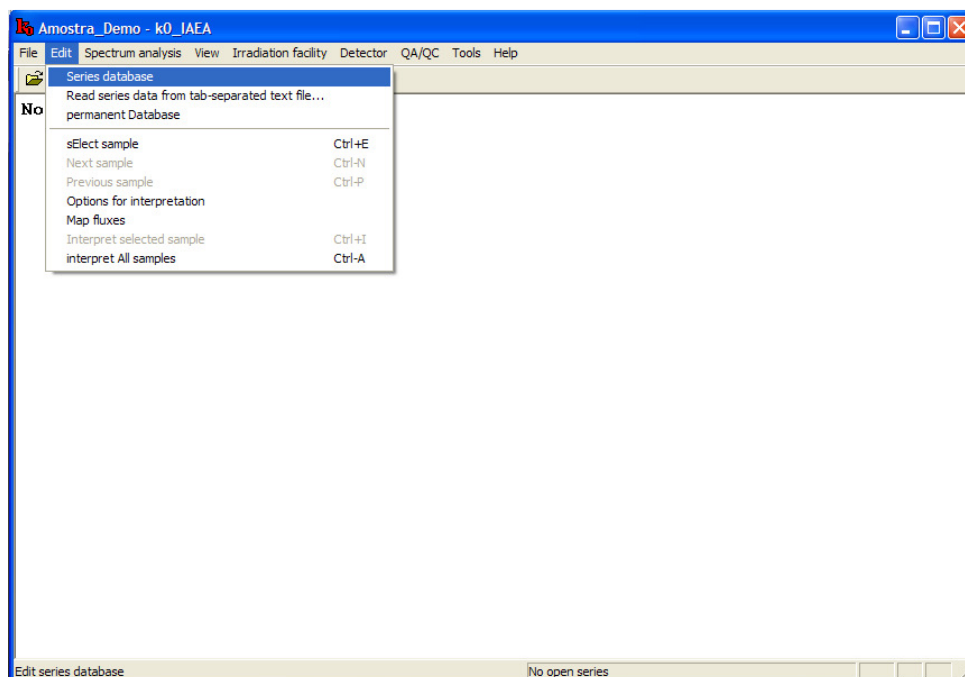


Figura C.3 – Clicar em **Edit** → **Series database**.

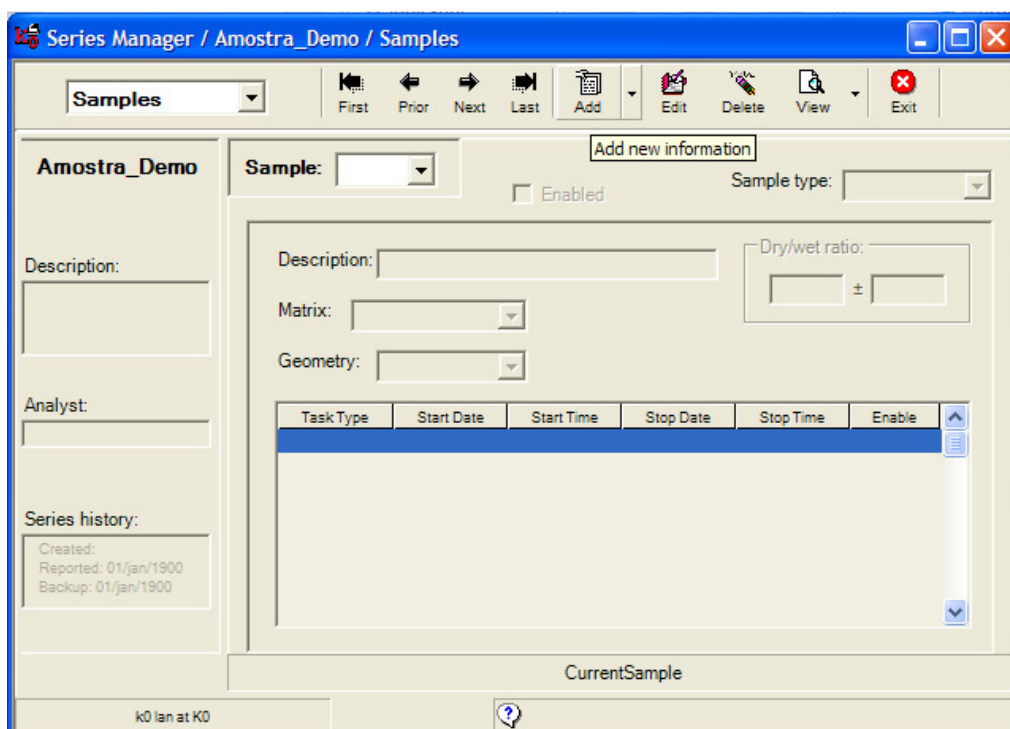


Figura C.4 – Selecionar **Samples** → **Add**.

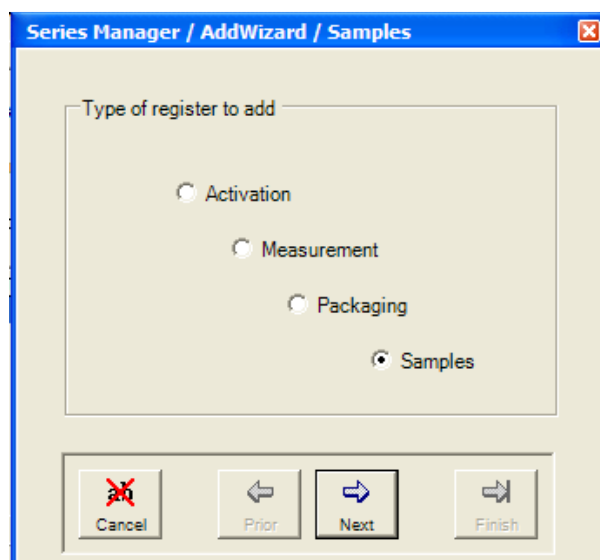
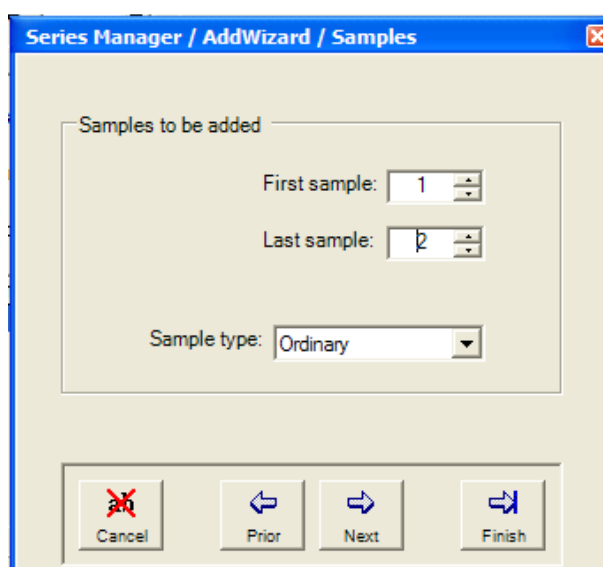
Figura C.5 – Selecionar *Samples*.

Figura C.6 – Introduzir a quantidade de espectros a serem analisados.

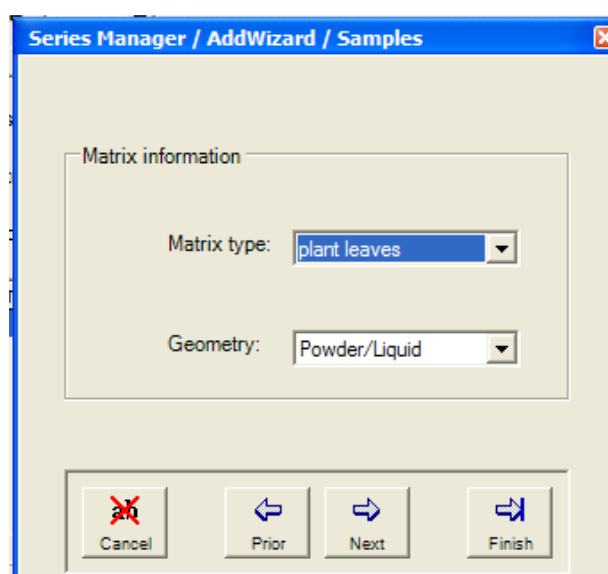


Figura C.7 – Selecionar o tipo de Matriz e a Geometria.

The screenshot shows a software window titled "Series Manager / AddWizard / Samples". Inside, there is a section titled "Moisture correction" which contains two input fields: "Dry/wet ratio:" with the value "0,9174" and "Uncertainty:" with the value "0,001". At the bottom of the window, there are four buttons: "Cancel" (with a red X icon), "Prior" (with a left arrow icon), "Next" (with a right arrow icon), and "Finish" (with a double right arrow icon).

Figura C.8 – Inserir a medida *Dry/wet ratio*.

The screenshot shows the same software window, but now at the "Samples identification" step. It features a "General description:" label above a text input field containing the text "MB_demo". The same four navigation buttons ("Cancel", "Prior", "Next", "Finish") are located at the bottom.

Figura C.9 – Dar o nome do material e clicar em *Finsih*.

Series Manager / Amostra_Demo / Samples

Samples

First Prior Next Last Add Edit Delete View Exit

Amostra_Demo

Sample: 001

Enabled

Sample type: Ordinary

Description: MB_demo

Matrix: plant leaves

Geometry: Powder/Liquid

Dry/wet ratio: 0.9174 ± 0.0010

Analyst:

Series history:

Created: 01/jan/1900
Reported: 01/jan/1900
Backup: 01/jan/1900

Current sample: MB_demo

k0 lan at K0

Figura C.10 – Em *Samples:001* selecionar cada item e editar se necessário.

Series Manager / Amostra_Demo / Samples

Samples

First Prior Next Last Add Edit Delete View Exit

Amostra_Demo

Sample: 002

Enabled

Sample type: Comparator

Description: Au6_Demo

Matrix: Al-metal

Geometry: Wire

Dry/wet ratio: 1 ± 0

Certificate: Au-530R

Analyst:

Series history:

Created: 01/jan/1900
Reported: 01/jan/1900
Backup: 01/jan/1900

Current sample: Au6_Demo

k0 lan at K0

Standard uncertainty of dry/wet mass ratio

Figura C.11 - Em *Samples:002* selecionar cada item e editar se necessário.

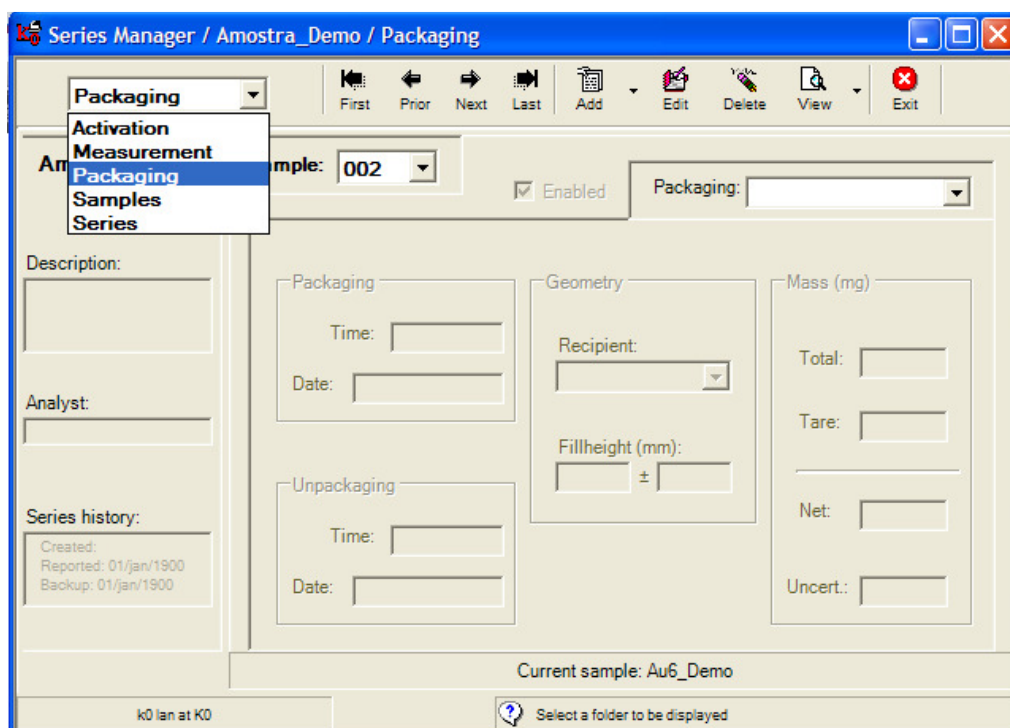


Figura C.12 – Selecionar **Packaging** → **Add**.

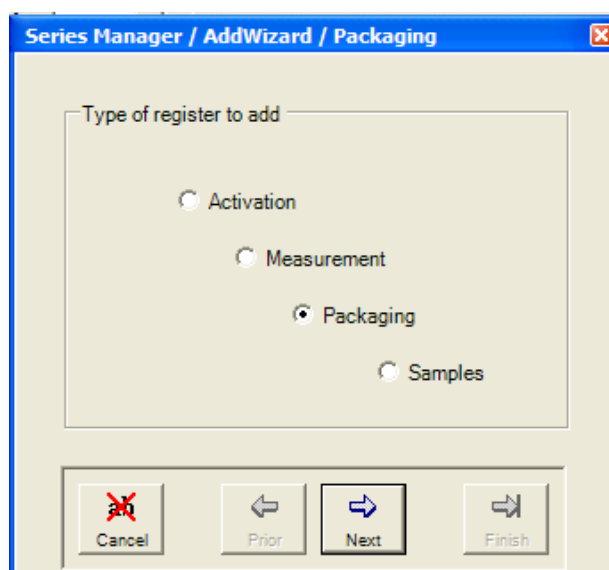


Figura C.13 – Selecionar **Packaging**.

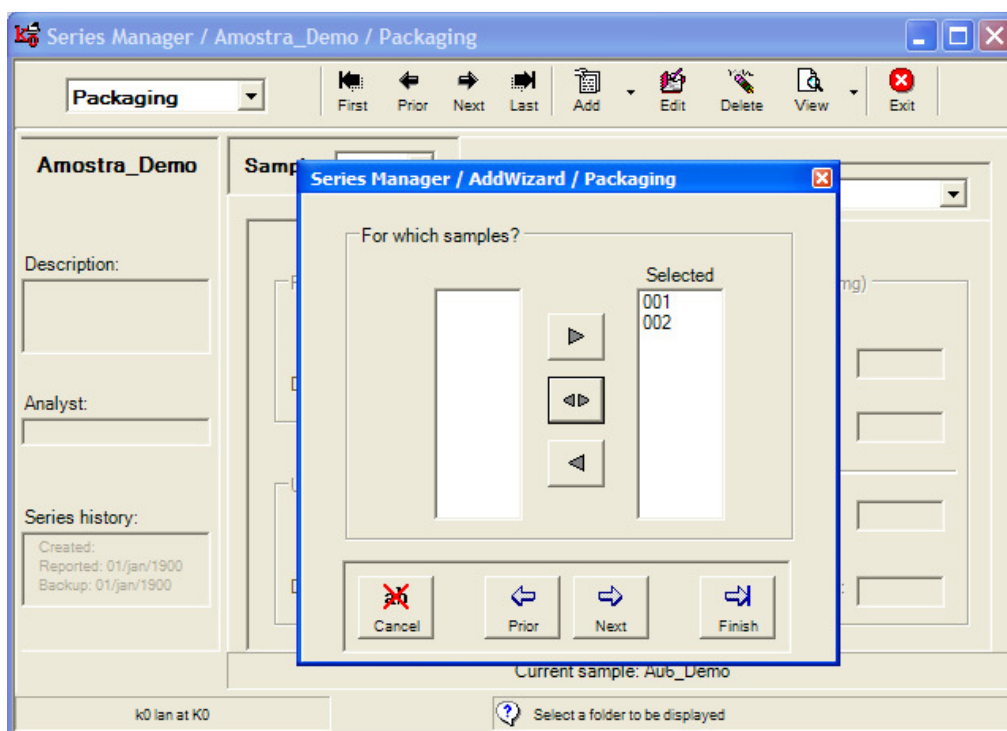


Figura C.14 – Selecionar os itens desejados.

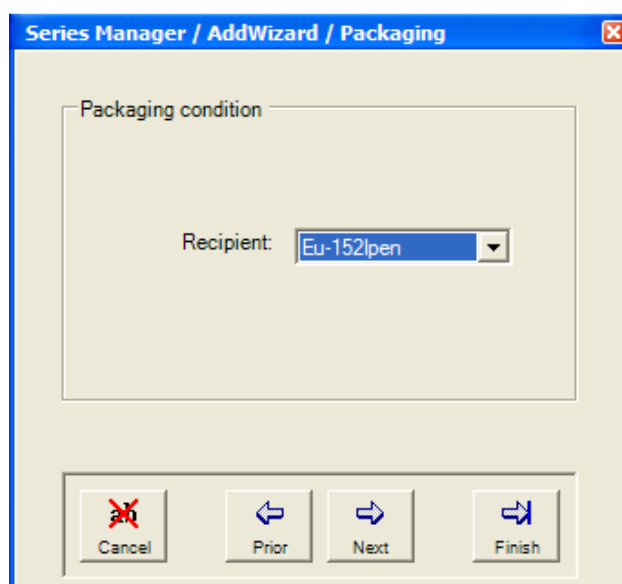


Figura C.15 – Selecionar o recipiente desejado (cadastrado anteriormente).

Series Manager / AddWizard / Packaging

Packaging

Packaging Date: 22/abr/2011

Packaging Time: 12:00:00

Cancel Prior Next Finish

Figura C.16 – Inserir data e horário da preparação das amostras.

Series Manager / AddWizard / Packaging

Unpackaging

Unpackaging Date: 22/abr/2013

Unpackaging Time: 12:00:00

Cancel Prior Next Finish

Figura C.17 – Inserir data e horário da validade das amostras.

Series Manager / AddWizard / Packaging

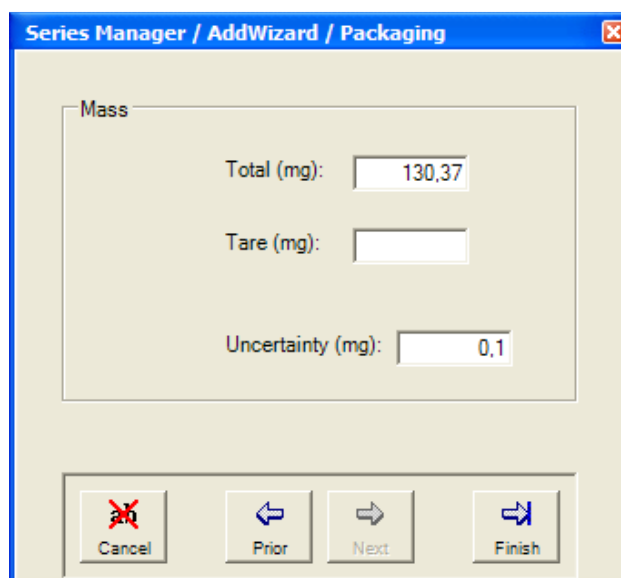
Filling

Height (mm): 1

Uncertainty (mm):

Cancel Prior Next Finish

Figura C.18 – Inserir a altura da amostra.



Series Manager / AddWizard / Packaging

Mass

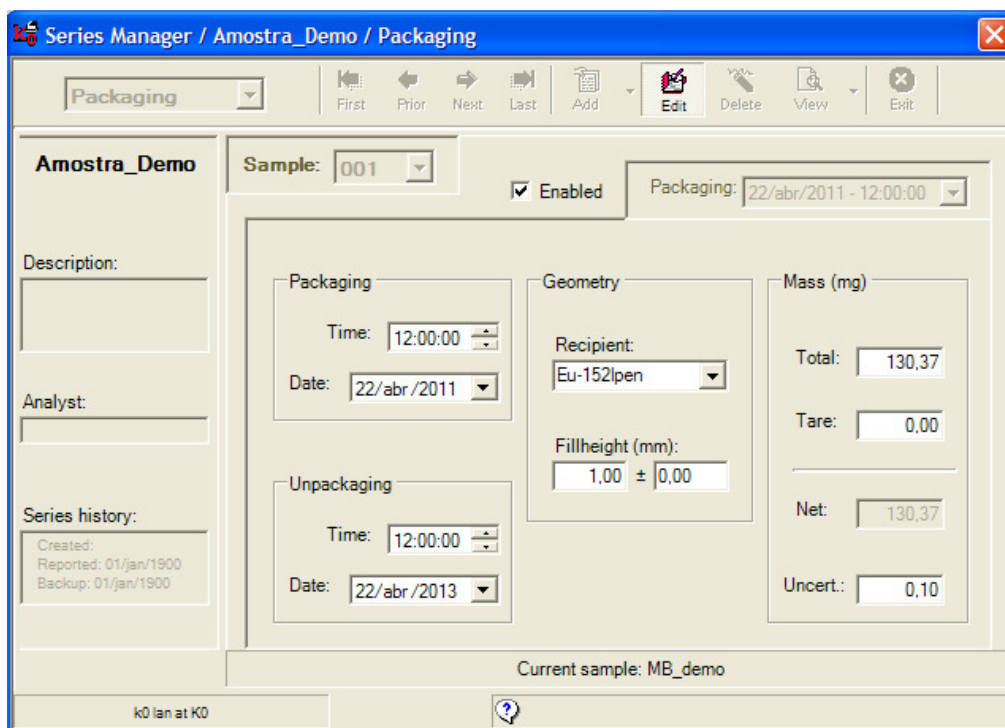
Total (mg): 130,37

Tare (mg):

Uncertainty (mg): 0,1

Cancel Prior Next Finish

Figura C.19 – Inserir a massa da amostra e clicar em *Finish*.



Series Manager / Amostra_Demo / Packaging

Packaging

First Prior Next Last Add Edit Delete View Exit

Amostra_Demo

Sample: 001

Enabled

Packaging: 22/abr/2011 - 12:00:00

Description:

Analyst:

Series history:

Created: 01/jan/1900
Reported: 01/jan/1900
Backup: 01/jan/1900

Packaging

Time: 12:00:00

Date: 22/abr/2011

Unpackaging

Time: 12:00:00

Date: 22/abr/2013

Geometry

Recipient: Eu-152lpn

Fillheight (mm): 1,00 ± 0,00

Mass (mg)

Total: 130,37

Tare: 0,00

Net: 130,37

Uncert.: 0,10

Current sample: MB_demo

k0 lan at K0

Figura C.20 – Em **Packaging**, **Sample:001**. Selecionar cada item e editar se necessário.

Series Manager / Amostra_Demo / Packaging

Packaging

First Prior Next Last Add Edit Delete View Exit

Amostra_Demo

Sample: 002

Enabled

Packaging: 22/abr/2011 - 12:00:00

Description:

Analyst:

Series history:

Created: 01/jan/1900
Reported: 01/jan/1900
Backup: 01/jan/1900

Packaging

Time: 12:00:00
Date: 22/abr/2011

Geometry

Recipient: Al-0,1%Au_1mm
Fillheight (mm): 1,00 ± 0,00

Mass (mg)

Total: 7,42
Tare: 0,00
Net: 130,37
Uncert.: 0,10

Unpackaging

Time: 12:00:00
Date: 22/abr/2013

Current sample: Au6_Demo

k0 lan at K0

Total mass (sample+recipient) of sample (mg)

Figura C.21 – Em **Packaging**, **Sample:002**. Selecionar cada item e editar se necessário.

Series Manager / Amostra_Demo / Packaging

Packaging

First Prior Next Last Add Edit Delete View Exit

Amostra_Demo

Sample: 002

Enabled

Packaging: 22/abr/2011 - 12:00:00

Description:

Analyst:

Series history:

Created: 01/jan/1900
Reported: 01/jan/1900
Backup: 01/jan/1900

Packaging

Time: 12:00:00
Date: 22/abr/2011

Geometry

Recipient: Al-0,1%Au_1mm
Fillheight (mm): 1,00 ± 0,00

Mass (mg)

Total: 7,42
Tare: 0,00
Net: 7,42
Uncert.: 0,10

Unpackaging

Time: 12:00:00
Date: 22/abr/2013

Current sample: Au6_Demo

k0 lan at K0

Select a folder to be displayed

Figura C.22 – Selecionar **Measurement** → **Add**.

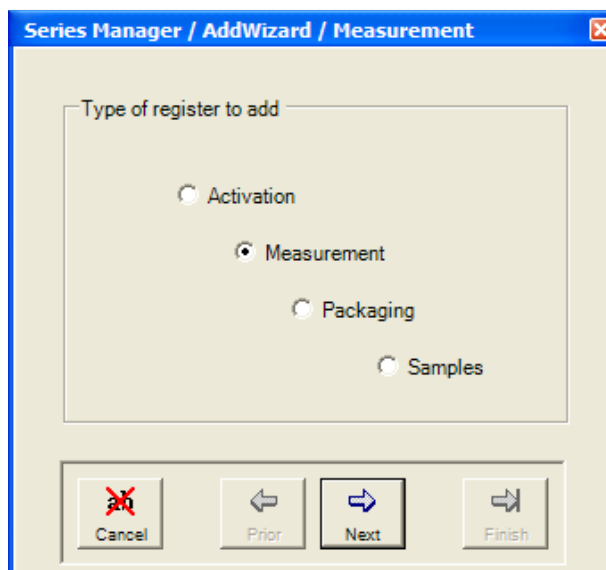


Figura C.23 – Selecionar *Measurement*.

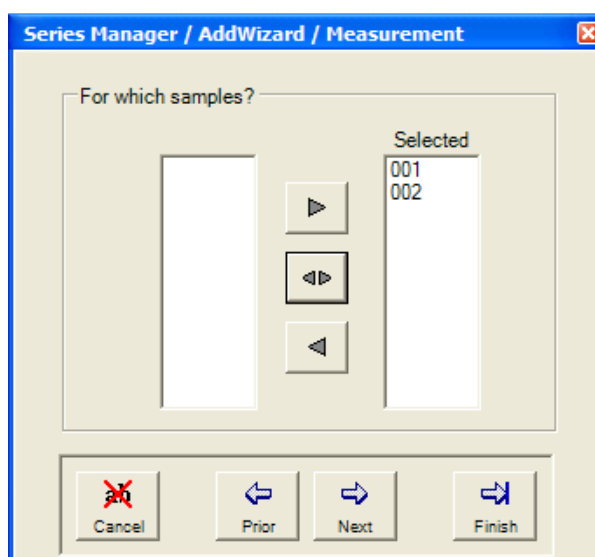


Figura C.24 – Selecionar todos os itens desejados.

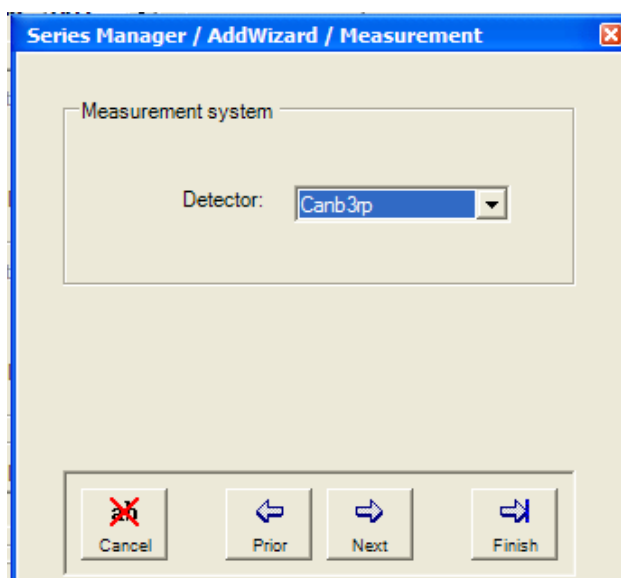


Figura C.25 – Selecionar o detector onde foram feitas as medições das fontes.

Series Manager / AddWizard / Measurement

Measurement

Start Date: 22/abr/2013

Start Time: 12:00:00

Cancel Prior Next Finish

Figura C.26 – Não é necessário introduzir manualmente data e horário, pois o programa lê automaticamente dos arquivos.

Series Manager / AddWizard / Measurement

Measurement

Stop Date: 22/abr/2013

Stop Time: 12:00:00

Cancel Prior Next Finish

Figura C.27 - Não é necessário introduzir manualmente data e horário, pois o programa lê automaticamente dos arquivos.

Series Manager / AddWizard / Measurement

Position of sample

Distance (mm): 94,8

Uncertainty (mm): 0,05

Orientation: Normal

Cancel Prior Next Finish

Figura C.28 – Distância da posição de contagem até o detector.

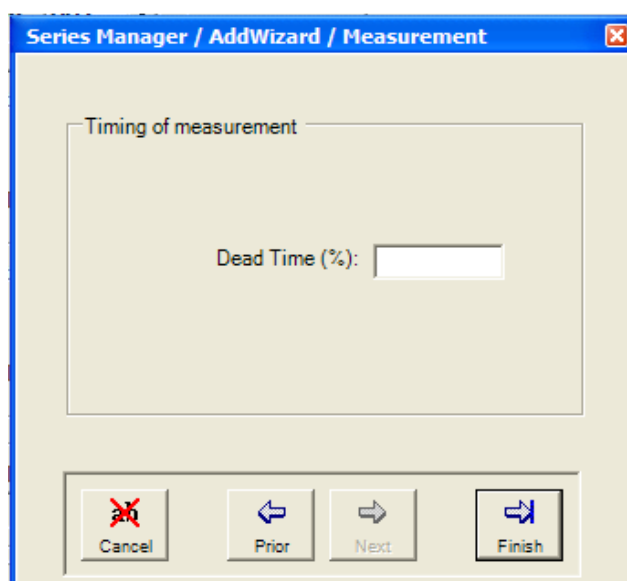


Figura C.29 – Não é necessário inserir manualmente o tempo morto, pois o programa lê automaticamente do arquivo. Clicar em *Finish*.

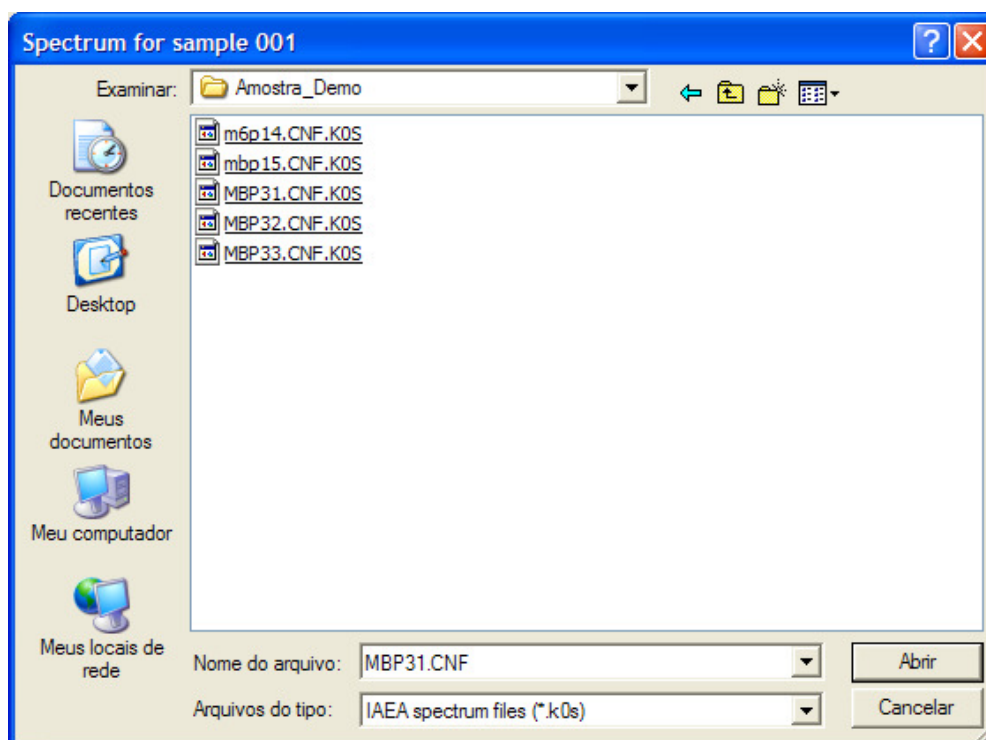


Figura C.30 – Inserir os arquivos copiados na pasta referente ao trabalho.

The screenshot shows the 'Series Manager / Amostra_Demo / Measurement' window. The 'Sample' dropdown is set to '001'. The 'Measurement' dropdown is set to '22/abr/2013 - 12:00:00'. The 'Start' section shows 'Time: 12:00:00' and 'Date: 22/abr/2013'. The 'Stop' section shows 'Time: 12:00:00' and 'Date: 22/abr/2013'. The 'Distance (mm)' is '94,8 ± 0,1' and 'Orientation' is 'Normal'. The 'Spectrum filename' is 'C:\k0_IAEA\Amostra_Demo\MBP31.CNF.K'. The 'Peak areas filename' is empty. The 'Detector' is 'Canb3p' and 'Dead Time (%)' is '0,00'. The 'Current sample' is 'MB_demo'. The 'Series history' shows 'Created: 01/jan/1900', 'Reported: 01/jan/1900', and 'Backup: 01/jan/1900'. The status bar shows 'k0 lan at K0' and a 'Browse to find file' button.

Figura C.31 – Selecionar **Measurement** → **Sample: 001** → **Edit** → **Spectrum filename** selecione o espectro a ser analisado. Depois clicar em **Edit** novamente.

The screenshot shows the 'Series Manager / Amostra_Demo / Measurement' window. The 'Sample' dropdown is set to '002'. The 'Measurement' dropdown is set to '22/abr/2013 - 12:00:00'. The 'Start' section shows 'Time: 12:00:00' and 'Date: 22/abr/2013'. The 'Stop' section shows 'Time: 12:00:00' and 'Date: 22/abr/2013'. The 'Distance (mm)' is '94,8 ± 0,1' and 'Orientation' is 'Normal'. The 'Spectrum filename' is 'C:\k0_IAEA\Amostra_Demo\m6p14.CNF.K'. The 'Peak areas filename' is empty. The 'Detector' is 'Canb3p' and 'Dead Time (%)' is '0,00'. The 'Current sample' is 'Au6_Demo'. The 'Series history' shows 'Created: 01/jan/1900', 'Reported: 01/jan/1900', and 'Backup: 01/jan/1900'. The status bar shows 'k0 lan at K0' and a 'Browse to find file' button.

Figura C.32 – Selecionar **Measurement** → **Sample: 002** → **Edit** → **Spectrum filename** selecione o espectro a ser analisado. Depois clicar em **Edit** novamente.

Series Manager / Amostra_Demo / Measurement

Measurement

First Prior Next Last Add Edit Delete View Exit

Amostra_Demo

Sample: 001

Enabled

Add new information

Measurement: 22/abr/2013 - 12:00:00

Start

Time: 12:00:00

Date: 22/abr/2013

Distance (mm): 94,8 ± 0,1

Orientation: Normal

Stop

Time: 12:00:00

Date: 22/abr/2013

Spectrum filename: C:\k0_IAEA\...\MBP31.CNF.K0S

Peak areas filename:

Detector: Canb3p

Timing

Dead Time (%): 0,00

Current sample: MB_demo

Series history:

Created: 01/jan/1900
Reported: 01/jan/1900
Backup: 01/jan/1900

k0 lan at K0

Select a folder to be displayed

Figura C.33 – Como na *Sample:001* foram realizadas quatro séries de contagens, temos que repetir o procedimento para as demais. Selecionar **Measurement** → **Add**.

Series Manager / AddWizard / Measurement

Type of register to add

Activation

Measurement

Packaging

Samples

Cancel Prior Next Finish

Figura C.34 – Selecionar *Measurement*.

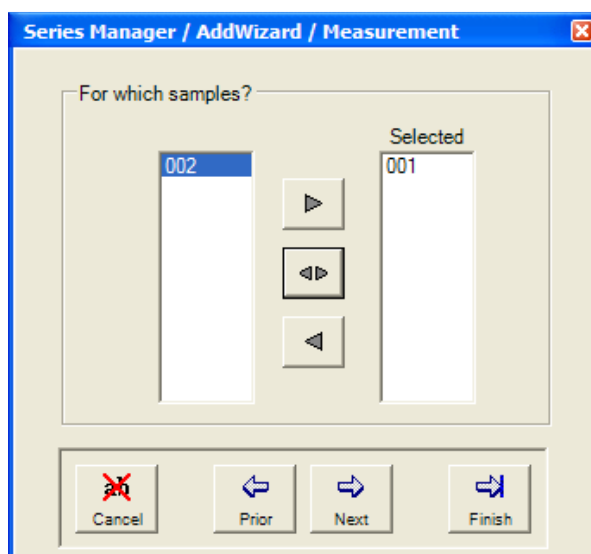


Figura C.35 – Selecionar somente a *Sample 001*.

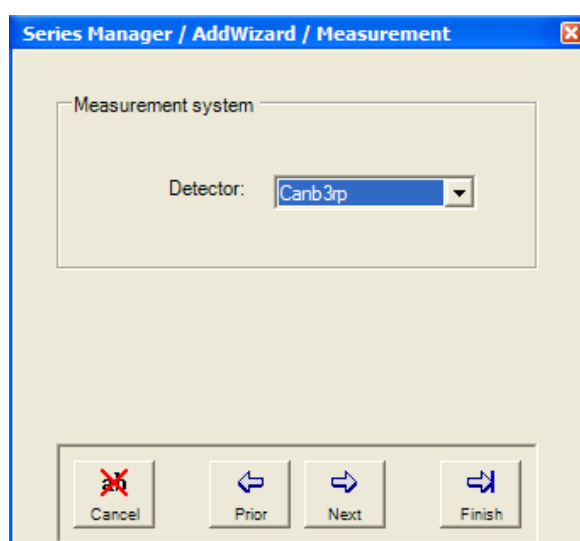


Figura C.36 – Selecionar o detector onde foram feitas as contagens das fontes.

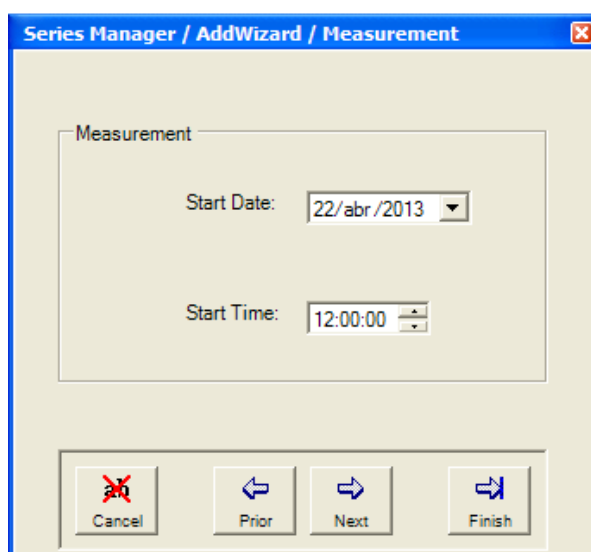


Figura C.37 – Não é necessário introduzir data e horário, pois o programa lê automaticamente do arquivo.

Series Manager / AddWizard / Measurement

Measurement

Stop Date: 22/abr/2013

Stop Time: 12:00:00

Cancel Prior Next Finish

Figura C.38 – Não é necessário introduzir data e horário, pois o programa lê automaticamente do arquivo.

Series Manager / AddWizard / Measurement

Position of sample

Distance (mm): 94,8

Uncertainty (mm): 0,05

Orientation: Normal

Cancel Prior Next Finish

Figura C.39 – Inserir a distância da posição de contagem até o cristal do detector.

Series Manager / AddWizard / Measurement

Timing of measurement

Dead Time (%):

Cancel Prior Next Finish

Figura C.40 - Não é necessário inserir manualmente o tempo morto, pois o programa lê automaticamente do arquivo. Clicar em *Finish*.

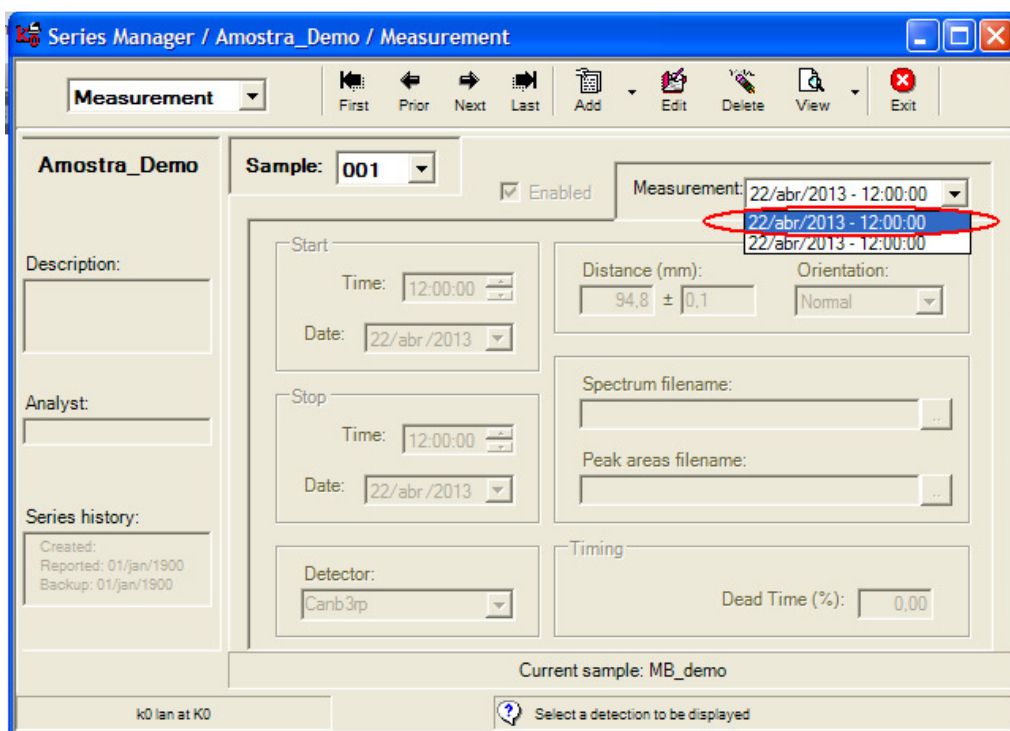


Figura C.41 - Selecionar **Measurement** → **Sample: 001** → **Edit** → **Spectrum filename** seleccione o espectro a ser analisado. Depois clicar em **Edit** novamente. Pronto feito isso você selecionou o segundo espectro, agora repetir o procedimento das FIG. C.33 a C.40 para os demais espectros.

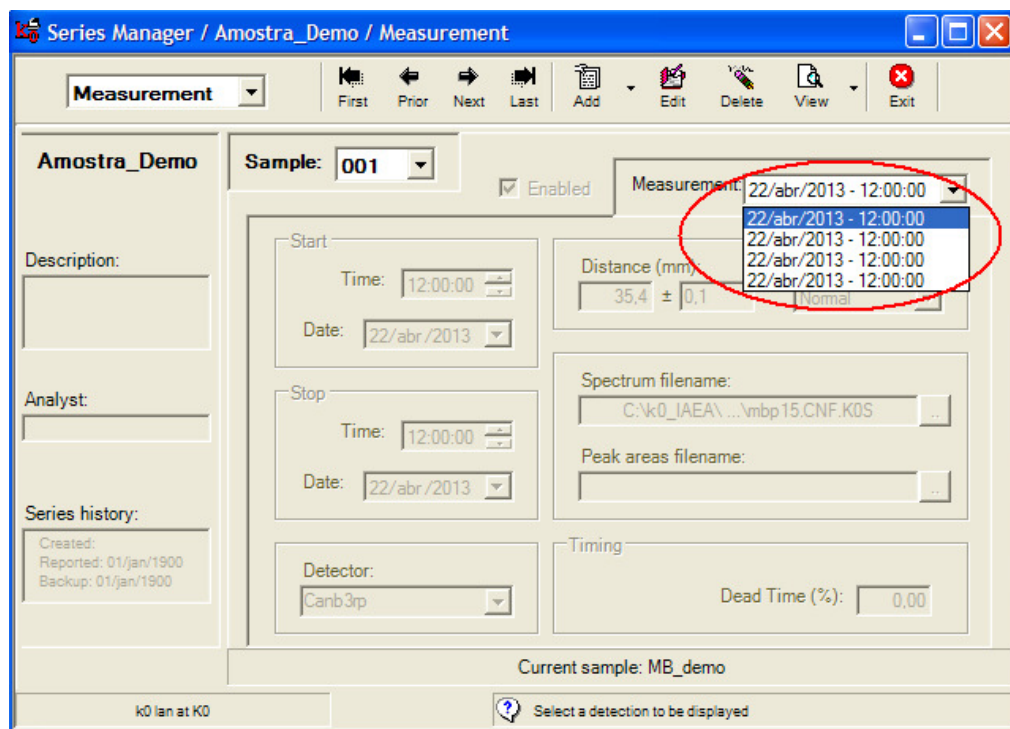


Figura C.42 – Ao término do último espectro, em **Measurement**: deverão aparecer os quatro espectros.

Series Manager / Amostra_Demo / Activation

Activation

First Prior Next Last Add Edit Delete View Exit

Amostra_Demo

Sample: 001

Add new information

☐ Enabled Activation: [dropdown]

Description:

Analyst:

Series history:

Created: Reported: 01/jan/1900 Backup: 01/jan/1900

Start Time: [text] Date: [text]

Stop Time: [text] Date: [text]

Irradiation facility: [dropdown]

Thermal flux (m-2 s-1): [text] ± [text]

Thermal/Epithelial ratio: [text] ± [text]

Alpha: [text] ± [text]

Fast flux (m-2 s-1): [text] ± [text]

Temperature (K): [text] ± [text]

Position

Rabbit: [text]

Col: [text]

Row: [text]

Current sample: MB_demo

k0 lan at K0

Select a folder to be displayed

Figura C.43 – Selecionar **Activation** → **Add**.

Series Manager / AddWizard / Activation

Type of register to add

☒ Activation

☐ Measurement

☐ Packaging

☐ Samples

Cancel Prior Next Finish

Figura C.44 – Selecionar *Activation*.

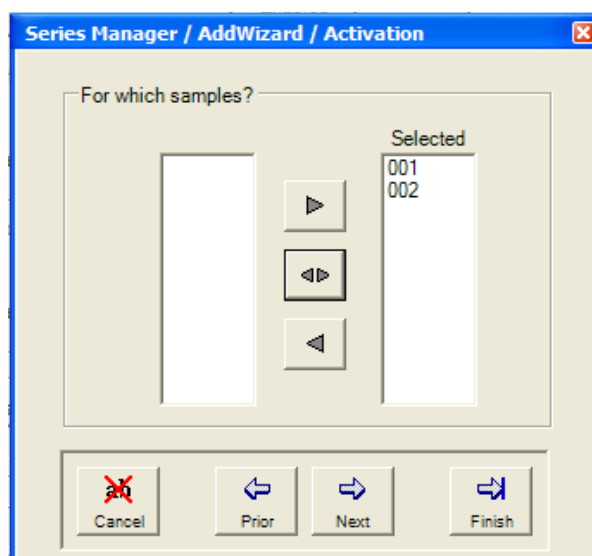


Figura C.45 – Selecionar os itens desejados.

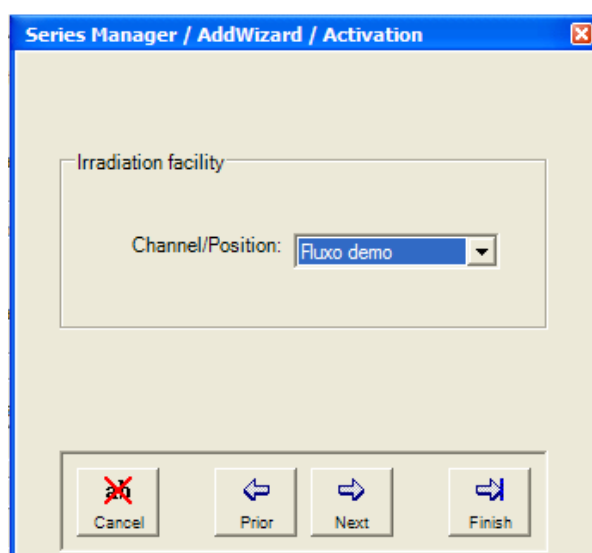


Figura C.46 – Selecionar a *Channel/Position* cadastrado anteriormente.

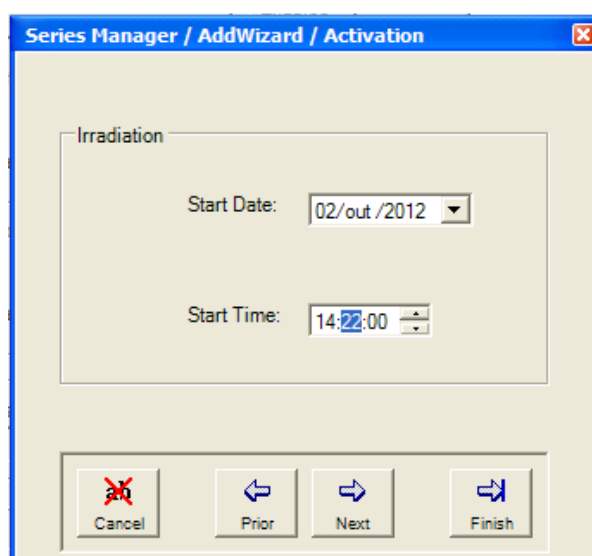


Figura C.47 – Inserir data e horário do início da irradiação.

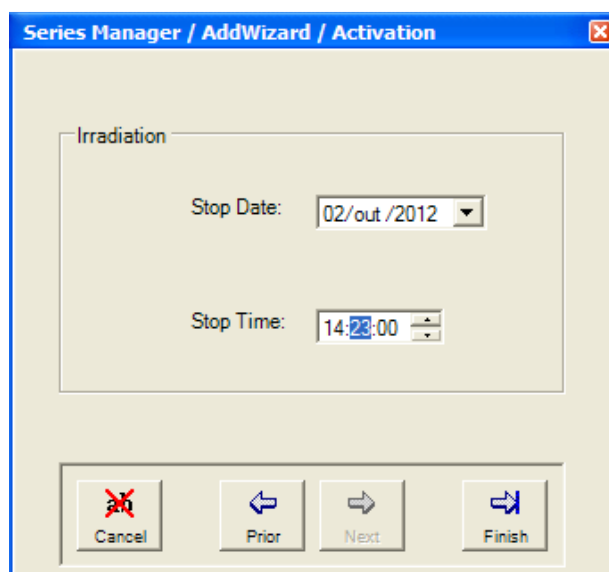


Figura C.48 – Inserir data e horário do fim da irradiação. Clicar em *Finish*.

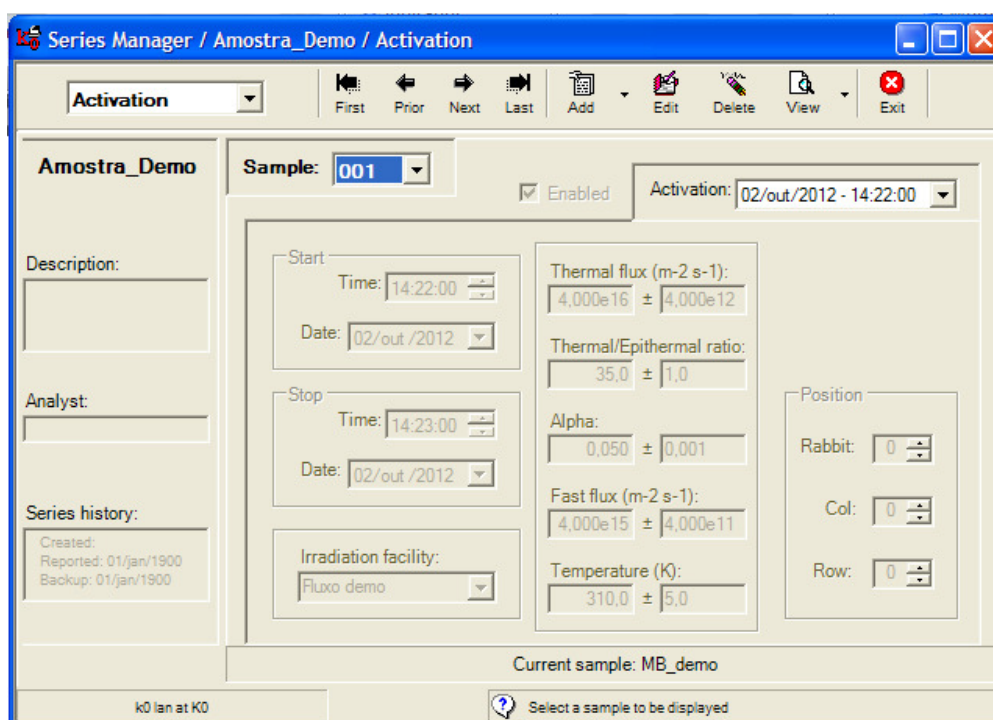


Figura C.49 – Selecionar cada amostra e editar se necessário. Clicar em **Exit** para sair.

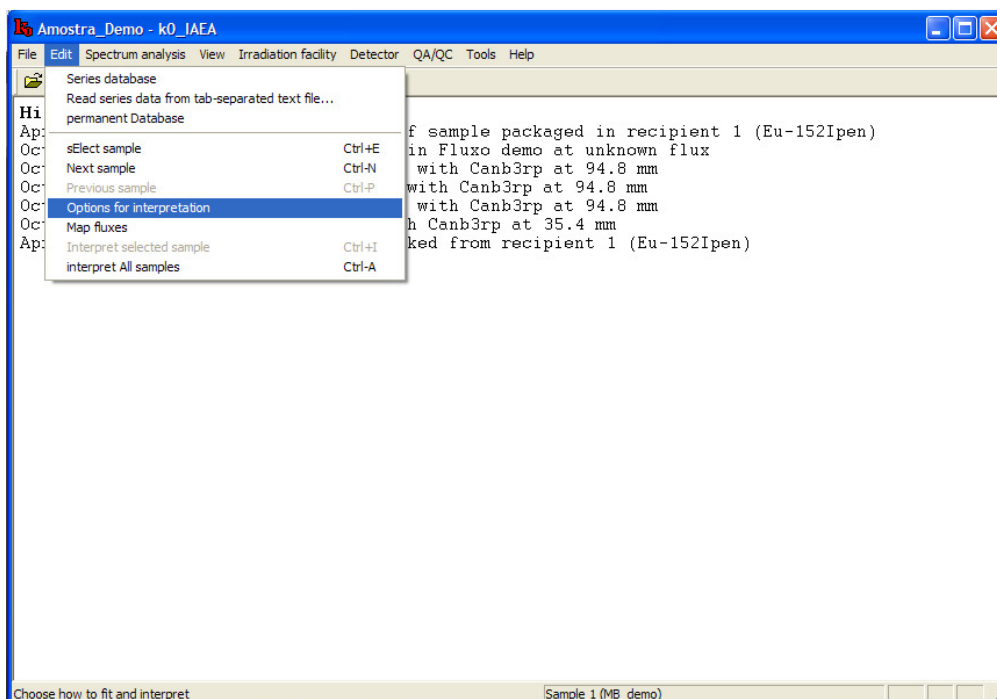


Figura C.50 – Clicar em **Edit** → **Options for interpretation**.

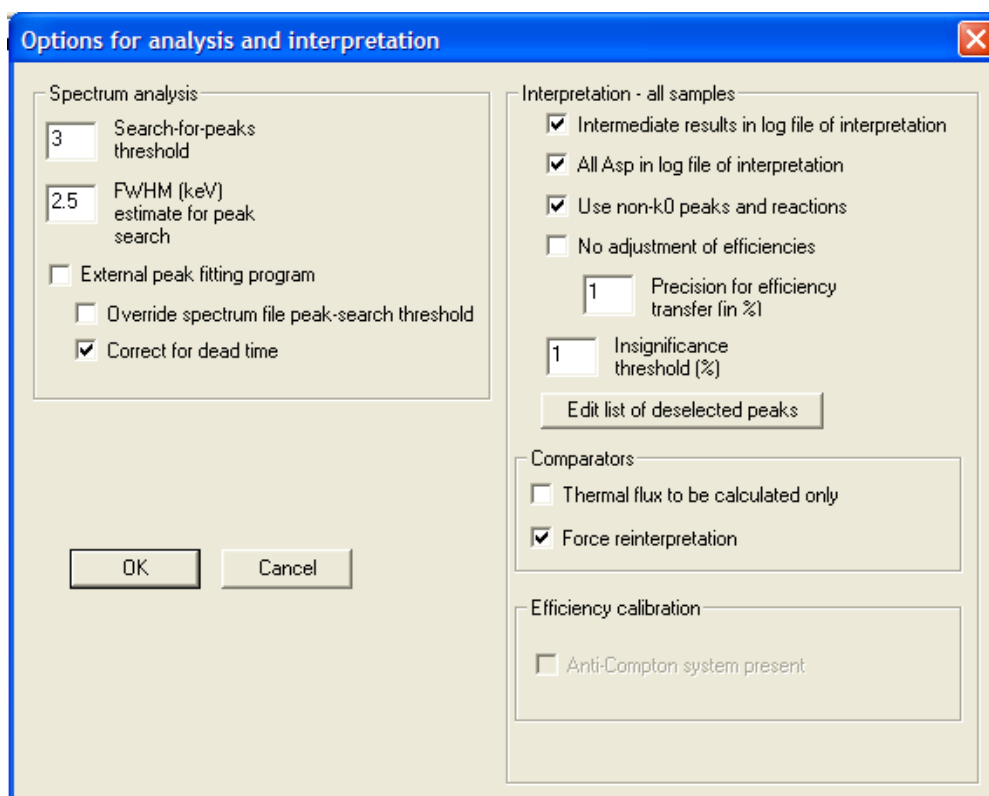


Figura C.51 – Marcar os itens.

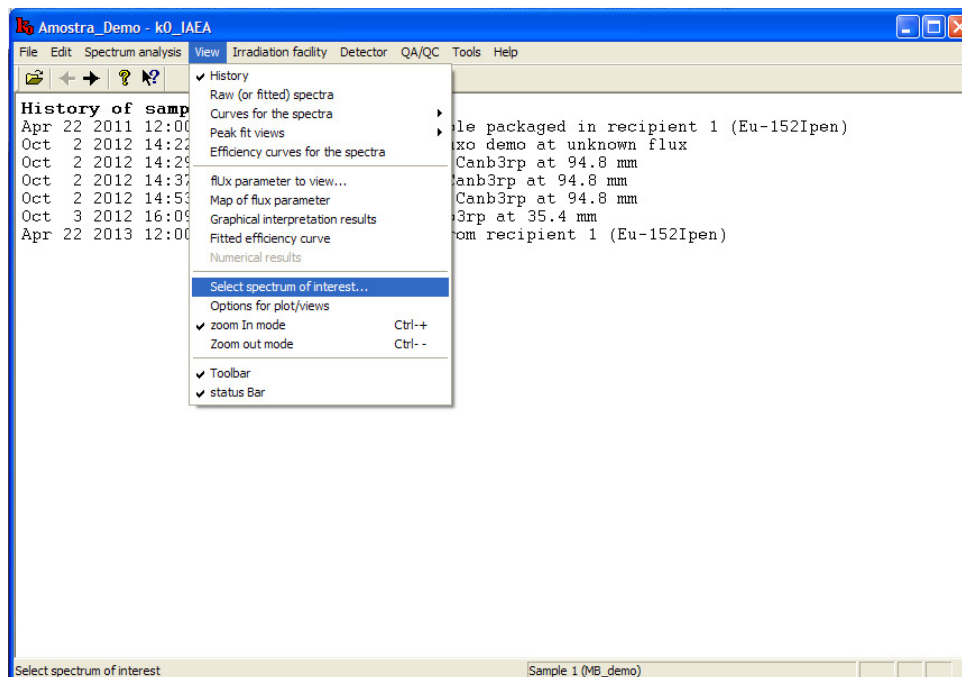


Figura C.52 – Clicar em **View** → **Select spectrum of interest...**

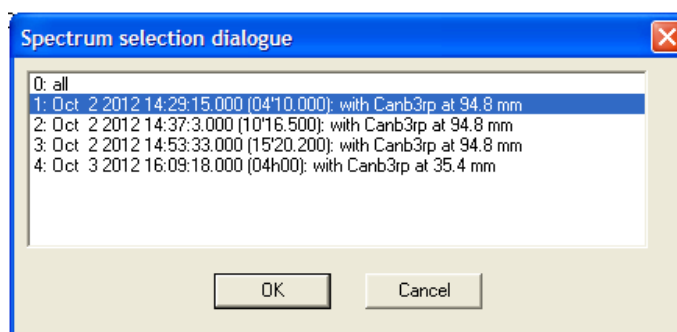


Figura C.53 – Seleção o primeiro espectro.

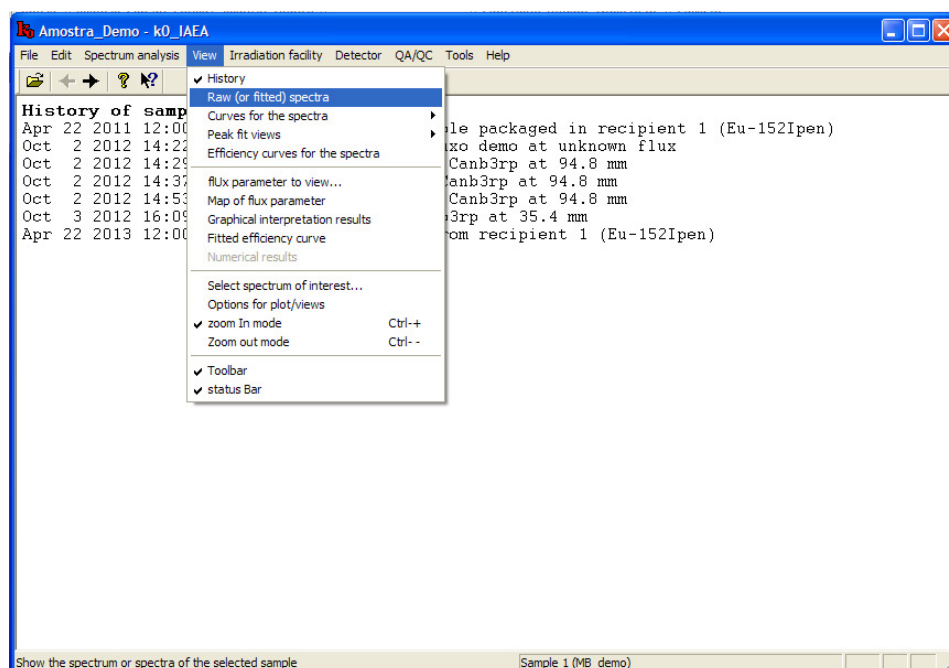


Figura C.54 – Clicar em **View** → **Raw (or fitted) spectra**.

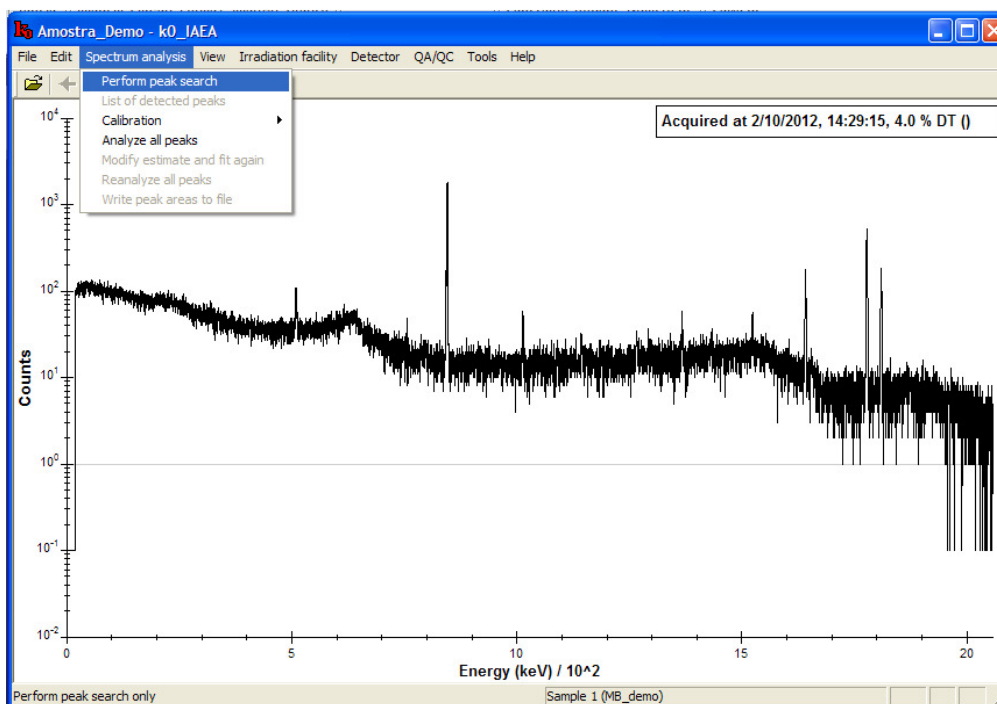


Figura C.55 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Perform peak search**.

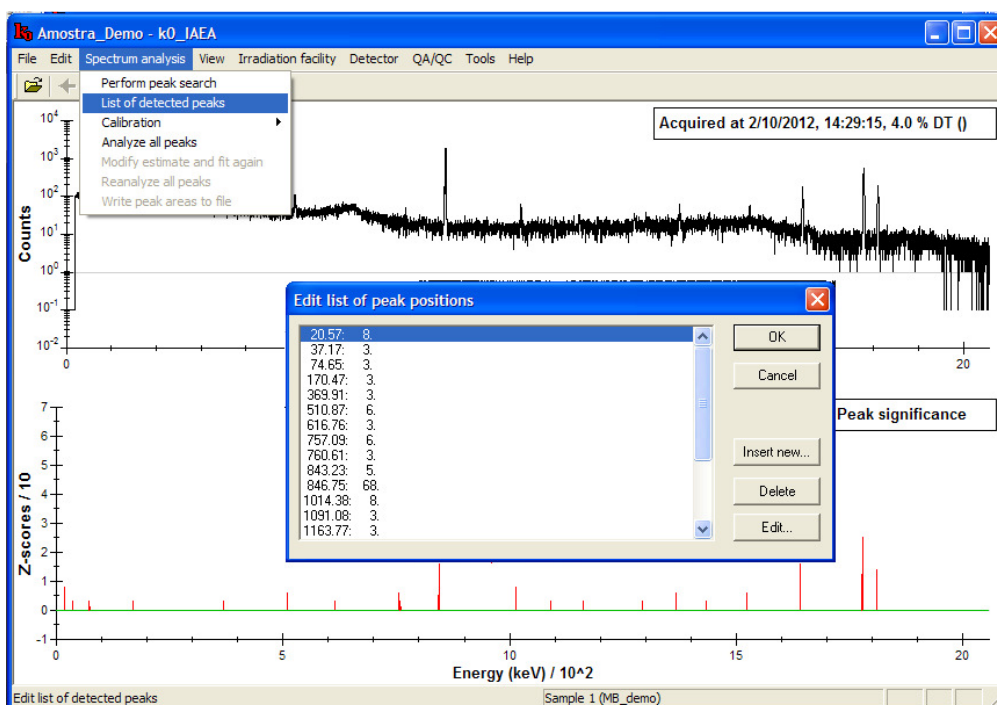


Figura C.56 – Clicar em **Spectrum analysis** → **List of detected peaks**. Apagar o primeiro pico e clicar em **OK**.

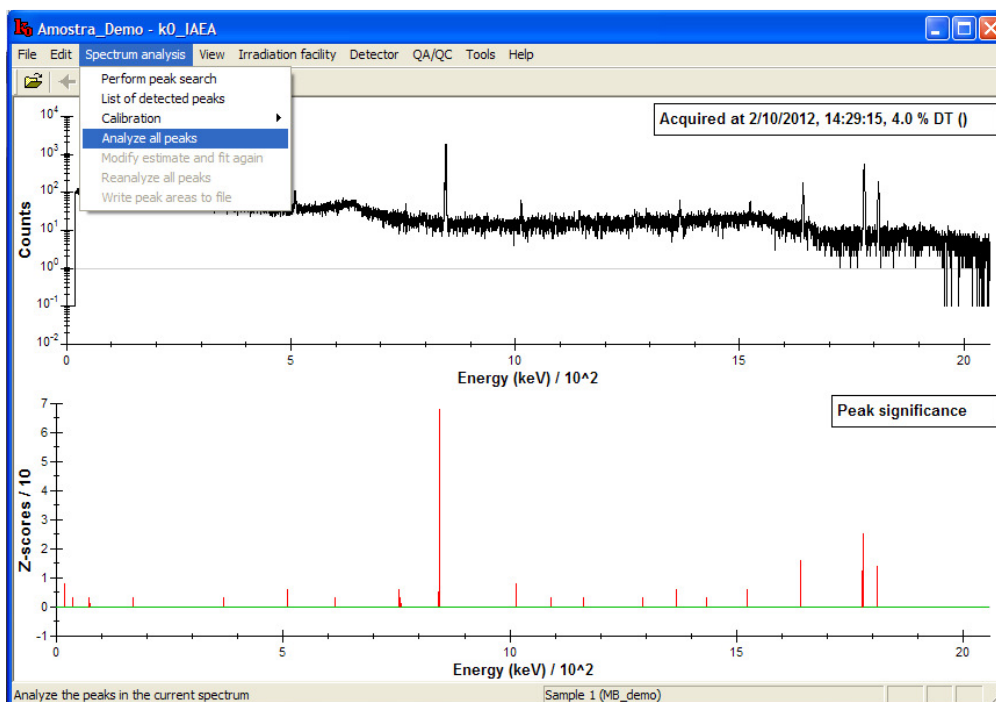


Figura C.57 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Analyze all peaks**.

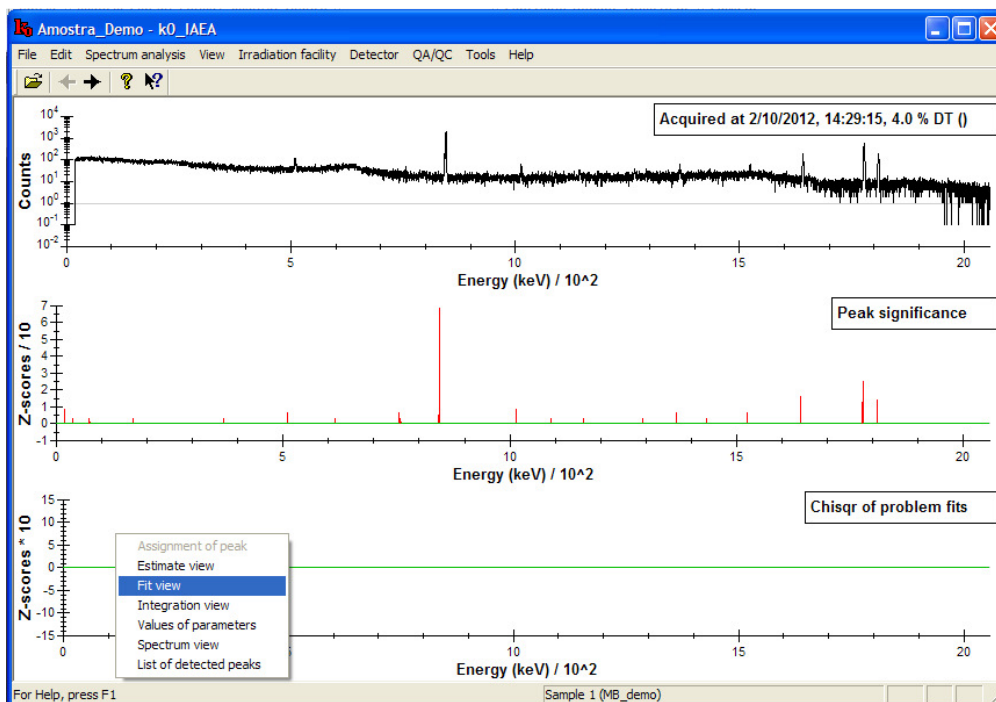


Figura C.58 – No canto inferior esquerdo da tela, clicar com o botão direito do mouse na tela. Selecionar **Fit view**.

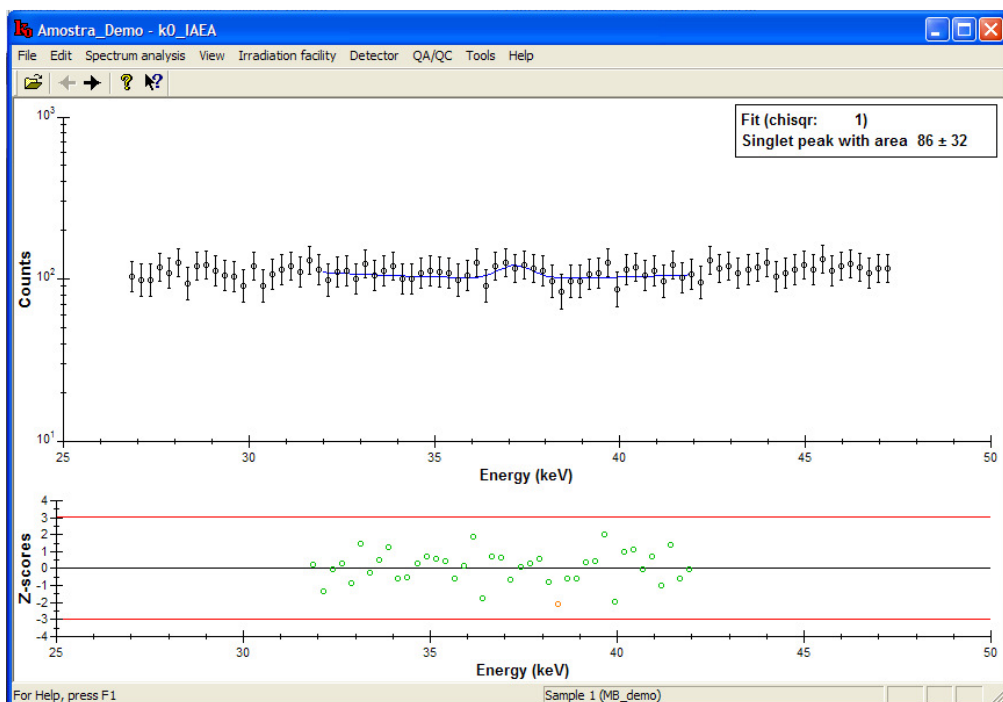


Figura C.59 - Visualize cada pico utilizando as teclas de avanço ou recuo do teclado. Existindo a necessidade de excluir, inserir ou modificar algum pico poderá ser feito aqui.

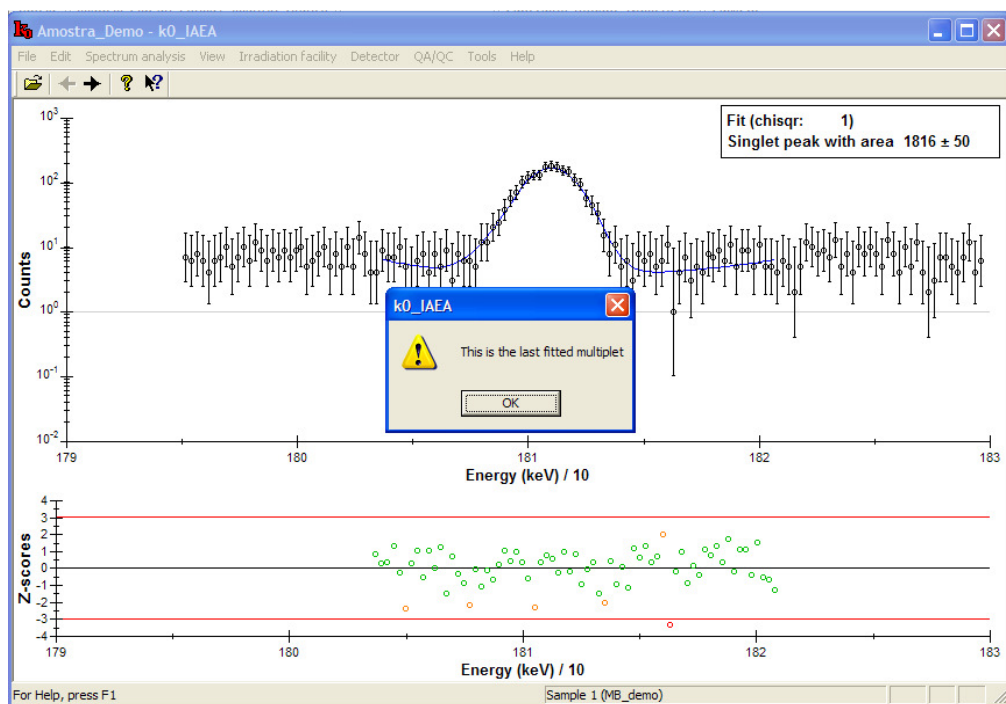


Figura C.60 – Ao término irá aparecer essa mensagem. Clicar em OK para sair.

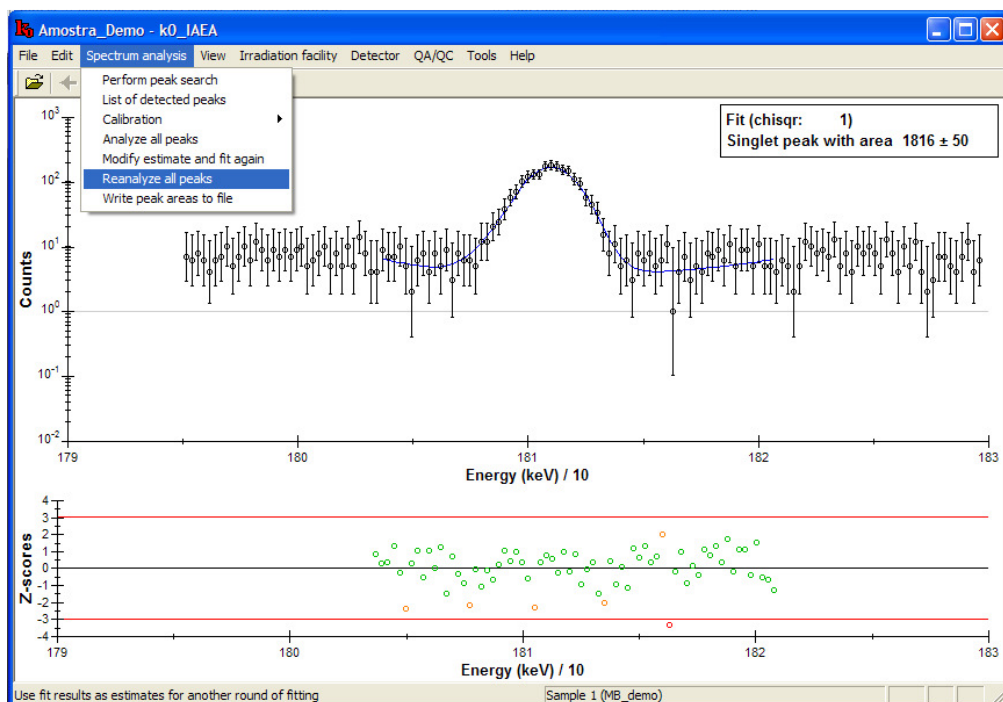


Figura C.61 – Clicar em **Spectrum analysis** → **Reanalyze all peaks**. Depois clicar em **Spectrum analysis** → **Write peak areas to file**.

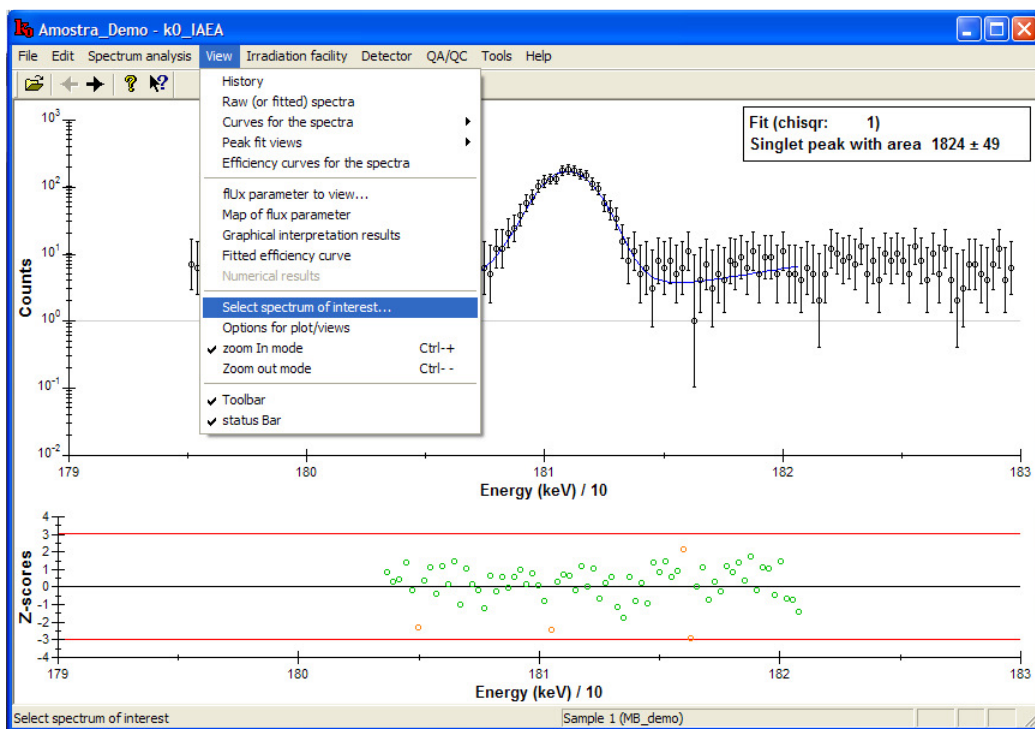


Figura C.62 – Repetir o procedimento das FIG. C.55 a B.65 para os demais espectros cadastrados.

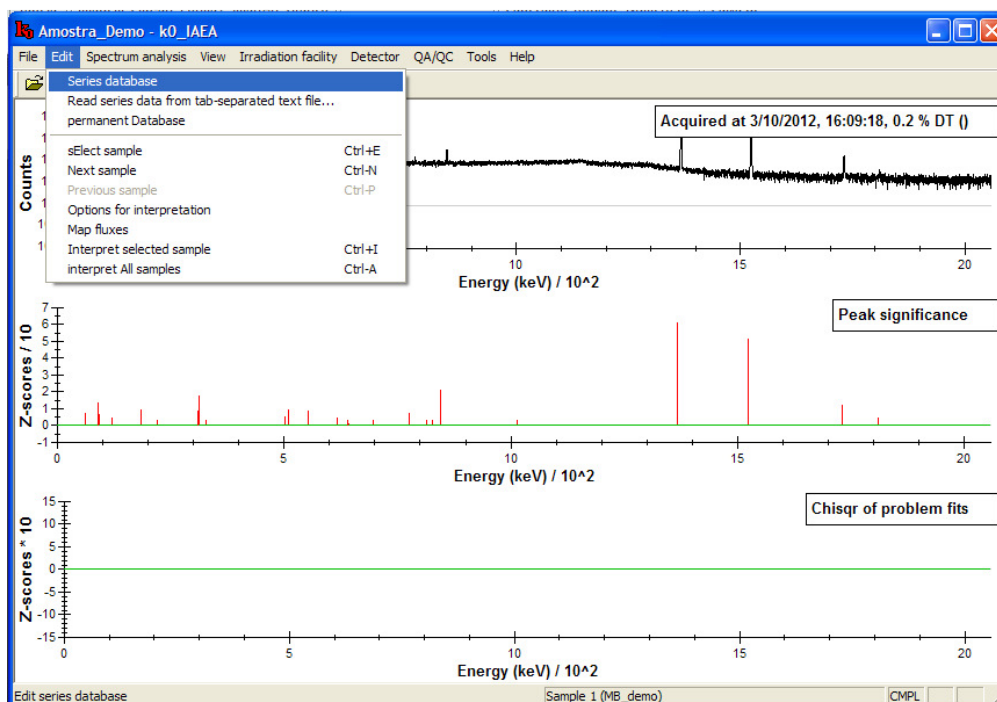


Figura C.63 – Se algum espectro não ficou adequado ou caso queira selecionar algum específico. Clicar em **Edit** → **Series database**

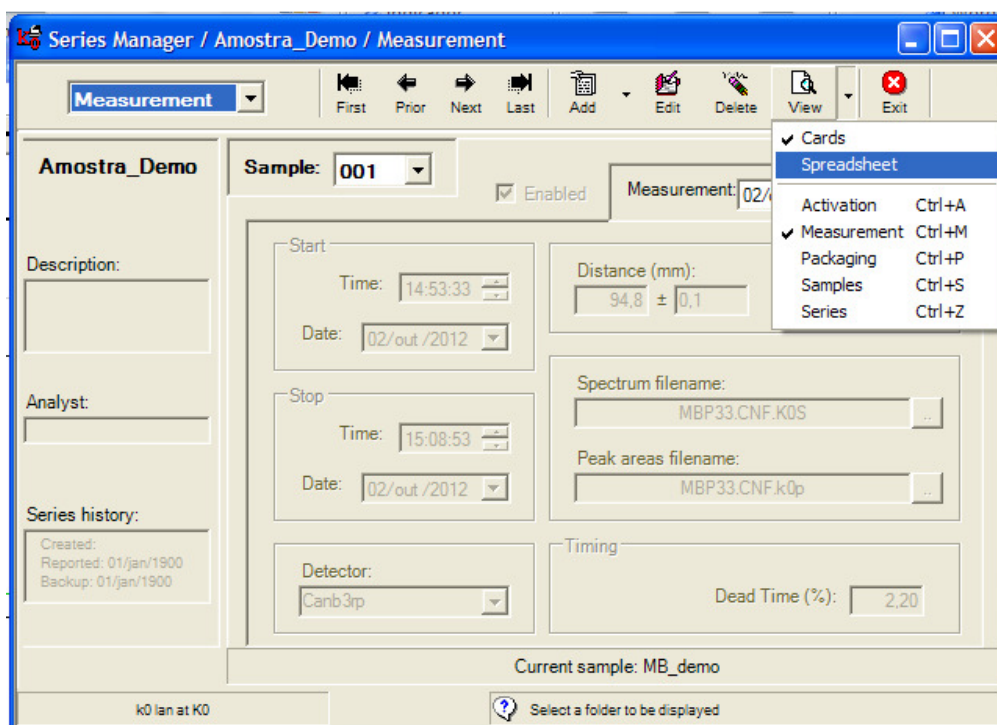


Figura C.64 - Selecionar **Measurement**. Na seta ao lado de **View** selecione **Spreadsheet**

Sample	Start		Stop		Enable	Counting	Detector
	Date	Time	Date	Time			
001	02/out/2012	14:53:33	02/out/2012	15:08:53	<input checked="" type="checkbox"/>	Canb3rp	
	02/out/2012	14:37:03	02/out/2012	14:47:19	<input checked="" type="checkbox"/>	Canb3rp	
	02/out/2012	14:29:15	02/out/2012	14:33:25	<input checked="" type="checkbox"/>	Canb3rp	
	03/out/2012	16:09:18	03/out/2012	20:09:48	<input checked="" type="checkbox"/>	Canb3rp	
002	22/abr/2013	12:00:00	22/abr/2013	12:00:00	<input checked="" type="checkbox"/>	Canb3rp	

Figura C.65 – Clicar em **Edit** e desabilite os espectros se achar necessário. Depois clicar novamente em **Edit** para sair da tela. Clicar no **Exit** para sair do **Series database**.

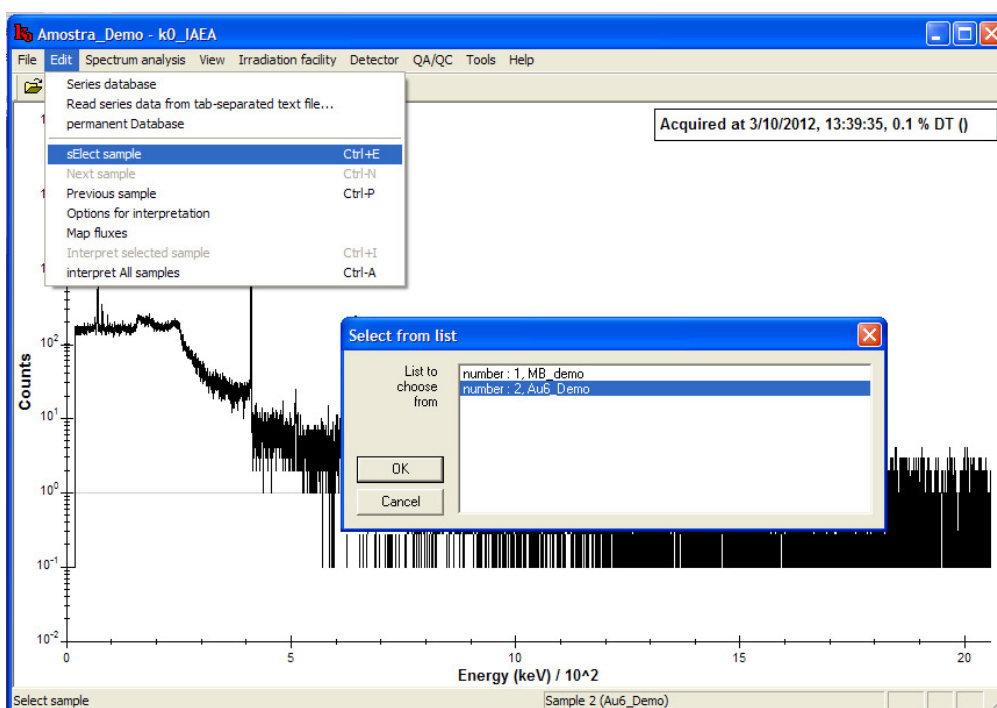


Figura C.66 – Clicar em **Edit** → **Select sample** → **number:2**.

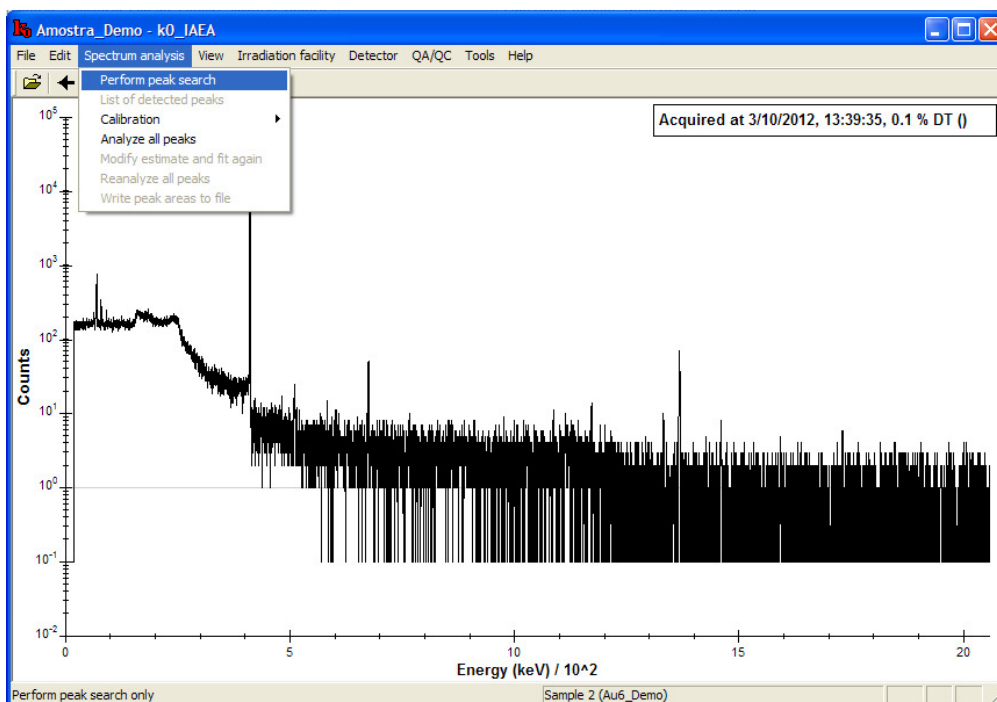


Figura C.67 – Repetir o procedimento das FIG. C.55 a C.61.

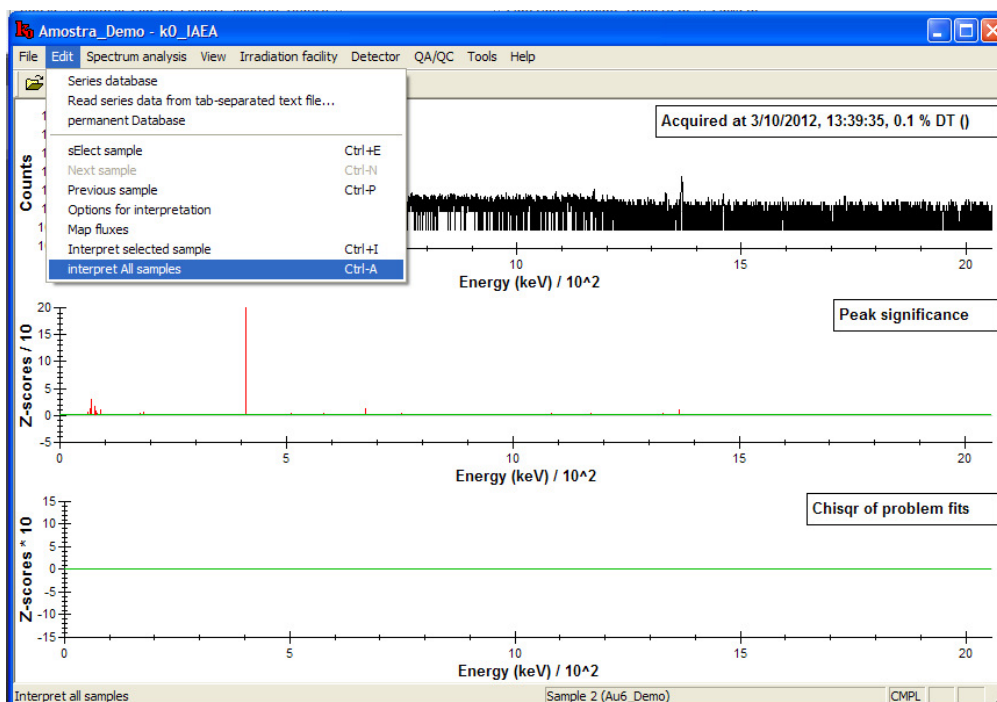


Figura C.68 – Feito o procedimento para o monitor de Au, clicar em **Edit** → **interpret All samples**.

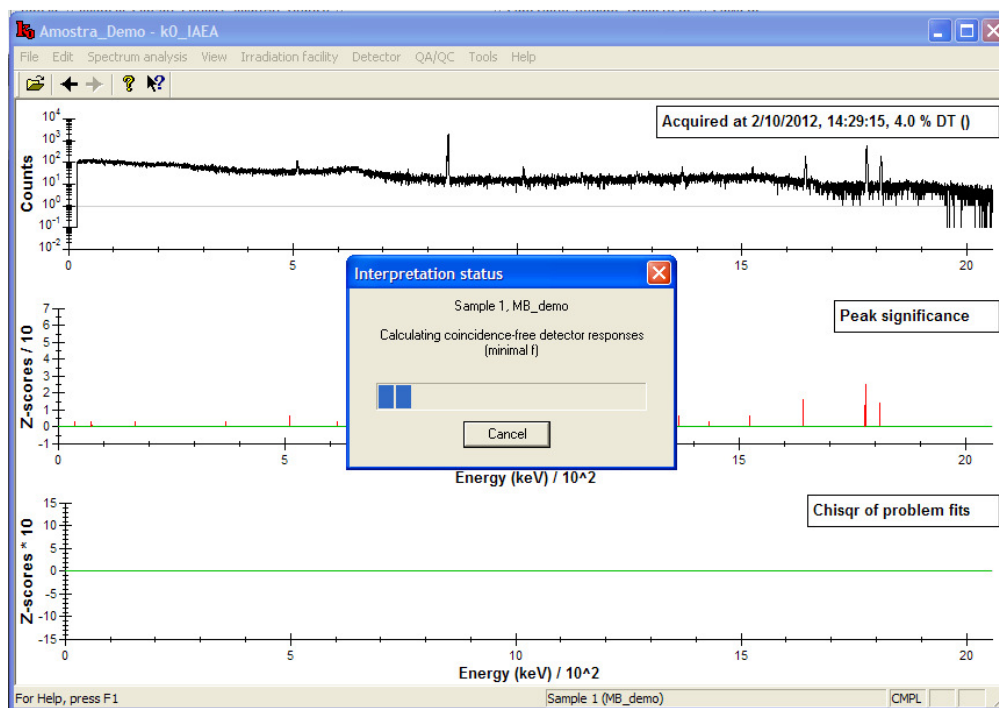


Figura C.69 – Irá aparecer essa mensagem.

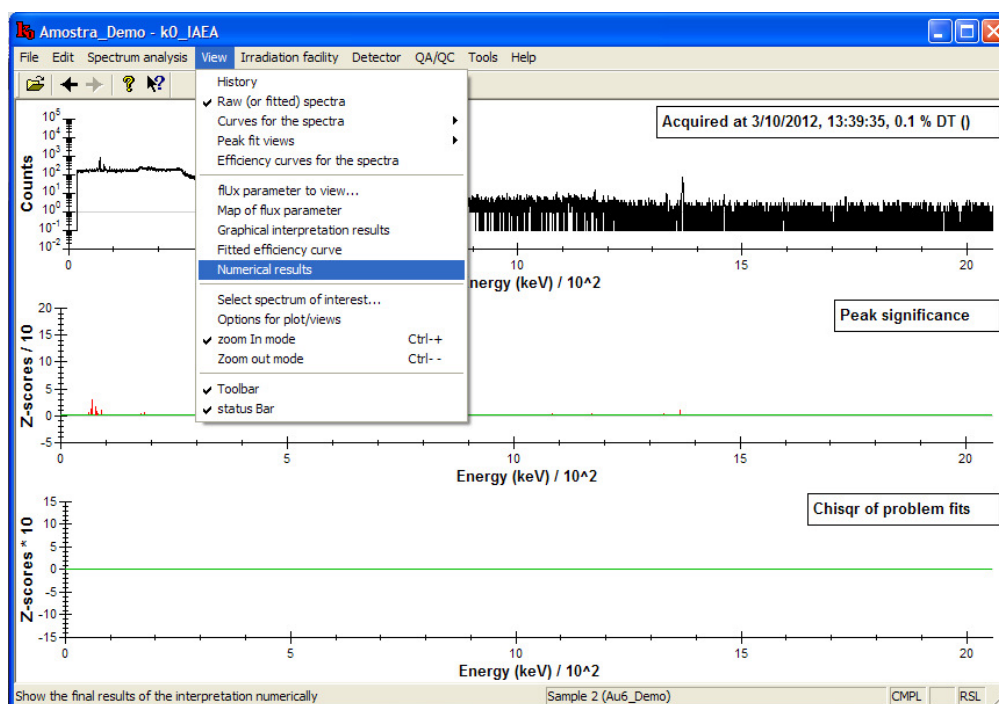
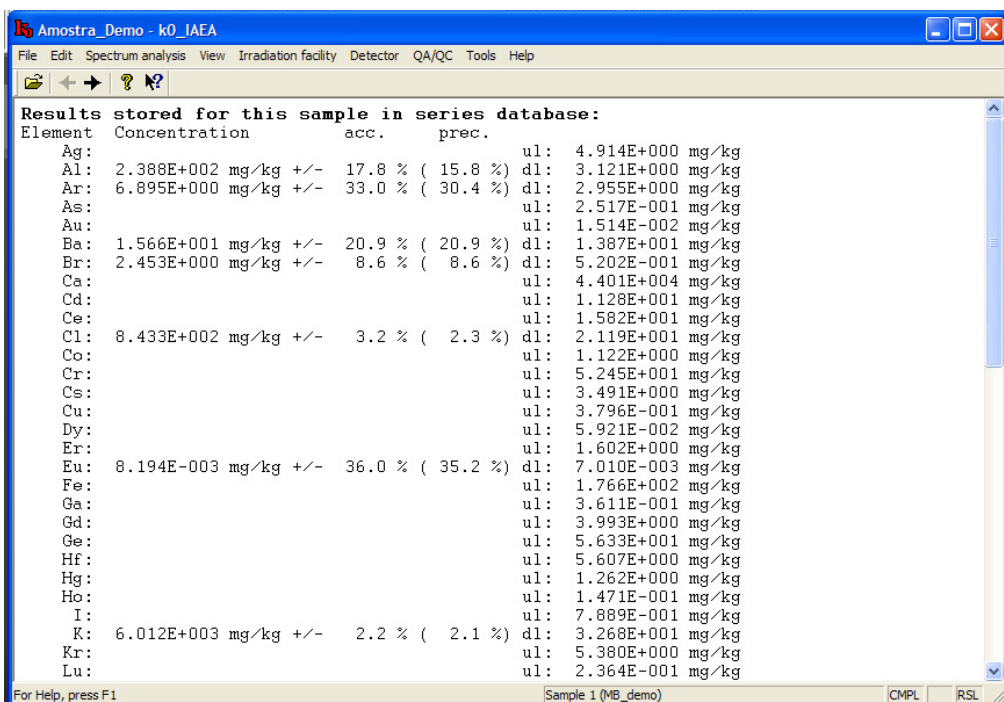


Figura C.70 – Clicar em **View** → **Numerical results**. Depois clicar em **View** → **History**.



Element	Concentration	acc.	prec.	ul:	d1:
Ag:				4.914E+000 mg/kg	
Al:	2.388E+002 mg/kg +/-	17.8 % (15.8 %)		3.121E+000 mg/kg	
Ar:	6.895E+000 mg/kg +/-	33.0 % (30.4 %)		2.955E+000 mg/kg	
As:				2.517E-001 mg/kg	
Au:				1.514E-002 mg/kg	
Ba:	1.566E+001 mg/kg +/-	20.9 % (20.9 %)		1.387E+001 mg/kg	
Br:	2.453E+000 mg/kg +/-	8.6 % (8.6 %)		5.202E-001 mg/kg	
Ca:				4.401E+004 mg/kg	
Cd:				1.128E+001 mg/kg	
Ce:				1.582E+001 mg/kg	
Cl:	8.433E+002 mg/kg +/-	3.2 % (2.3 %)		2.119E+001 mg/kg	
Co:				1.122E+000 mg/kg	
Cr:				5.245E+001 mg/kg	
Cs:				3.491E+000 mg/kg	
Cu:				3.796E-001 mg/kg	
Dy:				5.921E-002 mg/kg	
Er:				1.602E+000 mg/kg	
Eu:	8.194E-003 mg/kg +/-	36.0 % (35.2 %)		7.010E-003 mg/kg	
Fe:				1.766E+002 mg/kg	
Ga:				3.611E-001 mg/kg	
Gd:				3.993E+000 mg/kg	
Ge:				5.633E+001 mg/kg	
Hf:				5.607E+000 mg/kg	
Hg:				1.262E+000 mg/kg	
Ho:				1.471E-001 mg/kg	
I:				7.889E-001 mg/kg	
K:	6.012E+003 mg/kg +/-	2.2 % (2.1 %)		3.268E+001 mg/kg	
Kr:				5.380E+000 mg/kg	
Lu:				2.364E-001 mg/kg	

Figura C.71 – Resultado das concentrações calculadas pelo programa para os espectros selecionados.

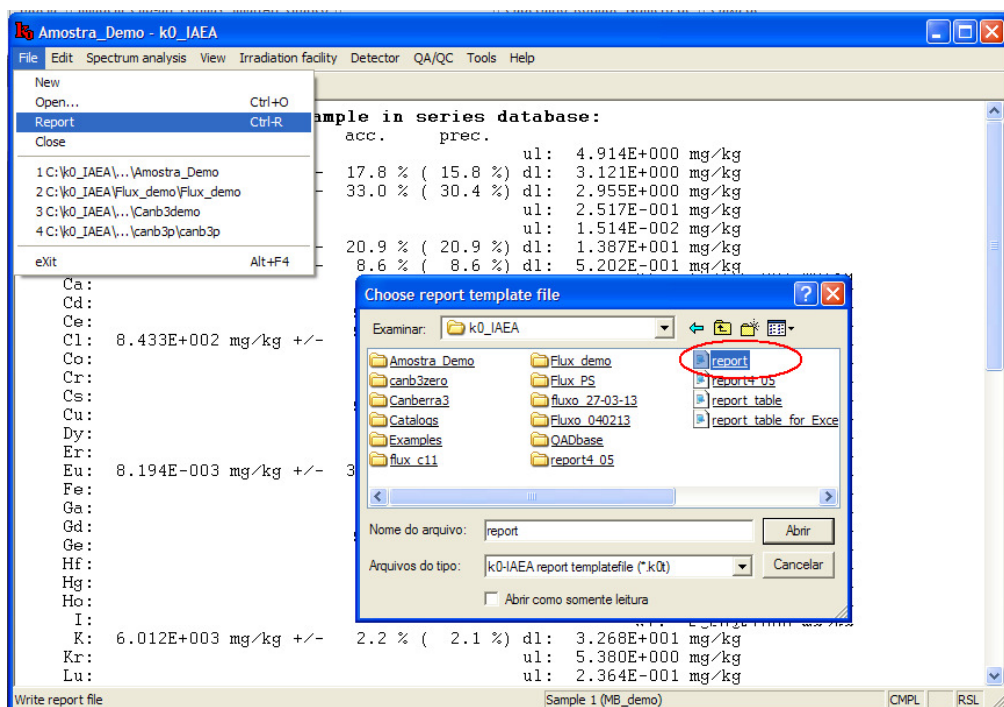


Figura C.72 – Para salvar os resultados em na extensão *.txt., clicar em **File** → **Report** → em *k0_IAEA* selecione *report*. Depois clicar em abrir.

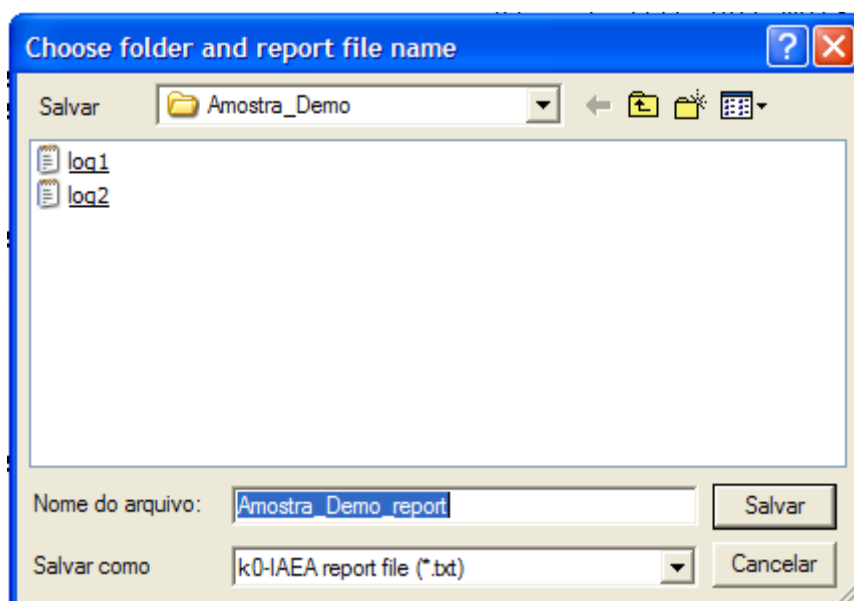


Figura C.73 – Nomear o arquivo desejado e clicar em *Salvar*.

Caso as informações apresentadas não sejam suficientes, é recomendado a leitura do manual e o estudo do tutorial.

ANEXO 2 - UTILIZAÇÃO DO PROGRAMA k_0 -IAEA

Neste *CD-ROM* contém arquivos, em formatos de vídeos, mostrando como realizar a calibração em energia e a construção da curva de eficiência do detector, o cálculo dos parâmetros de fluxo e a análise de uma amostra, utilizando o programa k_0 -IAEA.