

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia associada à Universidade de São Paulo

**ESTUDO DAS COVARIÂNCIAS ENVOLVIDAS NO MÉTODO k_0
DE ANÁLISE POR ATIVAÇÃO NEUTRÔNICA**

VANDERLEI CARDOSO

**Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área de Tecnologia
Nuclear - Aplicações.**

Orientador:

Dr. Mauro da Silva Dias

SÃO PAULO

2011

*"A esperança não murcha, ela não cansa, também como ela não sucumbe a
crença. Vão-se sonhos nas asas da descrença, voltam sonhos nas asas da
esperança."*

Augusto dos Anjos

À minha esposa, Vanessa

À minha filha, Angélica

Aos meus pais, Mário (*in memoriam*) e Darcy

AGRADECIMENTOS

Ao Dr. Mauro da Silva Dias, orientador deste trabalho, pelas sugestões, apoio, paciência e dedicação, durante o desenvolvimento desta tese;

À Dra. Marina Fallone Koskinas, pelas discussões, sugestões, ajuda no processo de medição das fontes radioativas usadas no presente trabalho e apoio durante todo o desenvolvimento do trabalho;

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, na pessoa do Superintendente Dr. Nilson Dias Vieira Junior, pela possibilidade oferecida para o desenvolvimento do trabalho;

À minha esposa Vanessa, pelo apoio, incentivo, compreensão e paciência, durante a realização deste trabalho;

À minha filha Angélica, que sem dúvida é a fonte de energia para a realização deste trabalho;

À minha mãe que sempre apoiou e incentivou os meus estudos;

Ao pessoal da Comissão de Pós-Graduação do IPEN, pelo apoio oferecido;

A todos que direta ou indiretamente colaboraram na execução e realização deste sonho que é o presente trabalho.

ESTUDO DAS COVARIÂNCIAS ENVOLVIDAS NO MÉTODO k_0 DE ANÁLISE POR ATIVAÇÃO NEUTRÔNICA

Vanderlei Cardoso

RESUMO

O presente trabalho se propôs ao desenvolvimento de uma metodologia para o tratamento das incertezas do método k_0 de Análise por Ativação Neutrônica (AAN), de forma abrangente e acurada, aplicando a metodologia de Análise por Covariâncias. Todos os parâmetros envolvidos na determinação da concentração de um elemento estudado foram analisados de forma criteriosa, estabelecendo as correlações entre eles. Também foram estabelecidas as possíveis correlações entre as concentrações de elementos diferentes, para a mesma amostra e em amostras diferentes. Este procedimento gerou um número grande de correlações que foram tratadas rigorosamente. Os dados para análise foram obtidos experimentalmente, por meio de irradiações efetuadas na posição de irradiação 24A próxima ao núcleo do reator de pesquisas IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP. Os parâmetros α e f , de caracterização do campo neutrônico, foram determinados, aplicando-se vários métodos apresentados na literatura. Um tratamento estatístico detalhado foi aplicado a cada uma das medidas, verificando-se as diversas incertezas parciais e suas correlações. Com o objetivo de aprofundar o estudo, foram escolhidos os alvos de ^{64}Zn e ^{68}Zn , para os quais foram determinados experimentalmente os parâmetros nucleares k_0 e Q_0 , que apresentavam discrepâncias na literatura. Os valores destes parâmetros para o ^{64}Zn resultaram $5,63(8) \times 10^{-3}$ e $1,69(6)$, respectivamente. Para o ^{68}Zn , resultaram $4,00(6) \times 10^{-4}$ e $2,34(4)$, respectivamente. Estes valores foram comparados com os dados existentes na literatura. O método de Monte Carlo foi aplicado em diversas fases do estudo, para permitir a determinação acurada de alguns parâmetros, necessários para a análise completa dos dados.

STUDY OF COVARIANCES INVOLVED IN THE k_0 METHOD OF NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS

Vanderlei Cardoso

ABSTRACT

This work aimed the development of a methodology for the treatment of uncertainty in the k_0 Method for Neutron Activation Analysis (NAA), comprehensively and accurately, by applying the covariance analysis methodology. All parameters involved in determining the concentration of a given element were analyzed with criteria in order to establish the correlations among them. Also established were the possible correlations between the concentrations of different elements for the same sample and for different samples. This procedure generated a large number of correlations that have been rigorously addressed. Data for analysis were obtained experimentally by means of irradiations performed at 24A irradiation position, near the core of the IEA-R1 research reactor, located at IPEN-CNEN/SP. The parameters α and f , characterizing the neutron field were determined by applying several methods from the literature. A detailed statistical treatment was applied to each measurement, verifying the various uncertainties and partial correlations. In order to deepen the study, targets of ^{64}Zn and ^{68}Zn were chosen, for which the nuclear parameters k_0 and Q_0 showed discrepancies in the literature in order to determine them experimentally. For ^{64}Zn , the values for these parameters resulted $5.63(8) \times 10^{-3}$ and $1.69(6)$, respectively. For ^{68}Zn they resulted $4.00(6) \times 10^{-4}$ and $2.34(4)$, respectively. These values were compared with data from the literature. The Monte Carlo method was applied at various stages of study, to allow accurate determination of some parameters needed for the complete data analysis.

SUMÁRIO

Página

INTRODUÇÃO	1
1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS	7
1.1 Interação dos nêutrons com a matéria.....	7
1.1.1 Espectro de Nêutrons.....	9
1.1.2 Seção de Choque.....	11
1.1.2.1 Fórmula de Breit-Wigner.....	12
1.1.2.2 Energia de corte de Cádmiio.....	14
1.1.2.3 Fator de Cádmiio.....	16
1.1.2.4 Fator de auto-blindagem para nêutrons.....	17
1.1.3 Taxa de Reação.....	18
1.1.3.1 Convenção de Westcott.....	19
1.1.3.2 Convenção de Högdahl.....	25
1.1.3.3 Convenção de Menno Blaauw.....	27
1.1.3.4 Energia de Ressonância Efetiva \bar{E}_r	28
1.1.3.5 Razão de Cádmiio.....	29
1.1.4 Atividade induzida por uma reação nuclear.....	31
1.1.5 Determinação do parâmetro α	32
1.1.5.1 Método dos Monitores Múltiplos Descobertos.....	32
1.1.5.2 Método dos Monitores Múltiplos Cobertos com Cádmiio.....	34
1.1.5.3 Método da Razão de Cádmiio com Monitores Múltiplos.....	35
1.1.6 Determinação do parâmetro f_ϕ	36
1.1.6.1 Método da Razão de Cádmiio	36
1.1.6.2 Método dos Monitores Bi-Isotópicos Descobertos.....	36
1.2 Interação da Radiação Gama com a Matéria	37
1.2.1 Efeito Fotoelétrico	38
1.2.2 Efeito Compton	39
1.2.3 Produção de Pares	40
1.3 Espectroscopia X e gama com detectores de HPGe	43

1.3.1	Introdução	43
1.3.2	Eficiência de detecção	44
1.3.3	Área sob o pico de absorção total	47
1.3.4	Fatores de correção	48
1.3.4.1	Decaimento Radioativo	48
1.3.4.2	Geometria de Detecção	49
1.3.4.3	Fator de atenuação	49
1.3.4.4	Tempo morto e empilhamento de pulsos	50
1.3.4.5	Correção para efeito de soma em cascata	50
1.3.5	Atividade das amostras	51
1.4	Método de Análise por Ativação Neutrônica	52
1.4.1	Introdução	52
1.4.2	Método Análise por Ativação Neutrônica Comparativa	52
1.4.3	Método k_0 de Análise por Ativação Neutrônica	54
1.4.4	Determinação dos fatores k_0 e Q_0 para reações de interesse	55
1.5	Tratamento Estatístico dos Dados	56
1.5.1	Variância e Covariância	56
1.5.2	Propagação de erros	57
1.5.3	Matriz de covariâncias	60
1.5.4	Ajuste de Parâmetros de Curvas por Mínimos Quadrados	60
2.	PARTE EXPERIMENTAL	63
2.1.	Irradiação das amostras	63
2.1.1	Características do reator IEA-R1	63
2.1.2	Características dos alvos	63
2.2	Atividade induzida nas amostras	66
2.2.1	Descrição do espectrômetro de HPGe	66
2.2.2	Determinação curva de eficiência do detector de HPGe	68

3. RESULTADOS E DISCUSSÃO	73
3.1 Irradiações e medidas efetuadas no Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do IPEN	73
3.1.1 Curva de eficiência do espectrômetro de HPGe	73
3.1.2 Atividades induzidas nas amostras	76
3.1.3 Parâmetros utilizados para obtenção de α e f_ϕ	76
3.1.4 Resultados obtidos para α e f_ϕ	78
3.1.5 Resultados obtidos para k_0 e Q_0	82
3.2 Análise de dados provenientes de irradiação e medidas efetuadas pelo Laboratório de Análise por Ativação Neutrônica (LAN) do IPEN	87
3.2.1 Atividades induzidas nas amostras	88
3.2.2 Valores obtidos para α e f_ϕ	89
3.2.3 Valores obtidos para concentrações em materiais de referência	90
4. CONCLUSÃO	94
5. APÊNDICES	97
6. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	113

ÍNDICE DE FIGURAS

Figura 1.1	Representação da distribuição da densidade do fluxo de nêutrons $\phi(E)$ em função da energia no nêutron, típica de um reator nuclear térmico.....	9
Figura 1.2	Curva da seção de choque total para o Cd, em função da energia do nêutron.....	14
Figura 1.3	Funções de transmissão no Cd: real, $T(E)$ e ideal, $t(E)$, em função da energia do nêutron.....	15
Figura 1.4	Comportamento do fluxo de nêutrons e do parâmetro α , em um reator nuclear térmico.....	32
Figura 1.5	Espectro de energia correspondente à absorção total de um feixe de radiação gama ou X monoenergético.....	39
Figura 1.6	Representação gráfica do Espalhamento Compton.....	40
Figura 1.7	Representação dos picos correspondentes à energia depositada no detector pelo processo de Produção-de-Pares	41
Figura 1.8	Comportamento relativo dos três principais tipos de interação de fótons X ou gama com a matéria.....	42
Figura 1.9	Espectro de altura de pulso comparativo, usando um cintilador de NaI(Tl) e um detector de Ge(Li).....	44
Figura 1.10	Contribuição dos diferentes mecanismos de perda de energia nos eventos de pico de absorção total.....	46
Figura 1.11	Esquema dos parâmetros utilizados no método de integração numérica da área sob o pico de absorção total.....	47
Figura 2.1	Mapa da configuração do núcleo do reator IEA-R1.....	64
Figura 2.2	Diagrama eletrônico para medida da radiação gama com HPGe.....	67
Figura 2.3	Diagrama esquemático (fora de escala) do arranjo experimental para as medidas com espectrômetro de HPGe.....	67
Figura 3.1	Curva de eficiência para o espectrômetro de HPGe em função da energia gama, obtida pelas fontes padrões fornecidas pela Agência Internacional de Energia Atômica.....	75
Figura 3.2	Curva de eficiência para o espectrômetro de HPGe em função da energia gama, obtida pelas fontes padrões em substrato de Collodion.	75
Figura 3.3	Resíduos obtidos nas duas curvas de eficiência para o espectrômetro	

de HPGe.....	76
--------------	----

ÍNDICE DE FIGURAS (CONT.)

Figura 3.4	Resultados experimentais e curva ajustada para o Método dos Monitores Múltiplos, cobertos com Cádmiio.....	79
Figura 3.5	Resultados experimentais e curva ajustada para o Método da Razão de Cádmiio com Monitores Múltiplos.....	80
Figura 3.6	Contribuições das incertezas de cada parâmetro multiplicado pela derivada parcial da expressão em relação a ele, envolvidas na determinação dos parâmetros k_0 e Q_0 para o ^{64}Zn	84
Figura 3.7	Contribuições das incertezas de cada parâmetro multiplicado pela derivada parcial da expressão em relação a ele, envolvidas na determinação dos parâmetros k_0 e Q_0 para o ^{68}Zn	85
Figura 3.8	Curva de eficiência para espectrômetro de HPGe em função da energia gama, obtida pelas fontes do IRD(RJ) e LMN(IPEN-SP).....	88
Figura 3.9	Histograma da distribuição de valores, para a obtenção do parâmetro α	90
Figura 3.10	Contribuições das incertezas de cada parâmetro, multiplicada pelas derivadas parciais da expressão envolvidas na determinação da concentração do ^{59}Fe	92

ÍNDICE DE TABELAS

Tabela 1.1	Elementos químicos da Tabela Periódica que podem ser determinados pela Análise por Ativação Neutrônica, juntamente com seus limites de detecção.....	2
Tabela 2.1	Parâmetros associados às reações nucleares obtidos na literatura e utilizados na determinação dos parâmetros α e f_ϕ	65
Tabela 2.2	Radionuclídeo, meia-vida, energia gama, probabilidade de emissão gama por decaimento, atividade e fator de correção para o efeito soma em cascata (f_s), para as fontes radioativas utilizadas no primeiro experimento do presente trabalho.....	69
Tabela 2.3	Radionuclídeo, meia-vida, energia gama, probabilidade de emissão gama por decaimento, atividade e fator de correção para o efeito soma em cascata (f_s), para as fontes radioativas utilizadas no segundo experimento do presente trabalho.....	70
Tabela 2.4	Radionuclídeo, meia vida, energia gama, probabilidade de emissão gama por decaimento, atividade e fator de correção para efeito soma em cascata(f_s), para as fontes radioativas do IRD(RJ) e do LMN(IPEN-SP).....	71
Tabela 3.1	Parâmetros da primeira curva de eficiência e correspondente matriz de covariância do ajuste polinomial.....	73
Tabela 3.2	Parâmetros da segunda curva de eficiência e correspondente matriz de covariância do ajuste polinomial.....	74
Tabela 3.3	Atividades obtidas para as amostras, correspondentes a cada uma das experimentos efetuadas.....	77
Tabela 3.4	Fatores de correção G_{th} , G_e e F_{cd} para os alvos utilizados no presente trabalho.....	78
Tabela 3.5	Matriz de covariância da função Y obtida pelo Método de Monitores Múltiplos Cobertos Com Cádmiio.....	79
Tabela 3.6	Matriz de covariância da função Y obtida pelo Método da Razão de Cádmiio com Monitores Múltiplos.....	81
Tabela 3.7	Principais incertezas envolvidas na função Y, nas equações (1.79) e (1.81) (em porcentagem).....	81
Tabela 3.8	Valores de k_0 e Q_0 obtidos no presente trabalho, em comparação com os dados da literatura.....	82
Tabela 3.9	Incertezas nos parâmetros k_0 e Q_0 e matriz de correlação.....	83
Tabela 3.10	Incertezas dos parâmetros multiplicados pelas derivadas parciais referentes a cada parâmetro que compõem as variáveis k_0 e Q_0	86
Tabela 3.11	Parâmetros da curva de eficiência para o arranjo experimental do LAN, prateleira 1, e sua correspondente matriz de covariância.....	87

ÍNDICE DE TABELAS (CONT.)

Tabela 3.12	Atividades obtidas para as amostras de ^{197}Au , ^{95}Zr e ^{97}Zr , no arranjo experimental do LAN.....	89
Tabela 3.13	Concentrações obtidas para os materiais de referência GSN e Soil7....	91
Tabela 3.14	Correlações entre as incertezas nas concentrações obtidas para os materiais de referência GSN e Soil7.....	92
Tabela 3.15	Incerteza dos parâmetros que compõem a expressão da concentração.....	93

INTRODUÇÃO

Conforme descrito por Guinn ^[1], a Análise por Ativação Neutrônica (AAN) foi descoberta em 1936, quando George de Hevesy e Hilde Levi verificaram que amostras contendo certos tipos de terras raras tornavam-se altamente radioativas, após exposição a uma fonte de nêutrons. A partir desta observação, constataram o potencial de empregar as reações nucleares em amostras e, por meio da medição da radioatividade induzida, um método mais fácil de identificação, tanto qualitativa quanto quantitativa, dos elementos presentes na amostra.

A determinação da concentração de elementos químicos em amostras é assunto de interesse em muitas áreas de pesquisa e conhecimento. A Análise por Ativação Neutrônica (AAN), pela sua sensibilidade e seletividade tem sido um dos métodos radioquímicos mais importantes deste tipo de análise^[2-12]. Nesse método, um núcleo de interesse é irradiado em um feixe de nêutrons e a atividade do radionuclídeo produzido através da reação nuclear é medida posteriormente, permitindo assim determinar-se a concentração do elemento correspondente, presente na amostra. Essa técnica analítica é adequada para análises quantitativas multielementares de elementos que podem se apresentar principalmente como elemento traço, mas também pode ser usada em amostras com média e alta concentração dos mais variados tipos.

Cerca de 70% dos elementos químicos têm núclídeos que possuem propriedades adequadas para a aplicação do método da análise por ativação^[12]. A tabela 1.1 apresenta os elementos químicos da tabela periódica, que podem ser analisados pela AAN, juntamente com os limites de detecção, considerando-se um fluxo de nêutrons de 1×10^{13} n cm⁻² s⁻¹ ^[12].

Tabela 1.1 - Elementos químicos da Tabela Periódica que podem ser determinados pela Análise por Ativação Neutrônica, juntamente com seus limites de detecção^[12].

Sensibilidade (picograma)	Elementos
1	Dy, Eu
1 - 10	In, Lu, Mn
10 - 100	Au, Ho, Ir, Re, Sm, W
100 - 1E3	Ag, Ar, As, Br, Cl, Co, Cs, Cu, Er, Ga, Hf, I, La, Sb, Sc, Se, Ta, Tb, Th, Tm, U, V, Yb
1E3 - 1E4	Al, Ba, Cd, Ce, Cr, Hg, Kr, Gd, Ge, Mo, Na, Nd, Ni, Os, Pd, Rb, Rh, Ru, Sr, Te, Zn, Zr
1E4 - 1E5	Bi, Ca, K, Mg, P, Pt, Si, Sn, Ti, Tl, Xe, Y
1E5 - 1E6	F, Fe, Nb, Ne
1E7	Pb, S

A utilização de um reator nuclear como fonte de nêutrons e detectores semicondutores do tipo HPGe, que possuem alta resolução em energia para a radiação gama, tem possibilitado a detecção simultânea de muitos radionuclídeos, aumentando o campo de aplicação da análise por ativação com nêutrons, para estudos envolvendo um grande número de amostras.

A determinação da concentração de um elemento em uma amostra pode ser baseada em diversos métodos de padronização. Um dos métodos de padronização, denominado *Análise Absoluta*, determina a concentração elementar baseando-se no conhecimento do fluxo de nêutrons incidentes, na calibração de eficiência do detector e na utilização de constantes nucleares: abundância isotópica, seção de choque e probabilidade de emissão gama por decaimento. Esse método necessita da obtenção da curva de eficiência do espectrômetro gama. A necessidade destes vários parâmetros, cada um deles associado a uma incerteza, faz com que este método tenha uma baixa exatidão. A vantagem desse método é a possibilidade de quantificar qualquer elemento, desde que apareça no espectro uma linha gama do radionuclídeo de interesse, a partir da ativação de um de seus isótopos.

Outro método de padronização, denominado *Método do Comparador Simples*, resume-se na determinação de todos os elementos desejados através da irradiação do padrão de um só elemento. Para a determinação da concentração, recorre-se às razões

entre taxa de contagem, eficiência e constantes físicas, tanto do comparador como do elemento a ser determinado. Sua principal vantagem é a flexibilidade, semelhante à do método absoluto. É um método especialmente útil quando se tem interesse em variações de concentração, não importando seu valor exato.

Tem-se ainda outro método de padronização que é a *Análise por Ativação Comparativa*^[13,14], que consiste na irradiação simultânea da amostra a ser analisada e uma amostra certificada, com concentração do elemento bem conhecida (padrão). A irradiação do padrão e da amostra é efetuada sob as mesmas condições, durante o mesmo tempo de irradiação e sob o mesmo fluxo de nêutrons, e posteriormente são medidas sob as mesmas condições experimentais. Nesse processo, todos os parâmetros associados à irradiação e detecção são os mesmos, tanto para a amostra como para o padrão, tornando possível a determinação da concentração de um elemento na amostra através de uma simples comparação entre as atividades induzidas na amostra e no padrão. Este método de análise requer comparadores individuais para cada elemento analisado, o que implica em um procedimento trabalhoso, dispendioso e demorado. Outra desvantagem desse processo é o alto custo dos comparadores e a impossibilidade de comparação de alguns elementos por falta do padrão correspondente.

Para contornar essas dificuldades foi desenvolvido o Método k_0 ^[15-18] de ativação neutrônica pelo *Institute for Nuclear Sciences*, em Gent, na Bélgica. Esse método apresenta uma grande vantagem em relação ao método comparativo, pois as concentrações dos elementos são determinadas em relação a um único comparador (usualmente Au) e não requer a preparação de padrões individuais para cada elemento analisado. Entretanto, este método depende da determinação exata das eficiências de pico para as energias gama de interesse, em um espectrômetro gama; da relação entre fluxo térmico e epitérmico (f_ϕ) e do parâmetro relacionado à distribuição de energia dos nêutrons epitérmicos (α). Requer também maior reprodutibilidade nas instalações de irradiação e detecção, além de constantes nucleares obtidas da literatura.

O Método k_0 , em razão de possibilitar a determinação da concentração elementar com grande exatidão, tem sido amplamente aceito por usuários em vários laboratórios do mundo^[19-21], incluindo o Brasil^[5]. O fator k_0 de um isótopo analisado é função de relações existentes entre as massas atômicas, abundâncias isotópicas, seções de choque para nêutrons térmicos e probabilidades de emissão gama por desintegração para a transição

considerada da amostra e do comparador (Au). Em razão de sua grande empregabilidade, os fatores k_0 para a maioria dos elementos, que podem ser determinados por meio da Análise por Ativação Neutrônica (AAN), foram determinados experimentalmente com boa exatidão e são encontrados na literatura [17,23-26]

A expressão que determina a concentração de um elemento pelo método k_0 em uma dada amostra é função dos parâmetros envolvidos na irradiação das amostras, dos parâmetros envolvidos na detecção da radiação gama, das massas das amostras e do próprio k_0 , e nesse caso, como são vários parâmetros envolvidos, é necessário considerar as incertezas de cada um deles.

Por outro lado, a determinação de cada um desses parâmetros envolve outros, que também possuem fontes de incertezas [27-32]. Além disso, existem correlações não só entre os parâmetros do elemento analisado e do comparador, mas também entre parâmetros de elementos diferentes. Para uma análise completa, torna-se necessário considerar todas essas correlações, com o objetivo de possibilitar o cálculo da incerteza nas concentrações de forma rigorosa. Este estudo é a motivação para o presente trabalho.

A literatura mostra alguns trabalhos que procuraram desenvolver metodologias para o tratamento de incertezas na determinação de concentrações dos elementos químicos pelo método k_0 [27-32]. Entretanto, as metodologias apresentadas não elaboram este tratamento de forma completa, de modo a levar em conta a complexidade das correlações existentes entre os parâmetros de ajuste. Um dos principais exemplos é o programa usado pela Agência Internacional de Energia Atômica para a determinação da concentração de elementos pelo Método k_0 [33]. Em seu manual [34], verifica-se que algumas fontes de incertezas não estão incluídas nos cálculos deste programa. Desse modo, conclui-se que os resultados de incerteza apresentados na literatura não podem ser considerados totalmente satisfatórios.

O Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do IPEN tem adquirido grande experiência no campo de padronização de atividade de radionuclídeos, campos de nêutrons, modelagem por Monte Carlo e tratamento estatístico de dados [35-42]. O presente trabalho possibilita uma ampliação da área de pesquisa do LMN, incluindo a análise estatística teórica e experimental de dados relacionados com o método k_0 de Análise por Ativação Neutrônica.

O presente trabalho se propõe a desenvolver uma nova metodologia, aplicando técnicas analíticas e/ou numéricas, para efetuar o tratamento das incertezas do método de Análise por Ativação Neutrônica (AAN), de forma abrangente e rigorosa. As fontes de incertezas parciais foram estudadas em cada parte do processo de medida por AAN, pelo método k_0 .

Todos os parâmetros envolvidos na determinação da concentração de um elemento estudado foram analisados de forma criteriosa, estabelecendo as correlações entre eles. Também foram estabelecidas as possíveis correlações entre as concentrações de elementos diferentes, para a mesma amostra e em amostras diferentes. Este procedimento gera um número grande de correlações que foram tratadas rigorosamente.

A relevância do tema justifica-se pela importância de uma análise detalhada de incertezas e aplicabilidade da determinação da concentração de um elemento usando o método k_0 . Os aspectos de originalidade estão associados ao desenvolvimento de uma metodologia teórica, utilizando Matriz de Covariância para todas as incertezas parciais do método k_0 . Esta metodologia foi desenvolvida aplicando métodos analíticos/numéricos, tais como o Método dos Mínimos Quadrados ou o Método de Monte Carlo.

O método proposto torna-se particularmente dificultoso, principalmente na análise e determinação da correlação existente entre os parâmetros, pois a função que determina a concentração do elemento é uma composição de funções, o que torna a determinação da Matriz de Covariância complexa e laboriosa. Estas dificuldades, aliadas às simulações e comparações com resultados experimentais, obtidos no Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN, além de suas características originais, justificam o desenvolvimento deste trabalho a um nível de doutorado.

O capítulo 1 apresenta os fundamentos teóricos do trabalho, incluindo a interação dos nêutrons e gamas com a matéria, aspectos básicos da atividade induzida em um nuclídeo, métodos de análise por ativação neutrônica, determinação de parâmetros que compõem o modelo matemático que representa um fluxo de nêutrons em um reator de pesquisa, determinação da concentração de um elemento em uma amostra, além da variância e covariância entre as variáveis deste fenômeno físico.

No capítulo 2 é apresentada a parte experimental, descrevendo as características das irradiações dos alvos no reator IEA-R1 do IPEN, o espectrômetro de HPGe do

Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN, além das características principais das fontes radioativas utilizadas na calibração.

No capítulo 3 são apresentados os resultados e sua discussão.

No capítulo 4 são apresentadas as conclusões e as propostas para trabalhos futuros.

1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS

1.1. Interação dos nêutrons com a matéria

Os nêutrons incidentes em um material podem ser absorvidos, sofrer espalhamentos elástico ou inelástico ou podem provocar outros tipos de reações. Sendo partículas sem carga, eles não interagem por meio da força coulombiana, podendo assim atravessar diversas camadas atômicas sem sofrer qualquer interação. A interação desse tipo de partícula se dá por meio de reações nucleares. Cada uma dessas reações nucleares tem uma probabilidade de ocorrência, que é função da energia do nêutron e da característica do núcleo alvo. Esses núcleos são classificados em função do seu número de massa A da seguinte maneira^[44]:

- Leves, com $A < 25$
- Intermediários, com $25 < A < 80$
- Pesados, com $A > 80$

As reações nucleares com nêutrons são classificadas em reações diretas e reações com formação de núcleo composto:

- Reações diretas: ocorrem sem a formação de um estado intermediário, tendo como reação mais importante a do tipo espalhamento elástico direto, simbolizado por (n, n) ;
- Reações com formação de núcleo composto: o núcleo composto se dá pela união do nêutron com o núcleo alvo, sendo que a energia de excitação desse núcleo é igual à soma da energia cinética e a de ligação do nêutron. Para esse tipo de reação existem vários tipos de canais de saída, sendo eles: Espalhamento elástico composto, (n, n) ; Espalhamento inelástico composto, (n, n') ; Captura radioativa, (n, γ) ; Emissão de partículas carregadas ou de mais de um nêutron, (n, α) , (n, p) , (n, np) , $(n, 2n)$, etc, e Fissão (n, f) .

Após a energia introduzida pela partícula incidente ser distribuída entre os componentes do núcleo composto, um ou mais de seus constituintes podem adquirir ou

não energia suficiente para escapar dele. Se o nível de energia do núcleo composto for insuficiente para ejetar uma partícula, esse nível é denominado nível ligado, sendo que o excesso de energia é dissipado pela emissão de um fóton. Caso contrário, os níveis de energia são chamados de níveis não ligados. O tempo que o núcleo composto leva para sua desexcitação, que ocorre por meio de emissão de uma partícula ou de um fóton, é denominado vida média. O princípio de Heisenberg baseado na natureza quântica da matéria, introduz o conceito da incerteza ΔE na energia E de um determinado nível dado por^[44,56]:

$$\Delta E = \frac{\hbar}{\Delta t}, \quad (1.1)$$

Onde:

Δt é a vida média do estado do núcleo composto, também representado por τ ,

\hbar é a constante de Planck/ 2π ,

ΔE é a largura do nível, também representado por Γ .

Logo, pode-se escrever:

$$\Delta E = \Gamma = \frac{\hbar}{\tau} \quad (1.2)$$

Para cada canal de saída, correspondente a uma largura parcial Γ_i , existe uma probabilidade de desintegração. A soma das larguras individuais dos canais de saída $\Gamma_x + \Gamma_\gamma + \Gamma_\alpha + \dots = \Gamma$ fornece a largura total e conseqüentemente a probabilidade total de desintegração.

Em um determinado processo (n, x), sua probabilidade de ocorrência é $\sigma_{nx} = \sigma_c \frac{\Gamma_x}{\Gamma}$, onde σ_c é a probabilidade da formação do núcleo composto e $\frac{\Gamma_x}{\Gamma}$ a probabilidade de decaimento para o canal de saída x.

1.1.1 Espectro de nêutrons

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. Esta divisão é apresentada na figura 1.1. Também é importante evidenciar que nos limites extremos desses subintervalos há superposições de categorias adjacentes.

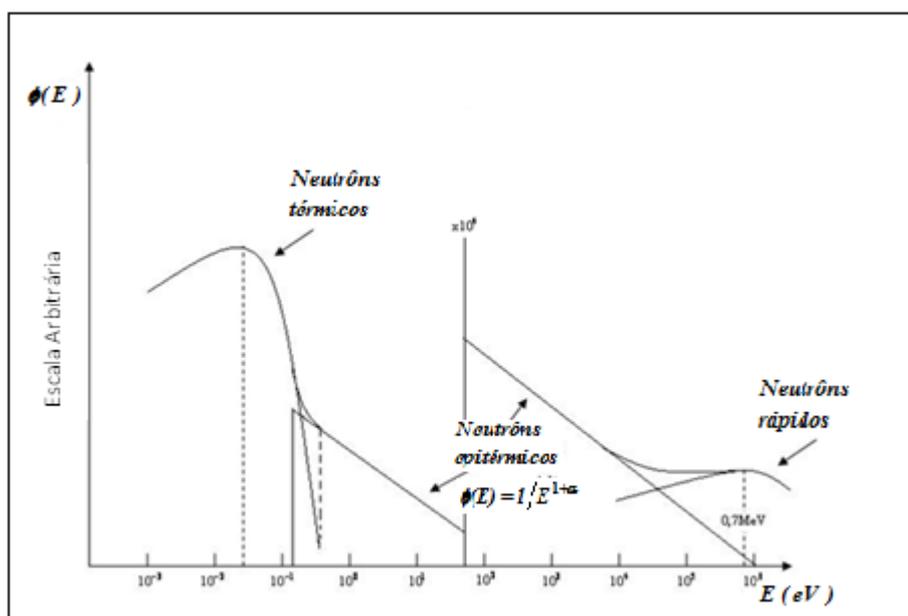


Figura 1.1 - Representação da distribuição da densidade do fluxo de nêutrons $\phi(E)$ em função da energia no nêutron, típica de um reator nuclear térmico^[18].

Essa classificação pode ser apresentada da seguinte forma:

- Nêutrons térmicos são nêutrons com energias inferiores a 1 eV, e que atingem o equilíbrio térmico com os núcleos do meio, após perderem energia durante a moderação. De acordo com a lei de distribuição de Maxwell, o número de nêutrons por cm^3 com energia entre E e $E + dE$ é dado por^[44,45]:

$$dn = n(E)dE = \frac{2\pi n}{(\pi kT)^2} e^{-E/kT} \sqrt{E} dE \quad (1.3)$$

ou

$$\frac{n(E)dE}{n} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} e^{-E/kT} \sqrt{\frac{E}{kT}} \frac{dE}{kT} \quad (1.4)$$

Onde $n = \int_0^{\infty} n(E)d(E)$.

Em função da velocidade do nêutron, pode-se também chegar à seguinte expressão para o fluxo de nêutrons:

$$\frac{n(v)dv}{n} = \frac{4}{\sqrt{\pi}} e^{-\frac{mv^2}{2kT}} \frac{mv^2}{2kT} \sqrt{\frac{m}{2kT}} dv \quad (1.5)$$

Onde $T = 293,6^\circ K$ ($20,4^\circ C$), $kT = 0,0253 eV$

- 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 $\phi(E) \sim 1/E$. No entanto, os espectros de nêutrons epitérmicos de irradiações reais podem se afastar desse comportamento^[46,47]. Foi demonstrado que o comportamento desses espectros segue aproximadamente a expressão

$$\phi(E) \sim 1/E^{1+\alpha} \text{ com } \alpha \begin{cases} < 0 \\ = 0 \\ > 0 \end{cases}.$$

- Nêutrons rápidos: são nêutrons com energias variando entre 500 keV e 20 MeV 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^[48] 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:

$$\phi(E) = 0,484e^{-E} \sinh \sqrt{2E} \quad (1.6)$$

onde: E = energia no nêutron em MeV.

1.1.2 Seção de Choque

Vários tipos de reações nucleares um núcleo pode sofrer e, para cada tipo de reação, existe uma seção de choque correspondente, que é a probabilidade de ocorrer essa reação. Este parâmetro depende da característica do núcleo alvo e da velocidade ou energia da partícula incidente. O somatório das seções de choque individuais para cada tipo de reação nuclear de um núcleo alvo, para uma partícula com determinada energia, é definido com *Seção de Choque Total*.

Usualmente, divide-se a seção de choque total em duas grandes componentes: a seção de choque de absorção e a seção de choque de espalhamento. A seção de choque total corresponde à soma entre a seção de choque de absorção e a seção de choque de espalhamento. Por sua vez, a seção de choque de espalhamento é o somatório das seções de choque para espalhamento elástico e inelástico.

O símbolo usado para a seção de choque de um núcleo individual é a letra grega σ , que também é denominada *Seção de Choque Microscópica*.

Assim, pode-se escrever

$$\sigma_t = \sigma_a + \sigma_s$$

onde:

σ_t é a Seção de choque microscópica total;

σ_a é a Seção de choque microscópica de absorção; $\sigma_a = \sigma_\gamma + \sigma_x + \sigma_f$

onde:

σ_γ é a Seção de choque microscópica de captura,

σ_x é a Seção de choque microscópica de emissão de uma partícula carregada ou de combinações de partículas (n,p; n,np, etc);

σ_f é a Seção de choque microscópica de fissão;

σ_s é a Seção de choque microscópica de espalhamento; $\sigma_s = \sigma_{se} + \sigma_{si}$

onde:

σ_{se} é a Seção de choque microscópica de espalhamento elástico e

σ_{si} é a Seção de choque microscópica de espalhamento inelástico.

Considerando as reações que ocorrem entre um feixe de nêutrons e os bilhões de núcleos contidos em um centímetro cúbico de material alvo, tem-se a *Seção de Choque Macroscópica*, simbolizada por Σ , correspondendo ao produto entre a seção de choque microscópica e o número total de núcleos em um centímetro cúbico do alvo: $\Sigma = N\sigma$.

A seção de choque para a reação de captura de nêutrons (n, γ) decresce com a energia do nêutron incidente. Isso pode ser explicado considerando que, com o aumento da velocidade dos nêutrons, o tempo que esses nêutrons permanecem no campo de ação das forças nucleares diminui, reduzindo assim a probabilidade de captura. Esse fenômeno segue aproximadamente a lei $1/v$, onde v é a velocidade do nêutron.

Em determinadas energias, a seção de choque se eleva rapidamente. Essas elevações ocorrem em energias de ressonâncias onde a formação de um núcleo composto é mais provável. A energia de ressonância é igual à soma da energia cinética e da energia de ligação do nêutron, que corresponde à diferença energética entre dois níveis nucleares.

1.1.2.1 Fórmula de Breit-Wigner

Para descrever o comportamento da seção de choque em função da energia de excitação, para as reações de captura e espalhamento nas proximidades de uma ressonância simples e isolada, pode-se utilizar uma fórmula descrita por Breit-Wigner^[47,48]. Quando formado, um núcleo composto pode decair por meio de um de seus canais de saída permitidos, I_i . Assim, para qualquer canal, a fração da transição é dada

por Γ_i / Γ . Considerando uma ressonância simples de uma reação (n, x_i) , sua seção de choque, que não seja de reemissão da partícula incidente, ou seja, do espalhamento ressonante, pode ser escrita da seguinte forma:

$$\sigma(n, x_i) = (\sigma^{\ell_c}) \left(\frac{\Gamma_i}{\Gamma} \right) = \pi (2\ell + 1) \lambda^2 \frac{\Gamma_n \Gamma_i}{(E - E_R)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2} \right)^2} \quad (1.7)$$

Onde:

ℓ é o número quântico do movimento angular orbital;

E é a energia do nêutron incidente;

E_R é a energia da ressonância;

λ é o comprimento e onda de Broglie, associada a velocidade do nêutron.

A fórmula (1.7) é denominada fórmula de Breit-Wigner, para o caso de um único nível. Para outros tipos de reações, essa fórmula pode ser usada desde que o parâmetro associado à ressonância Γ_γ seja substituído pelo parâmetro da reação que se quer estudar.

Para o caso da captura ressonante de nêutrons térmicos, com $\ell = 0$, seguida da desintegração radioativa do núcleo composto, a seção de choque, considerando uma ressonância simples e isolada, obedece a seguinte expressão^[47, 57]:

$$\sigma(E) = \pi \lambda^2 g \frac{\Gamma_n \Gamma_\gamma}{(E - E_R)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2} \right)^2} \quad (1.8)$$

Onde:

$$g = \frac{(2J + 1)}{2(2I + 1)},$$

I : spin do núcleo alvo;

J : spin do núcleo composto;

$\Gamma_n, \Gamma_\gamma, \Gamma$: Largura dos níveis.

A fórmula (1.7) não se mostrou muito precisa para algumas reações^[48], havendo assim a necessidade de levar em consideração a influência mútua das outras ressonâncias. No caso de considerar-se a contribuição de todas as ressonâncias para nêutrons numa determinada energia E , a probabilidade de ocorrência de uma reação corresponde à soma das probabilidades parciais correspondentes a cada ressonância, para o valor da energia considerado. A expressão que leva em consideração todas essas ressonâncias é denominada fórmula de Breit-Wigner de multiníveis que é dada por^[44]:

$$\sigma(E) = \pi \lambda^2 g \sum_{i=1}^n \frac{\Gamma_{ni} \Gamma_{\gamma i}}{(E - E_{Ri})^2 + \left(\frac{\Gamma_i}{2}\right)^2} \quad (1.9)$$

1.1.2.2 Energia de corte de Cádmi

Ao se irradiar uma amostra sob uma cobertura de Cd, tem-se um aumento significativamente acentuado da reação (n,γ) na região onde os nêutrons possuem baixa energia, pois muitos nêutrons nessa região são absorvidos, em razão da altíssima seção de choque do Cd nessa região^[49,50], principalmente causada na ressonância $^{113}\text{Cd} (n,\gamma)$, na energia de 0,178 eV. Este comportamento é ilustrado na figura 1.2.

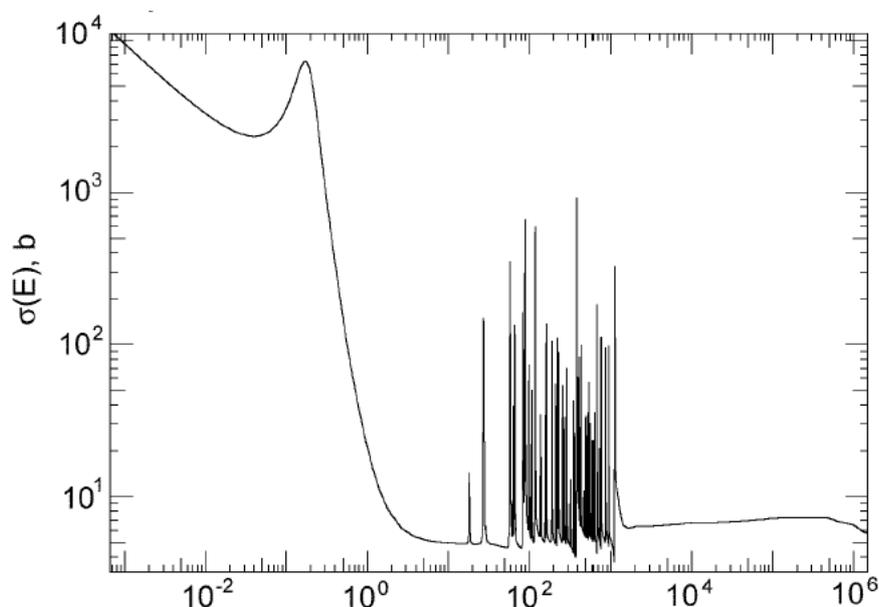


Figura 1.2 - Curva da seção de choque total para o Cd, em função da energia do nêutron^[50].

Uma função que pode modelar de forma satisfatória esse filtro de nêutrons térmicos é denominada função de transmissão $T(E)$ que, para uma cobertura de cádmio com espessura de 1 mm, está representada na figura 1.3 e tem a sua expressão dada por :

$$T(E) = e^{-\sigma_{tot,Cd}(E)\rho N_A x_0 / M} \quad (1.10)$$

onde:

ρ é a densidade do cádmio;

N_A é o Numero de Avogadro;

x_0 é a espessura do cádmio, igual a 1 mm;

M é a massa molar do cádmio;

$\sigma_{tot,Cd}(E)$ é a seção de choque total para o cádmio;

$$T(E) \cong 0 \text{ para } E < 0,2 \text{ eV}$$

$$T(E) \cong 1 \text{ para } E > 2 \text{ eV}$$

A função ideal $t(E)$ situada na região chamada energia de corte de Cd pode ser considerada como uma função degrau, de tal forma que:

$$t(E) = 0 \text{ para } E < E_{Cd} \text{ e } t(E) = 1 \text{ para } E > E_{Cd}.$$

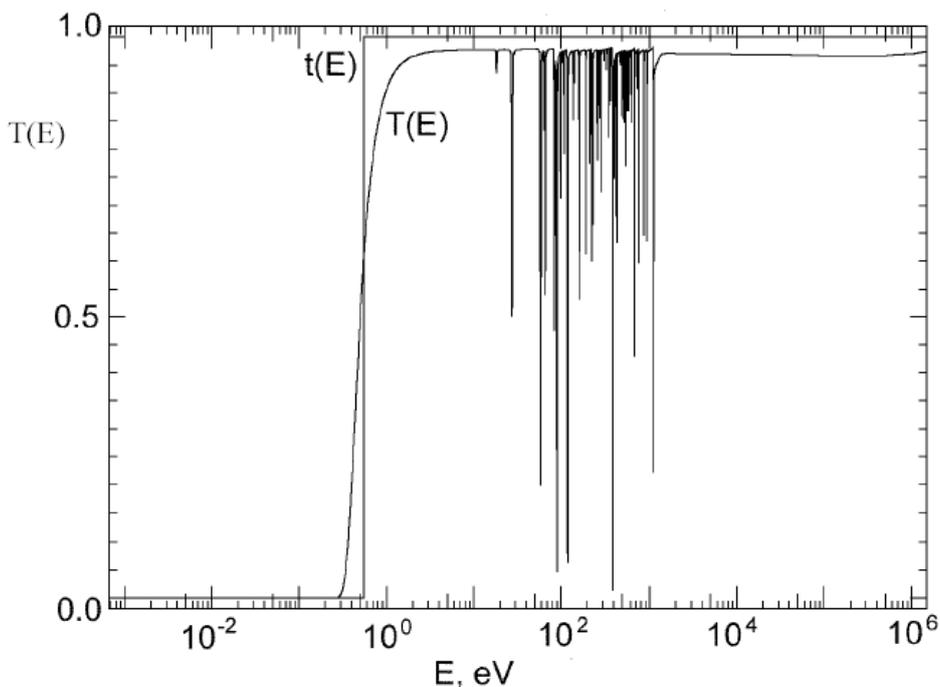


Figura 1.3 - Funções de transmissão no Cd: real, $T(E)$ e ideal, $t(E)$, em função da energia do nêutron.^[51]

1.1.2.3 Fator de Cádmi

O termo Fator de Cádmi, F_{Cd} , é o fator de transmissão epitérmica e indica quão transparente é a cobertura de cádmio aos nêutrons epitérmicos. No presente trabalho, os fatores F_{Cd} foram calculados pela transmissão média nas coberturas de Cd, aplicando-se os dados de seções de choque da biblioteca ENDF/B-VII (2010)^[50] e considerando as variações na espessura das coberturas de Cd devido ao fluxo isotrópico de nêutron.

A equação para o cálculo do F_{Cd} é dada por^[49]:

$$F_{CD} = \frac{\int_0^{\infty} T(E) \sigma(E) \phi(E) dE}{\int_{E_{Cd}}^{E_1} \sigma(E) \phi(E) dE} \quad (1.11)$$

No presente trabalho, essa equação foi aproximada por:

$$F_{CD} = \frac{\sum_i T(E_i) \sigma(E_i) \phi(E_i) \Delta E_i}{\sum_i \sigma(E_i) \phi(E_i) \Delta E_i} \quad (1.12)$$

Onde: $T(E_i)$ é o fator de transmissão dado pela equação (1.10) e

$\sigma(E_i)$ é a seção de choque de captura para o alvo i , posicionado dentro do cádmio.

No cálculo de F_{Cd} , foi suposto que o fluxo de nêutrons segue a lei $1/E$;

E_{Cd} e E_1 são as energias de corte de Cádmi, correspondentes aos limites inferior e superior de energia, com valores iguais a 0,55 eV e 2 MeV, respectivamente. A energia 0,55 eV foi utilizada uma vez que a espessura de Cd que envolveu as amostras do presente trabalho foi de 0,6 mm, conforme descrito na seção 2.1.2.

1.1.2.4 Fator de auto-blindagem para nêutrons

A presença de uma amostra num campo de nêutrons térmicos ou epitérmicos de um reator nuclear cria uma perturbação no fluxo de nêutrons no local. Este efeito pode ser muito importante, se a seção de choque dessa amostra exibir um significativo pico de ressonância para o campo de nêutrons considerado. Para se determinar a perturbação do fluxo de nêutrons na ativação da amostra deve ser aplicado um fator de correção para auto-blindagem (*self-shielding*) G , que pode ser G_{th} no caso de nêutrons térmicos e G_e no caso de nêutrons epitérmicos. Esse fator depende da geometria, das dimensões e também das propriedades físicas e nucleares da amostra.

No presente trabalho, para a determinação dos fatores de correção para auto-blindagem (*self-shielding*) de nêutrons térmicos e epitérmicos, foram utilizadas curvas universais que determinam estes valores, como função de parâmetros geométricos e nucleares^[52, 53].

Para nêutrons térmicos, este fator é dado por^[52]:

$$G_{th} = \frac{1}{1 + \left(\frac{z}{1,029}\right)^{1,009}} \quad (1.13)$$

Onde:

$$z = x \sum_t \left(\frac{\sum_a}{\sum_t} \right)^k$$

$$k = 0,85 \pm 0,05;$$

\sum_t é a seção de choque macroscópica total;

\sum_a é a seção de choque macroscópica de absorção;

x é a espessura, no caso da amostra ser uma folha;

x é o raio, no caso da amostra ser fio ou esfera.

Para nêutrons epitérmicos, este fator é dado por^[53]:

$$G_e = \frac{0,94}{1 + \left(\frac{z}{2,70}\right)^{0,82}} + 0,06 \quad (1.14)$$

Neste caso,

$$z = \sum_{tot} (E_{res})y \left(\frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma}\right)^{1/2}, \text{ sendo:}$$

y é o valor do raio R , para esferas;

y é igual a $1,5 t$ para folhas, sendo t a espessura da folha e

y é igual a $2R$ para fios, onde R é o raio do fio;

Γ é a largura total de nível de excitação do núcleo-alvo;

Γ_γ é largura de nível para o canal de saída gama e

Γ_γ/Γ é a probabilidade de decaimento para o canal de saída gama.

Para alvos que possuem diversas ressonâncias, foi aplicado um valor médio para G_e .

1.1.3 Taxa de Reação

Durante a irradiação de uma amostra com nêutrons, a taxa de reação é parametrizada pela seção de choque $\sigma(E)$, que é característica do material irradiado e pelo espectro de nêutrons $\phi(E)$, que está relacionado com a densidade dos nêutrons atravessando o material e sua velocidade.

A taxa de reação por núcleo alvo (em s^{-1}) é dada por:

$$R = \int_0^{\infty} \sigma(v) \phi(v) dv \quad (1.15)$$

onde:

$\sigma(v)$ é a seção de choque (cm^2) para a velocidade do nêutron v (cm s^{-1}) e

$\phi(v)$ é o fluxo de nêutron por unidade de velocidade (cm^{-3}) para a velocidade v do nêutron.

Em função da energia do nêutron E , a taxa de reação pode ser dada por:

$$R = \int_0^{\infty} \sigma(E) \phi(E) dE \quad (1.16)$$

onde:

$\sigma(E)$ é a seção de choque (cm^2) para a energia do nêutron E (eV)

$\phi(E)$ é o Fluxo de nêutron por unidade de energia ($\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1} \text{eV}^{-1}$) para a energia E ;

1.1.3.1 Convenção de Westcott

Proposta por C. H. Westcott ^[54] em 1958, o formalismo de Westcott corresponde a um método para calcular a taxa de reação, a partir das características do espectro de nêutrons e do valor da seção de choque para a reação considerada. É um modelo muito rigoroso que se aplica em espectros neutrônicos bem termalizados, isto é, quando a razão entre o fluxo térmico e o fluxo epitérmico for muito maior do que a unidade. Esse formalismo tem como principal característica não requerer que as seções de choque dos isótopos 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 seção de choque $1/v$, pode-se colocar a dependência com a velocidade do nêutron em termos da seção de choque térmica:

$$\sigma(v) = \frac{\sigma_0 v_0}{v} \quad (1.17)$$

Logo, a taxa de reação por núcleo alvo, descrita por (1.15), pode ser representada por:

$$R = \sigma_0 v_0 \int_0^{\infty} n(v) dv \quad (1.18)$$

Ou

$$R = \sigma_0 v_0 n_{th} \quad (1.19)$$

Pois, $\int_0^{\infty} n(v) dv$ é igual a densidade total de nêutrons n_{th} e

$n_{th} v_0 \equiv \phi_{th}$: é denominado fluxo térmico para a distribuição de nêutrons com velocidade v_0 .

O fluxo de nêutrons em função da energia é dado por:

$$\phi(E) = n(E) v(E) = \frac{2\pi n}{(\pi kT)^{3/2}} \left(\frac{2}{m}\right)^{1/2} E e^{-E/kT} \quad (1.20)$$

E o fluxo térmico dado por:

$$\phi_{th} = \int_T^{\infty} \phi(E) dE = \frac{2\pi}{(\pi kT)^{3/2}} \left(\frac{2}{m}\right)^{1/2} \int_0^{\infty} E e^{-E/kT} dE = \frac{2n}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{2kT}{m}\right)^{1/2} \quad (1.21)$$

Considerando que os nêutrons térmicos tem um comportamento em equilíbrio térmico com o meio, considera-se:

$$E_T = kT \quad e \quad \frac{1}{2} m v_T^2 = E_T \quad (1.22)$$

Pode-se então escrever:

$$\phi_{th} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} n v_T \quad (1.23)$$

Pode-se concluir então que:

$$\frac{\phi_0}{\phi_T} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \left(\frac{T_0}{T} \right)^{1/2} \quad (1.24)$$

O que ocorre na prática é que as seções de choque nem sempre seguem o comportamento $1/v$. Isso quer dizer que para que a expressão (1.23) possa representar o fluxo térmico pode ser necessária a aplicação de correções e este formalismo permite fazer essas correções. Considerando o espectro de nêutrons na região térmica por uma distribuição Maxwelliana e na região epitérmica por uma distribuição $1/E$ como mostrado na figura (1.1), nota-se que o comportamento de $1/E$ sobrepõe a Maxwelliana com início em uma certa energia E_c .

Com a finalidade de tornar o espectro contínuo na região da junção dessas duas componentes, por meio de uma função denominada *função de junção*, existem expressões apropriadas que podem ser encontradas na literatura^[54,55]. Uma forma simplificada dessa função de junção denominada Δ é uma aproximação para a função de grau do tipo:

$$\begin{aligned} \Delta &= 0 \text{ para } E_c < \mu k T \\ \Delta &= 1 \text{ para } E_c > \mu k T \end{aligned} \quad (1.25)$$

Onde: μ é um valor escolhido de modo que possa ajustar a junção. O valor da energia de junção ou energia de corte E_c é dada em unidade kT . Unidas por uma função de junção^[55], a densidade de nêutrons que corresponde a soma das componentes Maxwelliana com $1/E$ pode ser escrita por:

$$n(v) = n_m \rho_m(v) + n_i \Delta \rho_i(v) \quad (1.26)$$

Onde:

n_m é densidade de nêutrons Maxwelliana dada por $n_m = n (1 - f_{ni})$

n_i é densidade de nêutrons intermediários dada por $n_i = n f_{ni}$

f_{ni} é a fração de nêutrons intermediários na densidade total n .

$\rho_m(v)$ e $\rho_i(v)$ são as funções de distribuição da densidade dos nêutrons Maxwelliana e epitérmica normalizadas, respectivamente.

Dessa maneira, pode-se escrever a densidade de nêutrons por:

$$n(v) = n(1 - f_{ni}) \frac{4v^2}{\sqrt{\pi}v_T^3} e^{-(v/v_T)^2} + nf_{ni} \Delta v_T \mu^{1/2} v^{-2} \quad (1.27)$$

Substituindo-se a expressão (1.27) na expressão (1.18) obtém-se a taxa de reação, levando-se em conta que a seção de choque σ depende da velocidade do nêutron, ou seja $\sigma = \sigma(v)$.

$$R = n(1 - f_{ni}) \int_0^{\infty} \frac{4v^3}{\sqrt{\pi}v_T^3} e^{-(v/v_T)^2} \sigma(v) d(v) + nf_{ni} v_T \mu^{1/2} \int_0^{\infty} \frac{\Delta}{v} \sigma(v) d(v) \quad (1.28)$$

No caso em que não haja contribuição epitérmica, ou seja, a fração de nêutrons epitérmicos f_{ni} for igual a zero, o espectro é denominado puramente Maxwelliano, e sua taxa de reação é dada por:

$$R = n \int_0^{\infty} \frac{4v^3}{\sqrt{\pi}v_T^3} e^{-(v/v_T)^2} \sigma(v) d(v) \quad (1.29)$$

A taxa de reação em termos de uma seção de choque efetiva Maxwelliana $\hat{\sigma}_m$ pode ser dada por:

$$R = n v_0 \hat{\sigma}_m \quad (1.30)$$

Onde $n v_0$ é a densidade de fluxo convencional, no caso particular de $n = n_m$.

Comparando-se a expressão (1.29) com a expressão (1.30) obtém-se:

$$\hat{\sigma}_m = \frac{1}{v_0} \int_0^{\infty} \frac{4v^3}{\sqrt{\pi}v_T^3} e^{-(v/v_T)^2} \sigma(v) dv \quad (1.31)$$

Na literatura, é possível encontrar-se valores para σ_0 , e com o formalismo de Westcott é possível definir um fator de correção g que permite obter a seção de choque

Maxwelliana efetiva $\hat{\sigma}_m$. Esse fator tem a finalidade de corrigir a seção de choque $\hat{\sigma}_m$ para a influência da temperatura e para a variação da seção de choque na região Maxwelliana. Este fator g é definido pela expressão:

$$g \equiv \frac{\hat{\sigma}_m}{\sigma_0} = \frac{1}{v_0 \sigma_0} \int_0^{\infty} \frac{4v^3}{\sqrt{\pi} v_T^3} e^{-(v/v_T)^2} \sigma(v) d(v) \quad (1.32)$$

Os valores de g para diversos materiais e temperaturas podem ser encontrados na literatura, de tal forma que a seção de choque efetiva $\hat{\sigma}_m$ pode ser determinada pela expressão:

$$\hat{\sigma}_m = \sigma_0 g \quad (1.33)$$

No caso em que o espectro não seja puramente Maxwelliano, em que exista uma certa fração do espectro epitérmico sobreposto ao térmico, a taxa de reação é dada por:

$$\begin{aligned} R &= n(1 - f_{ni})v_0 \hat{\sigma}_m + n f_{ni} v_T \mu^{1/2} \int_0^{\infty} \frac{\Delta\sigma(v)}{v} dv = \\ &= n v_0 \hat{\sigma}_m + n f_{ni} [v_T \mu^{1/2} \int_0^{\infty} \frac{\Delta\sigma(v)}{v} dv - v_0 \sigma_M] = n v_0 \hat{\sigma} \end{aligned} \quad (1.34)$$

Onde:

$$\hat{\sigma} = g \sigma_0 + \frac{f_{ni} \mu^{1/2} v_T}{v_0} \int_0^{\infty} \left[\sigma(v) - \frac{v_0 \hat{\sigma}_M}{v} \right] \frac{2\Delta dv}{v} \quad (1.35)$$

Substituindo-se em (1.35) $\frac{2V}{v}$ por $\frac{dE}{E}$, tem-se:

$$\hat{\sigma} = g \sigma_0 + \frac{f_{ni} \mu^{1/2} v_T}{2v_0} \int_0^{\infty} \left[\sigma(v) - \frac{v_0 \hat{\sigma}_M}{v} \right] \frac{\Delta dE}{E} \quad (1.36)$$

Com base nessa expressão pode-se verificar a existência de duas partes: a Maxwelliana dada por $g \sigma_0$ e a contribuição do fluxo epitérmico, dada por:

$$\frac{f_{ni} \mu^{1/2} v_T}{2v_0} \int_0^{\infty} \left[\sigma(v) - \frac{v_0 \hat{\sigma}_m}{v} \right] \frac{\Delta dE}{E} \quad (1.37)$$

Com o auxílio de expressão (1.25), a expressão (1.37) pode ser escrita da seguinte maneira:

$$\frac{f_{ni} \mu^{1/2} v_T}{2v_0} \int_{\mu kT}^{\infty} \left[\sigma(v) - \frac{v_0 \hat{\sigma}_m}{v} \right] \frac{dE}{E} \quad (1.38)$$

Sendo que a integral dessa expressão envolve somente componentes da seção de choque, pois a componente $1/v$ foi subtraída.

Pode-se definir uma nova fração de nêutrons epitérmicos r proporcional a $(f_{ni} \mu^{1/2})$ da expressão (1.38), dada por:

$$r = \frac{f_{ni} (\mu \pi)^{1/2}}{4} \quad (1.39)$$

O parâmetro r é determinado experimentalmente e é usado para simplificação de notação sendo denominado por: *fração de nêutrons epitérmicos*.

Da expressão (1.38) define-se também outro fator denominado por s , que é dado pela expressão:

$$s = \frac{1}{\sigma_0} \left[\frac{4T}{\pi T_0} \right]^{1/2} \int_{\mu kT}^{\infty} \left[\sigma(v) - \frac{v_0 \hat{\sigma}_m}{v} \right] \frac{dE}{E} \quad (1.40)$$

O intervalo considerado, μkT a ∞ para o cálculo de s , é a região epitérmica e o fator é função da variação da temperatura T e da seção de choque nesse intervalo. Um novo fator s' que é também função da variação T e da seção de choque no intervalo μkT a E_{Cd} deve ser utilizado, em casos em que amostras são irradiadas com e sem cobertura de Cd.

Com isso, a seção de choque efetiva $\hat{\sigma}$ é determinada em função da seção de choque σ_0 pela expressão:

$$\hat{\sigma} = \sigma_0 (g + r s) \quad (1.41)$$

Logo, a taxa de reação por núcleo alvo é dada por:

$$R = n v_0 \sigma_0 (g + r s) \quad (1.42)$$

Isolando-se o fator $n v_0$ obtém-se o fluxo convencional:

$$\phi = \frac{R}{\sigma_0 (g + r s)} \quad (1.43)$$

1.1.3.2 Convenção de Högdahl

Esta é a convenção usualmente empregada em Análise por Ativação Neutrônica. De acordo com Högdahl ^[57, 58] a equação (1.15) pode ser dividida da seguinte forma:

$$R = \int_0^{v_{Cd}} \sigma(v) \phi(v) dv + \int_{v_{Cd}}^{\infty} \sigma(v) \phi(v) dv \quad (1.44)$$

Onde v_{Cd} é a velocidade do nêutron correspondente a energia de corte de Cd (0,55 eV). Para reações (n, γ) sem ressonâncias abaixo de 0,55 eV (o que significa fator de Westcott $g(T) = 1$) a dependência com relação a $1/v$, descrita na equação (1.17) pode ser aplicada para a velocidade do nêutron abaixo de v_{Cd} .

Substituindo a equação (1.17) na (1.44), tem-se:

$$\int_0^{v_{Cd}} \sigma(v) \phi(v) dv = \int_0^{v_{Cd}} \frac{\sigma_0 v_0}{v} \phi(v) dv = \sigma_0 v_0 \int_0^{v_{Cd}} n(v) dv \quad (1.45)$$

onde: $n(v)$ é a densidade de nêutrons na velocidade v .

A definição convencional para o fluxo de nêutrons térmicos ϕ_t é dada por:

$$\phi_t \equiv v_0 \int_0^{v_{Cd}} n(v) dv \quad (1.46)$$

Substituindo ϕ_t em (1.18) tem-se:

$$\int_0^{v_{ca}} \sigma(v) \phi(v) dv = \sigma_0 \phi_t \quad (1.47)$$

A parte da direita da integral da equação (1.44) pode ser escrita como:

$$\int_{v_{ca}}^{\infty} \sigma(v) \cdot \phi(v) dv = \int_{E_{ca}}^{\infty} \sigma(E) \cdot \phi(E) dE \quad (1.48)$$

Para energias maiores que 0,35 eV ^[18,58] o fluxo de nêutron pode ser descrito por:

$$\phi(E) = \frac{\phi(E_{ref})}{(E/E_{ref})^{1+\alpha}} \quad (1.49)$$

Com E_{ref} uma energia escolhida arbitrariamente (usualmente 1 eV), define-se a integral de ressonância I_0 por:

$$I_0(\alpha) = \int_{E_{ca}}^{\infty} \sigma(E) \frac{E_{ref}^\alpha}{E^{1+\alpha}} dE \quad (1.50)$$

E o fluxo epitérmico ϕ_e por:

$$\phi_e \equiv \phi(E_{ref}) E_{ref} \quad (1.51)$$

Usando-se a equação (1.49), obtém-se:

$$\int_{E_{ca}}^{\infty} \sigma(E) \cdot \phi(E) dE = I_0(\alpha) \phi_e \quad (1.52)$$

Logo, pode-se escrever que a taxa de reação por núcleo alvo é dada por:

$$\begin{aligned} R &= \sigma_0 v_0 \int_0^{v_{ca}} n(v) v dv + \phi_e 1eV^\alpha \int_{E_{ca}}^{\infty} \frac{\sigma(E) dE}{E^{1+\alpha}} \\ &= \sigma_0 v_0 n_t + \phi_e I_0(\alpha) \\ &= \phi_t \sigma_0 + \phi_e I_0(\alpha) \end{aligned} \quad (1.53)$$

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

1.1.3.3 Convenção de Menno Blaauw

Essa convenção descreve a taxa de reação (n, γ) em reatores, separando a seção de choque $\sigma(v)$ e a integral de ressonância pura (I_0) e desconsiderando as ressonâncias abaixo de 0,35 eV. Um importante aspecto prático dessa convenção é que as irradiações sob a cobertura de Cd não são necessárias para a determinação de alguns parâmetros. Nessa convenção, a equação (1.15) pode ser escrita da seguinte forma:

$$R = \int_0^{\infty} \frac{\sigma_0 v_0}{v} \phi(v) dv + \int_0^{\infty} \left\{ \sigma(v) - \frac{\sigma_0 v_0}{v} \right\} \phi(v) dv \quad (1.54)$$

Isso significa que a seção de choque é dividida em duas partes. A definição convencional do fluxo de nêutrons total ϕ_{tot} é dada por:

$$\phi_{tot} \equiv v_0 \int_0^{\infty} n(v) dv \quad (1.55)$$

Substituindo-se ϕ_{tot} na parte esquerda da integral da equação (1.55), obtém-se:

$$\int_0^{\infty} \frac{\sigma_0 v_0}{v} \phi(v) dv = \sigma_0 \phi_{tot} \quad (1.56)$$

Se os limites de integração da parte direita da integral da equação (1.55) forem 0 e 0,35 eV, a descrição do fluxo epitérmico, dada na equação (1.50), pode ser usada em lugar de $\phi(v)$. Este é o caso, considerando as reações (n, γ) que não tenham ressonância abaixo ou próximo a 0,35 eV.

A definição da integral de ressonância “pura” $I_0''(\alpha)$ é dada por:

$$I_0''(\alpha) \equiv \int_0^{\infty} \left\{ \sigma(E) - \frac{\sigma_0 v_0}{v} \right\} \frac{E_{ref}^{\alpha}}{E^{1+\alpha}} dE \quad (1.57)$$

Substituindo a equação (1.49) na parte direita da integral da equação (1.54), obtém-se:

$$\int_0^{\infty} \left\{ \sigma(v) - \frac{\sigma_0 v_0}{v} \right\} \phi(v) dv = I_0''(\alpha) \phi_e \quad (1.58)$$

$I_0''(\alpha)$ é idêntico a $I_0(\alpha)$ para reações (n, γ) sem ressonância entre 0,35 e 0,55 eV.

Nessas condições, a taxa de reação por núcleo alvo é dada por:

$$R = \sigma_0 \phi_{tot} + I_0''(\alpha) \phi_e \quad (1.59)$$

Esta fórmula é análoga à equação (1.53), porém com definições ligeiramente diferentes para o fluxo e para a integral de ressonância.

1.1.3.4 Energia de Ressonância Efetiva \bar{E}_r ,

Energia de ressonância efetiva \bar{E}_r , é a energia, hipoteticamente única, do nuclídeo que dá a taxa de ativação real do isótopo, na região epitérmica. Como na maioria das irradiações o fluxo de nêutron epitérmico se afasta do comportamento ideal, ou seja, I/E , a energia de ressonância efetiva, denotada por \bar{E}_r , deve sofrer também alterações dependendo do valor de α usado para modelar o fluxo epitérmico $I/E^{1+\alpha}$, devendo então ser denotada por $\bar{E}_r(\alpha)$.

A expressão analítica que define a energia de ressonância efetiva é dada por^[58]:

$$[\bar{E}_r(\alpha)]^{-\alpha} \equiv \frac{I_0''(\alpha)}{I_0''} \quad (1.60)$$

Fazendo a aproximação $E_r = \bar{E}_r(\alpha)$, a relação entre $I_0(\alpha)$ e I_0 é dada por:

$$I_0(\alpha) = (E_r)^\alpha \left\{ \frac{I_0 - 0,429 \sigma_0}{E_r^\alpha} + \frac{0,429 \sigma_0}{(2\alpha + 1) E_{Cd}^\alpha} \right\} \quad (1.61)$$

com:

$$0,429 = 2(E_0/E_{Cd})^{1/2};$$

$$E_0 = 0,0253 \text{ eV}_e$$

$$E_{Cd} = 0,55 \text{ eV}$$

Supondo que as ressonâncias simples possam ser representadas pela fórmula de Breit-Wigner, uma expressão analítica que apresenta a dependência de $Q_0(\alpha)$ em função dos valores tabelados de $Q_0 = \frac{I_0}{\sigma_0}$ pode ser dada por^[18]:

$$Q_0(\alpha) = \left\{ \frac{Q_0 - 0,429}{E_r^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)E_{Cd}^\alpha} \right\} \quad (1.62)$$

Para um conjunto de valores de α pertencentes a um intervalo limitado pelos valores $-0,1$ e $+0,1$ e usando a função de transmissão de cádmio com energia de corte 0,55 eV, pode-se obter:

$$E_r(\alpha) = \left\{ \frac{Q_0 - 0,429}{Q_0(\alpha) - \frac{0,429}{(2\alpha + 1)(E_{Cd})^\alpha}} \right\}^{1/\alpha} \quad (1.63)$$

A energia média \bar{E} é definida pela integral:

$$\bar{E} = \frac{1}{\alpha_{h1} - \alpha_{h0}} \int_{\alpha_{h0}}^{\alpha_{h1}} E_r(\alpha) d\alpha \quad (1.64)$$

Onde os limites de integração α_{h1} e α_{h0} são respectivamente $-0,1$ e $+0,1$.

O fator α é suposto independente da energia do nêutron e tem a finalidade de corrigir a modelagem do fluxo de nêutrons epitérmicos.

1.1.3.5 Razão de Cádmio

Quando irradiamos uma amostra sob uma cobertura de Cádmio podemos determinar a taxa de reação epitérmica por núcleo alvo R_e por:

$$R_e = \phi_e I_0 \quad (1.65)$$

ou

$$R_e = \phi_e I_0(\alpha) \quad (1.66)$$

A taxa de reação térmica, ou seja, para nêutrons térmicos R_t é a diferença entre a taxa de reação experimental, R , e a taxa de reação R_e , ou seja: $R_t = R - R_e$.

A razão de Cádmiu R_{Cd} é definida por:

$$R_{Cd} = \frac{R}{R_e} = \frac{\phi_t \sigma_0 + \phi_e I_0}{\phi_e I_0} = \frac{\phi_t \sigma_0}{\phi_e I_0} + \frac{\phi_e I_0}{\phi_e I_0} = \left[\frac{f_\phi}{Q_0} \right] + 1 \quad (1.67)$$

Onde: $f_\phi = \frac{\phi_t}{\phi_e}$ e $Q_0 = \frac{I_0}{\sigma_0}$

Ou

$$R_{Cd} = \frac{R}{R_e} = \frac{\phi_t \sigma_0 + \phi_e I_0(\alpha)}{\phi_e I_0(\alpha)} = \frac{\phi_t \sigma_0}{\phi_e I_0} + \frac{\phi_e I_0(\alpha)}{\phi_e I_0(\alpha)} = \left[\frac{f_\phi}{Q_0(\alpha)} \right] + 1 \quad (1.68)$$

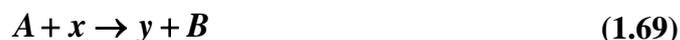
com

$$Q_0(\alpha) = \frac{I_0(\alpha)}{\sigma_0}$$

Deve-se salientar que, 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 sua vizinhança, alterando o fluxo de nêutrons. Desse modo, o aconselhável é que se façam irradiações em sequência, conforme descrito na seção 2.

1.1.4. Atividade induzida por uma reação nuclear

Em uma reação nuclear qualquer:



A velocidade de formação do nuclídeo B é dada por:

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma \phi N_A \quad (1.70)$$

Onde: σ é a seção de choque, ϕ é o fluxo de partículas (por exemplo, nêutrons) e N_A é o número de átomos-alvo irradiados. A equação (1.70) corresponde à taxa de reação, discutida da seção anterior.

Considerando o caso onde o nuclídeo B , formado pela reação nuclear $A(x, y)B$, seja radioativo, deve-se considerar o seu decaimento durante o tempo de irradiação, ou seja:

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma \phi N_A - \lambda_B N_B \quad (1.71)$$

Integrando-se entre os extremos $t = 0$ e $t = t$, e considerando-se a condição inicial $N_B = 0$ para $t = 0$, tem-se:

$$N_B = \frac{\sigma \phi N_A}{\lambda_B} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (1.72)$$

Considerando o valor da atividade A , tem-se:

$$A = -\frac{dN_B}{dt} = \lambda_B N_B \quad (1.73)$$

Logo

$$A(t) = \sigma \phi N_A (1 - e^{-\lambda t}) \quad (1.74)$$

Após o término da irradiação, a atividade induzida segue a lei do decaimento usual.

1.1.5 Determinação do parâmetro α

O comportamento ideal do fluxo de nêutrons epitérmicos é descrito pela função I/E onde E é a energia do nêutron, porém distorções podem alterar esse comportamento, para um caso real. Apesar disto, o espectro ainda pode ser descrito aproximadamente pela função $I/E^{1+\alpha}$ onde α é o parâmetro que permite acompanhar a forma do espectro estudado, conforme mostra a figura 1.4. No presente trabalho foram utilizados três métodos para a determinação do parâmetro α , fazendo uso de amostras irradiadas com e sem cobertura de Cádmio, conforme descrição a seguir.

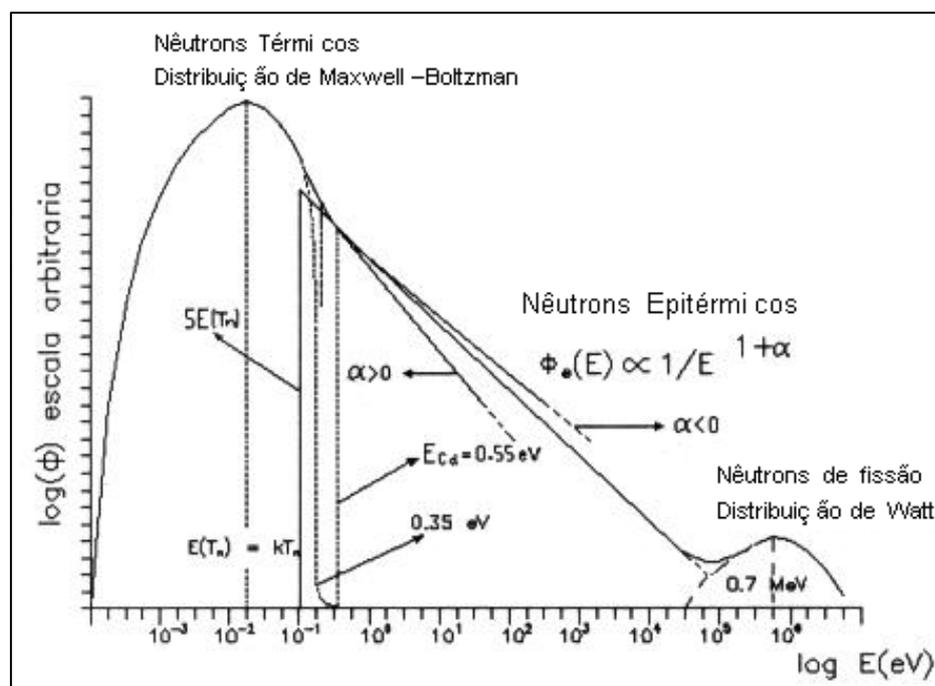


Figura 1.4 - Comportamento do fluxo de nêutrons e do parâmetro α , em um reator nuclear térmico^[18].

1.1.5.1 Método dos Monitores Múltiplos Descobertos

Neste método, um conjunto de n -monitores é irradiado, juntamente com um monitor referência, sem cobertura de Cádmio, e as atividades induzidas são medidas considerando uma curva de eficiência conhecida. Se todos os monitores tem uma

dependência $\sigma(v) \sim I/v$ acima de $\sim 1,5$ eV, α pode ser obtido pela inclinação ($-\alpha$) da curva dada por^[18]:

$$Y_i = a - \alpha X_i \quad (1.75)$$

onde:

$$X_i = \ln \bar{E}_{r,i}$$

e

$$Y = \ln \left\{ (\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} A_i \right\}$$

Com

$$A_i = \frac{\frac{A_{sp,i}}{k_{0,Au(i)}} \varepsilon_{p,i} - \frac{A_{sp,ref}}{k_{0,Au(ref)}} \varepsilon_{p,ref}}{Q_{0,i(\alpha)} \frac{G_{e,i}}{G_{th,i}} - Q_{0,ref(\alpha)} \frac{G_{e,ref}}{G_{th,ref}}} \quad (1.76)$$

Sendo $A_{sp,i}$ e $A_{sp,ref}$ Áreas de picos de absorção total obtidos por espectrometria gama para amostra e para o material de referência respectivamente, $k_{0,Au(i)}$ valor tabelado para o material da amostra e $k_{0,Au(ref)}$ valor tabelado para o material de referência.

No caso de se considerar o número mínimo de monitores nesse processo, ou seja, dois monitores (além do monitor de referência) tem-se o *Método dos Três Monitores Descobertos (Triple Bare Method)*. Assim, α pode ser obtido pela seguinte equação^[18]:

$$(a-b) Q_{0,1}(\alpha) \frac{G_{e,1}}{G_{th,1}} - a Q_{0,2}(\alpha) \frac{G_{e,2}}{G_{th,2}} + b Q_{0,3}(\alpha) \frac{G_{e,3}}{G_{th,3}} = 0 \quad (1.77)$$

Com:

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

e

$$b = \left\{ 1 - \frac{A_{sp,3} k_{0,Au}(1) \varepsilon_{p,1}}{A_{sp,1} k_{0,Au}(3) \varepsilon_{p,2}} \right\}^{-1}$$

Onde:

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

$G_{e,2}, G_{th,2}, k_{0,c}(2)$ e $A_{sp,2}$ referem-se ao isótopo ^{95}Zr (724,2 ou 724,2 + 765,7 keV);

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

Pode-se notar que nos processos acima descritos, a determinação do parâmetro α depende do seu próprio valor, ou seja, para determiná-lo é necessário um valor inicial e sua obtenção se dá por meio de um processo iterativo convergente.

Este método é muito utilizado para a determinação do parâmetro α em razão da sua simplicidade, pois requer apenas irradiações sem a cobertura de cádmio. Entretanto, por ser um método iterativo e este parâmetro estar incluído na equação (1.77) de modo implícito, a obtenção de sua incerteza por propagação com correlação, conforme descrito no início da seção 1.5.2 é um pouco dificultosa. Por esta razão, utilizou-se a propagação pelo método de Monte Carlo, conforme descrito na parte final do item 1.5.2.

1.1.5.2 Método de Monitores Múltiplos Cobertos com Cádmio

Nesta técnica, um conjunto de monitores é irradiado sob uma cobertura de cádmio e as atividades dos radionuclídeos são medidas por meio de um espectrômetro de HPGe, calibrado em eficiência. Considerando que as seções de choque de captura de nêutrons dos monitores se comportem de acordo a lei I/ν na região térmica, então α pode ser obtido pela inclinação ($-\alpha$) da curva dada por^[18]:

$$Y_i = a - \alpha X_i \quad (1.78)$$

onde:

$$X_i = \ln \bar{E}_{r,i}$$

e

$$Y_i = \ln \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} (A_{sp})_{Cd}}{k_{0,Au}(i) \varepsilon_{p,i} F_{Cd,i} Q_{0,i}(\alpha) G_{e,i}} \quad (1.79)$$

onde:

F_{Cd} é o fator de transmissão epitérmica no cádmio;

G_e é o fator de correção para auto-blindagem de nêutrons epitérmicos;

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

O parâmetro α pode ser obtido por meio de um ajuste, aplicando-se o método dos Mínimos Quadrados com Matriz de Covariância.

1.1.5.3 Método da Razão de Cádmio com Monitores Múltiplos

Esta técnica é semelhante à anterior, exceto que, neste caso, dois conjuntos de monitores são preparados. Um conjunto é irradiado com cobertura de cádmio e o outro sem esta cobertura, nas mesmas condições de fluxo de nêutrons. Após as irradiações, a razão de cádmio dos monitores é calculada para cada um dos monitores e o parâmetro α é obtido pela inclinação ($-\alpha$) da curva dada por^[18]:

$$Y_i = a - \alpha X_i \quad (1.80)$$

onde:

$$X_i = \ln \bar{E}_{r,i}$$

e

$$Y_i = \ln \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{(F_{Cd,i} R_{Cd,i} - 1) Q_{0,i}(\alpha) G_{e,i} / G_{th,i}} \quad (1.81)$$

G_{th} é Fator de correção para auto-blindagem de nêutrons térmicos;

R_{Cd} é a razão entre a atividade específica do isótopo irradiado sem cobertura de Cádmiio e a atividade específica do isótopo irradiado com cobertura de Cádmiio;

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

1.1.6 Determinação do parâmetro f_ϕ

1.1.6.1 Método da Razão de Cádmiio

Um dos métodos usados no presente trabalho para a determinação da razão entre os fluxos térmico e epitérmico (f_ϕ), corresponde ao método da razão de cádmio^[18], dado pela expressão:

$$f_\phi = (F_{Cd} R_{Cd} - 1) G_e Q_0(\alpha) / G_{th} \quad (1.82)$$

Por este método, o fator f_ϕ é resultante da extrapolação da função Y descrita na equação (1.81), quando o valor de X tende a zero (inverso do intercepto). Os monitores são irradiados em sequência, com e sem a cobertura de cádmio, e são selecionados alvos com valores dos parâmetros k_0 , Q_0 e \bar{E}_r bem conhecidos.

1.1.6.2 Método dos Monitores Bi-Isotópicos Descobertos

No caso das amostras serem irradiadas sem a cobertura de Cádmiio é possível se determinar o parâmetro f_ϕ de acordo com a expressão dada por:

$$f_\phi = \frac{G_{e,i} \frac{k_{0,c}(1)\epsilon_{p,1}}{k_{0,c}(2)\epsilon_{p,2}} Q_{0,1}(\alpha) - G_{e,2} \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} Q_{0,2}(\alpha)}{G_{th,2} \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} G_{th,1} - G_{th1} \frac{k_{0,c}(1)\epsilon_{p,1}}{k_{0,c}(2)\epsilon_{p,2}}} \quad (1.83)$$

Onde:

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

$G_{e,2}$, $G_{th,2}$, $k_{0,c}(2)$ e $A_{sp,2}$ referem-se ao isótopo ^{95}Zr (724,2 ou 724,2 + 765,7 keV);

Esta metodologia foi utilizada no presente trabalho para a determinação do parâmetro f na análise dos dados obtidos pelo Laboratório de Ativação Neutrônica (LAN) do IPEN, descrito na seção 3.2.

1.2 Interação da Radiação Gama com a Matéria^[59]

As medidas de atenuação de raios X e gama baseiam-se no fato de que a intensidade da radiação decresce ao passar através da matéria. Em tal passagem, para uma pequena espessura Δx , a variação na intensidade ΔJ é proporcional à espessura e a intensidade incidente J . Isto é,

$$\Delta J = -\mu J \Delta x \quad (1.84)$$

Onde:

μ é uma constante de proporcionalidade chamada de coeficiente de atenuação ou seção de choque macroscópica total. Se a radiação é monoenergética, μ é constante e a integração dessa equação fornece a intensidade da radiação transmitida por um material de espessura x :

$$\frac{J}{J_0} = e^{-\mu x} \quad (1.85)$$

onde: J_0 é a intensidade da radiação incidente.

Os três principais processos de interação da radiação gama com a matéria (Efeito Fotoelétrico, Efeito Compton, e Produção-de-Pares) agem de forma independente.

Desse modo, é possível separar o coeficiente de atenuação em três, designados por τ (Fotoelétrico), σ (Compton) e κ (produção de pares):

$$\mu = \tau + \sigma + \kappa \quad (1.86)$$

Um quarto processo, que é o espalhamento coerente (σ_{coe}), também pode contribuir para atenuação do feixe de fótons, embora não transfira energia aos átomos do meio:

$$\mu = \tau + \sigma + \kappa + \sigma_{coe} \quad (1.87)$$

1.2.1 Efeito Fotoelétrico

Para energias abaixo de aproximadamente 100 keV, a incidência maior de interações de fótons X ou gama materiais de alto número atômico Z ocorre por meio do efeito Fotoelétrico. Neste efeito, a energia do fóton $h\nu$ é transferida totalmente para um elétron ligado, o qual abandona o átomo com uma energia igual a do fóton, subtraída da energia de ligação (E_b) da camada K, L, M, etc., do qual é ejetado:

$$E_{e^-} = h\nu - E_b \quad (1.88)$$

Onde: E_{e^-} é a energia cinética do elétron ejetado. A energia restante aparece na forma de raio X característico ou elétron Auger, durante o preenchimento da vacância na camada interna.

Um fóton incidente não pode ser totalmente absorvido por um elétron livre. A absorção total ocorre somente se o elétron estiver ligado ao átomo. Desse modo, o momento é conservado pelo recuo do átomo residual. Os elétrons mais ligados possuem maior probabilidade de absorção por efeito fotoelétrico, sendo que aproximadamente 80% dos processos de absorção fotoelétrica ocorrem na camada $K^{[60]}$, desde que a energia do fóton incidente $h\nu$ exceda a energia de ligação correspondente. O efeito fotoelétrico

possui uma forte dependência com o número atômico (Z^3 ou Z^4) e cai com $1/(h\nu)^3$. Portanto, é um processo dominante em baixas energias.

A absorção fotoelétrica é o processo ideal, quando há interesse em medir a energia do fóton original. Como a energia dissipada por emissão do raio X característicos e elétrons Auger frequentemente é absorvida no meio, um único pico aparece no espectro de energia absorvida, correspondendo a energia dos raios gama incidentes (figura 1.5).

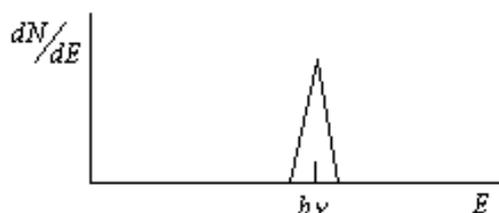


Figura 1.5 - Espectro de energia correspondente à absorção total de um feixe de radiação gama ou X monoenergético ^[59].

1.2.2 Efeito Compton

O efeito dominante em energias intermediárias é o Efeito Compton. Neste processo o fóton é espalhado e comporta-se como uma partícula, com energia $h\nu$ e momento $h\nu/c$. A energia é transferida para um elétron livre que é defletido em uma certa direção, sendo o fóton espalhado com uma energia menor $h\nu'$. A divisão da energia entre os dois depende do ângulo de espalhamento, conforme mostra a figura 1.6. A energia do fóton espalhado $h\nu'$, em termos de ângulo de espalhamento θ , é dada por^[60]:

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + \alpha(1 - \cos \theta)} \quad (1.89)$$

onde:

$$\alpha = \frac{h\nu}{m_0 c^2}$$

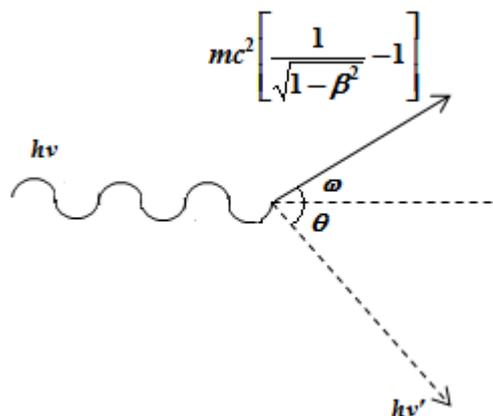


Figura 1.6 - Representação gráfica do Espalhamento Compton.

A energia cinética do elétron de recuo resulta ^[60]:

$$E_{e^-} = h\nu - h\nu' = h\nu \left(1 - \frac{1}{1 + \alpha(1 - \cos \theta)} \right) \quad (1.90)$$

Pode-se deduzir que, para um ângulo de espalhamento muito pequeno ($\theta \cong 0$), $h\nu' \cong h\nu$ e $E_{e^-} \cong 0$. O elétron de recuo Compton possui uma energia muito baixa e o fóton espalhado possui aproximadamente a mesma energia do fóton incidente. Para uma colisão frontal, ou seja, $\theta = \pi$, o fóton incidente é retro-espalhado, enquanto o elétron de recuo segue em ângulos dianteiros. Essa situação representa a energia máxima que pode ser transferida para um elétron em uma interação.

As relações que determinam a seção de choque Compton indicam que o espalhamento Compton é dominante em energias intermediárias de fótons X ou gama. Por outro lado, esse processo está relacionado com a densidade de elétrons no meio. Como essa densidade é aproximadamente constante em diferentes materiais, resulta que a probabilidade de interação por efeito Compton praticamente independe do tipo de material absorvedor.

1.2.3 Produção de Pares

Para um fóton incidente de energia maior do que duas vezes a energia de repouso do elétron (1022,0 keV), um terceiro tipo de interação, conhecido como Produção de

Pares, torna-se importante. Nesta interação, o fóton é completamente absorvido e, em seu lugar, aparece um par elétron-pósitron. O processo de produção de pares ocorre somente para partículas carregadas, principalmente nas proximidades do campo Coulombiano de um núcleo. A energia em excesso, acima de 1022,0 keV, é transferida na forma de energia cinética das partículas^[60]:

$$E_{e^-} + E_{e^+} = h\nu - 2m_0c^2 \quad (1.91)$$

Para energias típicas, o elétron e o pósitron penetram no máximo poucos milímetros antes de perder toda energia cinética no meio absorvedor. Em seguida, o pósitron aniquila-se com um elétron, produzindo dois fótons com energias 511,0 keV, denominados fótons de aniquilação. Os processos de produção de pares e aniquilação normalmente ocorrem dentro do tempo de resolução do detector, e os fótons de aniquilação propagam-se essencialmente em direções opostas, um em relação ao outro.

O pico correspondente à energia cinética total do par (elétron-pósitron) criado pelo fóton incidente está localizado $2m_0c^2$ abaixo da energia do fóton incidente, conforme ilustrado na Figura 1.7. Isto corresponde ao duplo escape dos raios gamas de aniquilação. Outro pico pode ocorrer, chamado escape simples, quando apenas um dos fótons de aniquilação for absorvido no meio. Caso ambos sejam absorvidos, os eventos corresponderão ao pico de absorção total.

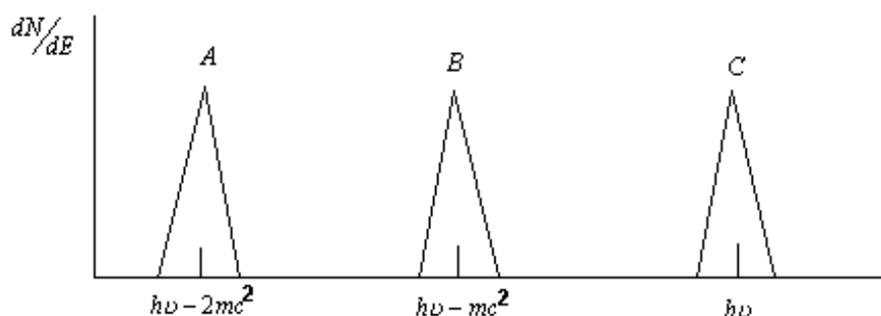


Figura 1.7 - Representação dos picos correspondentes à energia depositada no detector pelo processo de Produção-de-Pares. O pico A corresponde ao *Duplo-Escape*, B corresponde ao *Escape Simples* e C ao *Pico de Absorção Total*.

A detecção da radiação gama é possível pelas interações dos elétrons secundários produzidos pelos processos acima descritos, no meio absorvedor. Os fótons X ou gama produzem elétrons dentro do volume sensível dos detectores, tais como cristais de Iodeto de Sódio, germânio e silício. No germânio e silício as interações produzem pares de elétron-lacuna, que são coletados e dão origem a pulsos, cuja amplitude está relacionada com a energia depositada no cristal.

O comportamento relativo destes três processos (Fotoelétrico, Compton e Produção de Pares) para diferentes materiais absorvedores e energias de fótons X ou gama é ilustrada na figura 1.8. A curva à esquerda representa a energia para a qual a absorção fotoelétrica e espalhamento Compton são igualmente prováveis, em função do número atômico do absorvedor. A curva à direita representa a energia para a qual o espalhamento Compton e produção de pares são igualmente prováveis. Três regiões estão assim definidas na figura, dentro das quais a absorção fotoelétrica, espalhamento Compton, ou a produção de pares é dominante.

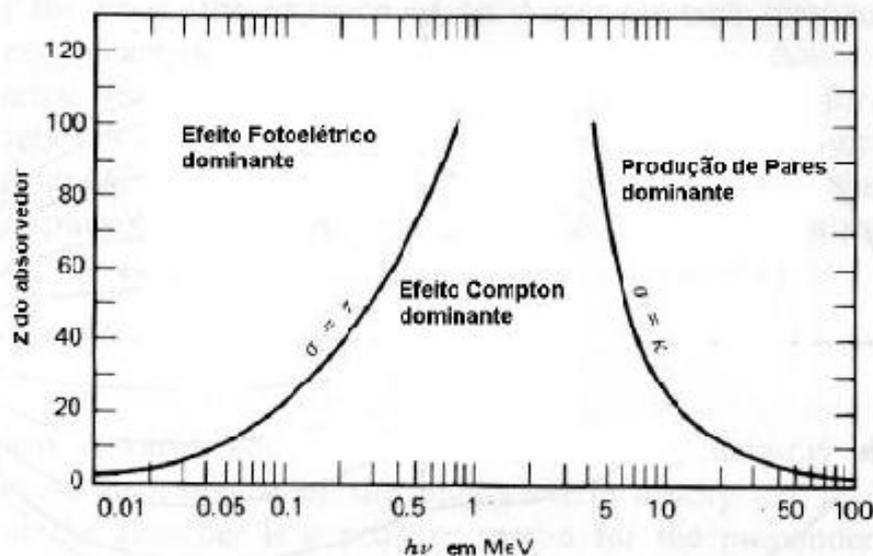


Figura 1.8 - Comportamento relativo dos três principais tipos de interação de fótons X ou gama com a matéria^[59].

1.3 Espectroscopia X e gama com detectores de HPGe

1.3.1 Introdução

Detectores de germânio, produzidos pelo processo de difusão de lítio, são denominados Ge(Li). Foi na década de 60 este tipo de detector tornou-se comercialmente acessível e comum durante cerca de duas décadas. Na década de 80 houve o surgimento dos detectores de germânio hiperpuro (HPGe) ^[59] que mostrou ser uma alternativa vantajosa em relação aos detectores de Ge(Li), descontinuando assim a sua produção em favor do tipo HPGe.

Os detectores de HPGe são detectores semicondutores e apresentam grande poder de resolução em energia. Normalmente possuem profundidade de depleção de 1 cm ou mais. Para medições em baixa energia, coloca-se uma janela fina na capa protetora do detector, feita de alumínio ou berílio, para que a atenuação dos raios X e gamas de baixa energia seja mínima.

A sua excelente resolução em energia torna este tipo de detector ideal para aplicação em espectroscopia gama ou X. A figura 1.9 apresenta um espectro comparativo da altura do pulso de um cintilador NaI(Tl) e um detector de germânio para espectros de fótons incidentes idênticos. A superioridade do sistema de germânio em resolução de energia permite a separação de muitas energias de fótons próximas, o qual permanecem não resolvidos no espectro de NaI(Tl). Os detectores de NaI(Tl) podem ser vantajosos, quando a separação entre os picos é grande e necessita-se de uma eficiência de detecção maior.

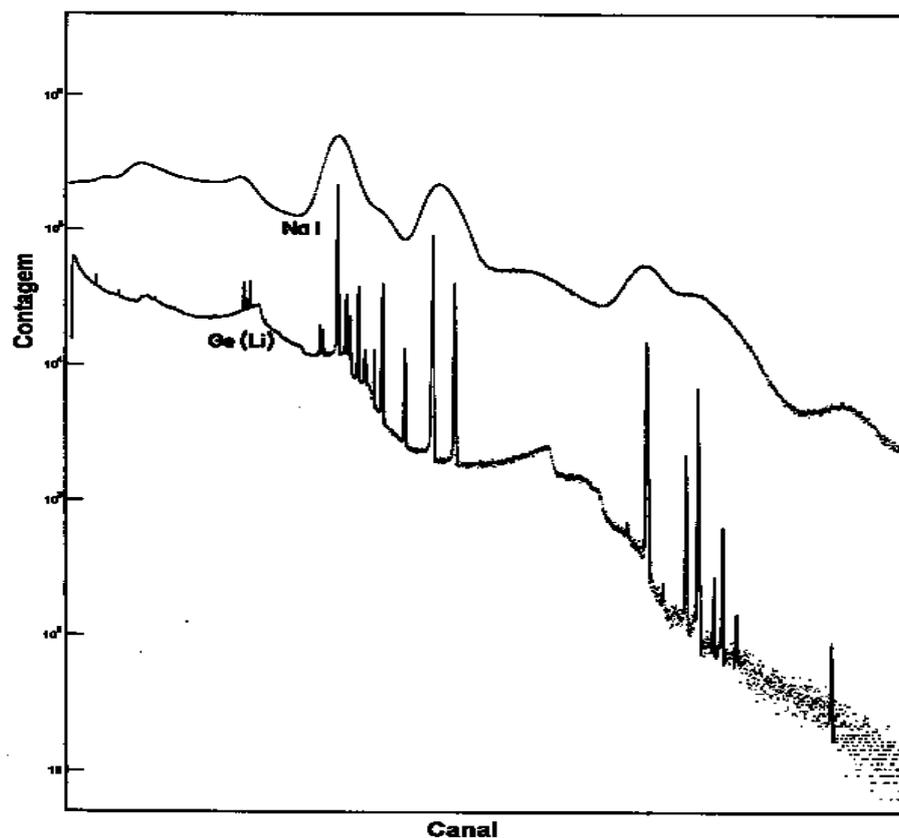


Figura 1.9 - Espectro de altura de pulso comparativo, usando um cintilador de NaI(Tl) e um detector de Ge(Li) ^[59]. O espectro refere-se aos radionuclídeos ^{108m}Ag e ^{110m}Ag.

1.3.2 Eficiência de detecção

Usualmente, consideram-se dois tipos de eficiências: eficiência total (ϵ_T) e eficiência de pico (ϵ_p), definidas pelas seguintes relações:

$$\epsilon_T = \frac{\text{número de gamas detectados}}{\text{número de gamas emitidos}} \quad e$$

$$\epsilon_p = \frac{\text{número de gamas totalmente absorvidos no detector}}{\text{número de gamas emitidos}}$$

Estas eficiências podem ser determinadas de modo *absoluto* (com fontes radioativas calibradas) ou de modo *relativo* (com fontes não calibradas).

Em medidas de atividade de uma fonte radioativa, ou da probabilidade de emissão gama por decaimento de um radionuclídeo, um dos parâmetros mais importantes é a eficiência de detecção, no intervalo de energia de interesse e na geometria do arranjo experimental. Neste caso, a eficiência denominada eficiência de pico, corresponde à razão entre o número de eventos registrados no pico de absorção total, e o número de fótons emitidos pela fonte, sendo representada pela relação:

$$\varepsilon_p = \frac{N_p(E)}{I_\gamma(E)AT} f_i \quad (1.92)$$

onde:

N_p é a área sob o pico de absorção total para a energia gama considerada;

I_γ é a probabilidade da emissão gama por decaimento da linha considerada;

A é a atividade da fonte;

T é o tempo de medida;

f_i este fator inclui os fatores de correção para decaimento radioativo, geometria de detecção, atenuação na fonte, tempo morto e soma em cascata, conforme descritos na seção 1.3.4.

Esta eficiência é obtida pela medida de fontes radioativas padrões, ou seja, que possuem atividade e intensidades gama por decaimento bem conhecidas. A eficiência é ajustada em função da energia por meio de parametrização adequada, que também é um dos objetivos do presente trabalho. Em baixas energias o efeito responsável pelos eventos que contribuem para o pico de absorção total em detectores de HPGe é a absorção fotoelétrica. As interações múltiplas, tais como espalhamento Compton, seguidos por absorção fotoelétrica, são as que contribuem de modo predominante ao pico de absorção total em energias mais elevadas conforme mostra a figura 1.10. O pico de absorção total em energias superiores a 1022,0 keV passa a ter uma contribuição adicional pelo efeito de produção-de-pares, para as interações onde os fótons de aniquilação sejam totalmente absorvidos no volume sensível do detector. Para absorção parcial dos fótons de aniquilação, os eventos dão origem aos picos de escapes simples e duplo.

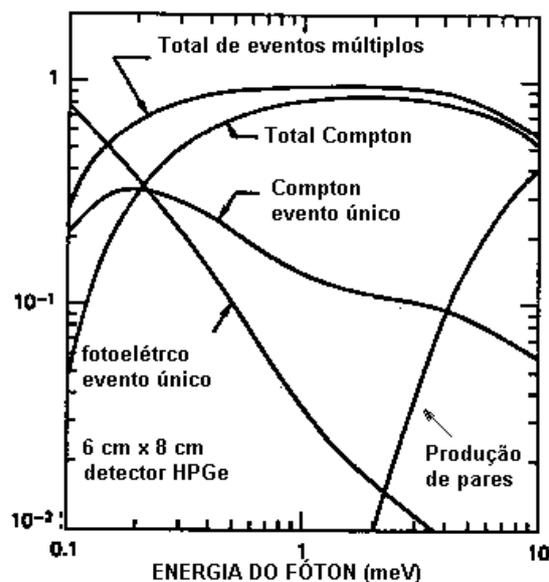


Figura 1.10 - Contribuição dos diferentes mecanismos de perda de energia^[59] nos eventos de pico de absorção total.

O cálculo das eficiências de detecção para cada linha de emissão das fontes padrões medidas, foi efetuado por meio do programa ALPINO^[61]. Este programa, elaborado em linguagem FORTRAN, calcula a atividade ou eficiência de detecção (segundo opções de entrada) para cada energia gama da fonte medida, diretamente a partir do espectro obtido. As opções que permitem operar este programa são:

- a) calcula a eficiência ou atividade;
- b) podem ser ingressados os parâmetros da curva de calibração em eficiência ou o valor da eficiência de uma energia de transição gama específica;
- c) área sob o pico de absorção total (calculada ou incluída como dado de entrada);
- d) canais que delimitam o pico e as contagens de fundo (o programa localiza o centróide do pico de absorção total, determina a largura a meia altura e os canais, ou ingressam-se os valores desejados para o cálculo das áreas);
- e) correção do tempo morto (é calculado pelo programa ou especifica-se a mesma);
- f) subtração ou não da contagem de fundo.

1.3.3 Área sob o pico de absorção total

No presente trabalho, não houve necessidade de se determinar a centróide do pico com grande exatidão. O objetivo principal foi obter a área líquida do pico de absorção total. Para isto foi utilizado o método de integração numérica. É um método simples, utilizado em espectroscopia gama no Physikalisch Technische Bundesanstalt (PTB), Alemanha ^[62], para a determinação de áreas líquidas. Na versão 1.0 do programa, este método é ilustrado na figura 1.11.

No programa ALPINO^[61], a centróide é identificada por meio da calibração de canais em função da energia. As posições dos canais (K_i) que definem as regiões de contagem de fundo e de pico são dadas por:

K_p	canal da centróide,	
K_1	início da contagem de fundo =	$K_p - (h_1 FWHM)$;
K_2	início do pico de absorção total =	$K_p - (h_2 FWHM)$;
K_3	fim do pico de absorção total =	$K_p + (h_3 FWHM)$;
K_4	fim da contagem de fundo =	$K_p + (h_4 FWHM)$.

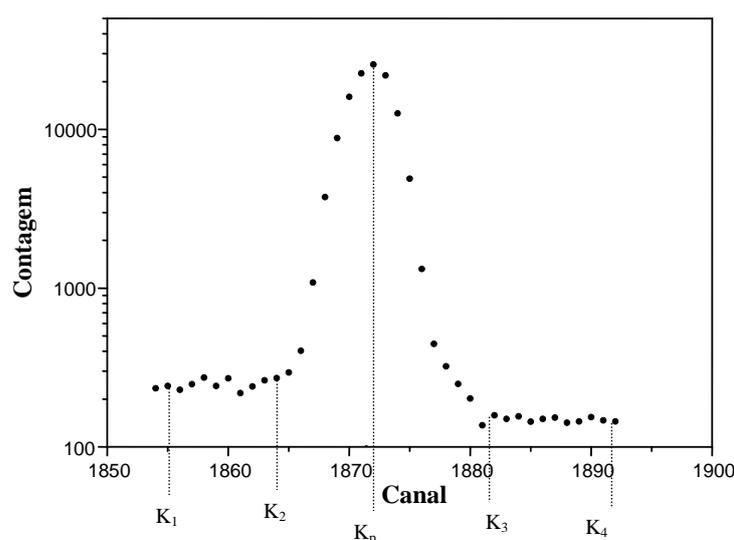


Figura 1.11 - Esquema dos parâmetros utilizados no método de integração numérica da área sob o pico de absorção total.

Os valores adotados para h_1 , h_2 , h_3 e h_4 são escolhidos de modo que a região de interesse (K_2 a K_3) cubra totalmente o pico de absorção total e que a região de contagem de fundo esteja distante de picos vizinhos. Na maioria dos casos aplicados ao presente trabalho, os valores adotados foram 3, 2, 2 e 3, respectivamente. Para os casos das medidas de materiais de referência, onde há uma grande quantidade de picos próximos entre si, utilizou-se um valor de $h_1 = h_4 = 2,2$.

A área sob o pico de absorção total (N_p) foi calculada pela expressão:

$$N_p = \sum_{K_2+1}^{K_3-1} C_i - (N_B F_K) \quad (1.93)$$

onde:

C_i contagem do canal i ;

N_B área sob o espectro das contagens de fundo, dada por:

$$N_B = \sum_{K_1}^{K_2} C_i + \sum_{K_3}^{K_4} C_i \quad (1.94)$$

F_K fator que leva em consideração o número de canais do pico de absorção total e o número de canais da região do fundo.

1.3.4 Fatores de correção

1.3.4.1 Decaimento Radioativo

A atividade A de uma fonte radioativa num determinado instante é função da atividade inicial, A_0 , do tempo t_i transcorrido entre a sua calibração ou produção e o instante de medida; do tempo de medida e da meia-vida do radionuclídeo. A expressão utilizada para esta correção é dada por:

$$A_0 = A e^{\lambda t_e} \frac{\lambda t_m}{1 - e^{-\lambda t_m}} \quad (1.95)$$

onde:

A é a atividade medida;

λ é a constante de desintegração = $\frac{\ln 2}{T_{1/2}}$ onde $T_{1/2}$ é a meia vida do radionuclídeo;

t_e é o tempo transcorrido desde a data de referência até o instante do início da medida;

t_m é o tempo de duração da medida.

1.3.4.2 Geometria de Detecção

A eficiência do detector de HPGe varia com a distância fonte-detector. Como as fontes padronizadas tem geometria ligeiramente diferente das amostras radioativas a serem analisadas, a eficiência da amostra deve ser corrigida para a posição da fonte radioativa padrão. O fator de correção foi calculado por meio de um programa de Monte Carlo, MCFIC^[63] ou MCNPX^[64], por meio da seguinte expressão:

$$f_g = \frac{\varepsilon_p(\text{padrão})}{\varepsilon_p(\text{amostra})} \quad (1.96)$$

onde: ε_p corresponde à eficiência do pico de absorção total para a energia de interesse.

1.3.4.3 Fator de atenuação

Para a atenuação da radiação gama na própria amostra, o fator de correção é dado por:

$$f_{at} = \exp \left[\sum x_i \mu_i \right] \quad (1.97)$$

onde:

μ é o coeficiente de atenuação linear total^[65] do material i que envolve a fonte radioativa e x_i é a espessura do material i .

1.3.4.4 Tempo morto e empilhamento de pulsos

Para corrigir o efeito do tempo morto e de empilhamento de pulsos foi adotado o método de pulsador^[59,62]. Pulsos eletrônicos de um pulsador de precisão com frequência baixa (60 Hz) e bem conhecida são enviados a um pré-amplificador juntamente com os pulsos provenientes do detector. Uma região do espectro acumulado é selecionada, normalmente na parte final do espectro, de modo que o pico do pulsador não interfira com nenhum outro pico existente no espectro. Uma vantagem deste método é que ele corrige não apenas as perdas por tempo morto, mas também o empilhamento de pulsos, uma vez que estes dois efeitos ocorrem também com os pulsos do pulsador. Neste método, o tempo de medida corresponde ao tempo total de relógio (*clock-time*).

Pelo número de contagens do pico do pulsador, pode-se calcular esta correção por meio da relação:

$$f_{\tau} = \frac{S_{p\ ref}}{S_{p\ fonte}} \quad (1.98)$$

onde:

$S_{p\ ref}$ é a área de referência do pico do pulsador (60 cps) e

$S_{p\ fonte}$ é a área do pico do pulsador no espectro da fonte (em cps).

1.3.4.5 Correção para efeito de soma em cascata

Um problema que se apresenta na calibração em eficiência é a detecção simultânea de outras radiações gama, que ocorrem em cascata com o gama a ser medido. Se estas radiações em cascata forem detectadas durante um intervalo de tempo menor que o tempo de resolução do espectrômetro, o pulso resultante corresponderá à soma dos pulsos individuais. Desta forma, o número de contagens sob o pico de absorção total será

alterado, crescendo ou diminuindo, dependendo da localização da transição gama no esquema de desintegração considerado. Este efeito é geralmente denominado *soma em cascata* ou *soma em coincidência*^[63,66].

Este efeito é função das eficiências total e de pico para os gamas envolvidos na cascata. No presente trabalho, estas eficiências foram calculadas numericamente pelo Método de Monte Carlo, utilizando o programa **MCEFIC**^[63,66]. Outro algoritmo de Monte Carlo, denominado **COINCIG**^[63,66], acompanha o caminho no esquema de desintegração desde o estado inicial do radionuclídeo precursor, até o estado fundamental do núcleo filho. Cada etapa no esquema de desintegração é selecionada por meio de números aleatórios, levando em conta as probabilidades de transição e coeficientes de conversão interna. As transições selecionadas são identificadas apropriadamente de acordo com o tipo de interação que tenha ocorrido, dando origem a eventos de absorção total ou parcial dentro do cristal do detector. Uma vez que o estado final tenha sido atingido, as transições selecionadas são contabilizadas para verificar quais pares de transições ocorreram simultaneamente. Com este procedimento foi possível calcular o efeito de soma em cascata para todas as transições gama utilizadas na calibração.

1.3.5 Atividade das amostras

Uma vez determinada a curva de eficiência do espectrômetro de HPGe, a atividade de uma amostra radioativa de interesse foi obtida isolando-se a variável A na equação (1.92), e é calculada por:

$$A = \frac{N_p(E)}{I_\gamma(E)\epsilon_p T} f_i \quad (1.99)$$

Os parâmetros indicados na equação (1.99) são os mesmos apresentados na equação (1.92). Toda a metodologia descrita no item 1.3.4 também foi aplicada para determinação da atividade da amostra a ser analisada. A eficiência utilizada na equação (1.99) foi obtida por interpolação polinomial, conforme descrito nas seções 1.5.4 e 2.2.

1.4 Método de Análise por Ativação Neutrônica

1.4.1 Introdução

Uma reação nuclear induzida por nêutrons de grande importância é a de captura de nêutrons (n, γ). Neste processo, o núcleo composto libera a energia de excitação através da emissão de radiação eletromagnética. Irradiando-se uma amostra em um campo de nêutrons, a atividade do radionuclídeo induzida por meio de uma reação nuclear pode ser considerada como a medida da quantidade de um determinado elemento nessa amostra. Em geral, a irradiação é feita com nêutrons térmicos e a radioatividade resultante é medida usando-se a espectrometria dos raios gama emitido por cada radioisótopo. Este método é denominado Análise por Ativação Neutrônica (AAN)^[1,2].

A Análise por Ativação Neutrônica é um método de análise não destrutivo que permite, em alguns casos, determinar as concentrações de muitos elementos numa única amostra. Este método é aplicável em quase todo campo de interesse científico. É capaz de determinar concentrações na ordem de partes por bilhão (ppb) ou superior.

Para se realizar uma análise por ativação neutrônica (AAN) são necessários:

- Fonte de nêutrons (reator nuclear ou outro tipo de fonte intensa de nêutrons);
- Instrumentação para medir a radioatividade gama;
- Conhecimento detalhado das reações induzidas por nêutrons com os núcleos dos átomos da amostra.

1.4.2 Método Análise por Ativação Neutrônica Comparativa

Esse método se dá por meio da irradiação conjunta de uma amostra a ser analisada e uma amostra certificada (padrão) sob as mesmas condições de irradiação, tais como: tempo de irradiação e fluxo de nêutrons.

Sejam consideradas as duas atividades induzidas, na amostra e no padrão:

$$A_a = \frac{m_a \Theta N_A \sigma \phi}{M} (1 - e^{-\lambda t_{irr}}) \quad \text{1.100}$$

e

$$A_p = \frac{m_p \Theta N_A \sigma \phi}{M} (1 - e^{-\lambda t_{irr}}) \quad \text{1.101}$$

onde: o índice *a* se relaciona a amostra a ser analisada e o índice *p* ao padrão;

m_i é a massa da amostra *i*;

Θ é a abundância isotópica;

N_A é o Número de Avogadro;

σ é a seção de choque para a reação considerada;

M é a massa Molar;

ϕ é o fluxo de nêutrons;

λ é a constante de desintegração do radionuclídeo formado e

t_{irr} é o tempo de irradiação.

Da razão entre essas atividades, tem-se:

$$m_a = m_s \frac{A_a}{A_p} \quad \text{1.102)$$

Ou seja, conhecidas as duas atividades e a massa do padrão, determina-se a massa da amostra de interesse. Em razão da sua simplicidade, este método é capaz de atingir um bom grau de exatidão.

O método comparativo, mesmo tendo uma boa exatidão, é pouco prático para análises multielementares de grande número de amostras, pois se torna necessária a preparação e a medição de uma quantidade significativa de padrões multielementares.

Neste processo, muito tempo é despendido, podendo introduzir várias fontes de erros. Além disso, o uso de materiais de referência acarreta alguns problemas como alto custo, disponibilidade limitada e a baixa exatidão e precisão de valores certificados para diversos elementos.

1.4.3 Método k_0 de Análise por Ativação Neutrônica

Outro método de AAN, atualmente muito empregado em laboratórios pelo mundo todo é conhecido como o Método k_0 . Esse método apresenta uma grande vantagem em relação ao método comparativo, pois as concentrações dos elementos são calculadas em relação a um único comparador (usualmente Au) e não requer a preparação de padrões individuais para cada elemento analisado.

O fator k_0 de um isótopo analisado relativo ao comparador é definido pela relação:

$$(k_{0,Au})_a = \frac{M_{Au} \Theta_a \sigma_{0,a} \gamma_a}{M_a \Theta_{Au} \sigma_{0,Au} \gamma_{Au}} \quad \text{1.103)}$$

Onde: M_x , Θ_x , σ_x e γ_x correspondem, respectivamente, à massa Molar, abundância isotópica, seção de choque para nêutrons térmicos e probabilidade de emissão gama por desintegração para a transição considerada.

O fator k_0 para a maioria dos elementos, que podem ser determinados via AAN, foram obtidos experimentalmente com boa exatidão e são encontrados na literatura^[17, 23-26]. A fórmula utilizada para determinar-se a concentração em massa do elemento, irradiado sem nenhuma cobertura, é dada por^[18]:

$$c_a = \frac{\left(\frac{N_p / t_m}{SDC} \right)_a \varepsilon_{p,Au} [f_{\phi,i} + Q_{0,Au}(\alpha)] m_{Au}}{\left(\frac{N_p / t_m}{SDC} \right)_{Au} \varepsilon_{p,a} [f_{\phi,i} + Q_{0,a}(\alpha)] m_a (k_{0,Au})_a} \quad \text{1.104)}$$

ou

$$c_a = \frac{(A_{sp})_a \varepsilon_{p,Au} [f_{\phi,i} + Q_{0,Au}(\alpha)] m_{Au}}{(A_{sp})_{Au} \varepsilon_{p,a} [f_{\phi,i} + Q_{0,a}(\alpha)] m_a (k_{0,Au})_a} \quad \text{1.105)}$$

Onde: N_p é a área do pico de absorção total da linha gama considerada (corrigida para tempo morto, fator geométrico, soma em cascata, etc); t_m tempo de medida; $S = 1 - \exp(-\lambda t_{irr})$, com t_{irr} : tempo de irradiação; $D = \exp(-\lambda t_d)$, com t_d : tempo de decaimento; $C = [1 - \exp(-\lambda t_m)] / \lambda t_m$, com t_m : tempo de medida; m massa da amostra e do comparador irradiados; λ constante de desintegração do radionuclídeo correspondente; f_{ϕ} razão entre os fluxos de nêutron térmico e epitérmico; ε_p eficiência de detecção de pico para a energia E_{γ} ; $Q_0 = I_0 / \sigma_0$, onde σ_0 é a seção de choque de captura para nêutrons térmicos e I_0 é a integral de ressonância; α parâmetro relacionado com a distribuição de fluxo de nêutrons epitérmicos, aproximadamente dada por $1/E^{1+\alpha}$. Os subscritos “a” e “Au” referem-se à amostra e ao ouro, respectivamente.

1.4.4 Determinação dos fatores k_0 e Q_0 para reações de interesse

Recentemente, uma inconsistência foi observada entre os valores de k_0 para as reações $^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$ e $^{68}\text{Zn}(n,\gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$, apresentados nas referências *Atomic and Nuclear Data Tables*^[24] e *Atlas of Neutron Resonances*^[70]. Este fato motivou a determinação dos valores de k_0 e Q_0 , para estas reações, no presente trabalho. Estes valores foram obtidos experimentalmente e comparados com os da literatura, conforme descrito na seção 3.1.5.

Os fatores k_0 e Q_0 para uma grande quantidade de elementos são encontrados na literatura com boa exatidão. Entretanto, alguns não apresentam a exatidão requerida ou seus valores divergem em fontes distintas da literatura. Nestes casos, o parâmetro k_0 pode ser determinado pelo Método da Subtração Cádmica, pela seguinte expressão^[18]:

$$k_{0,i} = \frac{A_{sp,i} - [(A_{sp,i})_{Cd} / F_{Cd,i}] G_{th,c} \varepsilon_c}{A_{sp,c} - [(A_{sp,c})_{Cd} / F_{Cd,c}] G_{th,i} \varepsilon_i} \quad \text{1.106)}$$

onde: $(A_{sp})_i = \left(\frac{N_p / t_m}{SDC} \right)_i$

para Q_0 , pode-se utilizar a Razão de Cádmiu, por meio da expressão^[18]:

$$Q_{0,i}(\alpha) = \frac{(F_{Cd,c} R_{Cd,c} - 1) G_{th,i} G_{e,c}}{(F_{Cd,i} R_{Cd,i} - 1) G_{th,c} G_{e,i}} \cdot Q_{0,c}(\alpha) \quad \text{1.107}$$

A relação entre $Q_{0,i}(\alpha)$ e Q_0 é dada por^[18]:

$$Q_{0,i}(\alpha) = \frac{Q_{0,i} - 0,429}{(\bar{E}_{r,i})^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)(0,55)^\alpha} \quad \text{1.108}$$

1.5 Tratamento Estatístico dos Dados

1.5.1 Variância e Covariância

Dada uma variável aleatória contínua y , define-se formalmente seu valor esperado por:

$$y_0 = \int_{-\infty}^{\infty} y f(y) dy \quad \text{1.109}$$

Esse valor esperado é entendido como um “centro de distribuição de probabilidades”. A variância de y é definida por:

$$\sigma_y^2 = \int_{-\infty}^{+\infty} (y - y_0)^2 f(y) dy \quad \text{1.110}$$

Onde: $f(y)$ é a função densidade de probabilidade associada à variável aleatória contínua y . Caso a variável aleatória assuma somente valores discretos, a mesma é definida como função de probabilidade. No caso de ciências experimentais, a variável aleatória é o dado experimental, podendo ser um resultado direto de um experimento, resultado de um ajuste, etc^[68]. Esses dados experimentais podem assumir diferentes valores com diferentes probabilidades.

A função $f(y)$ permite calcular a probabilidades de um dado experimental ter seu valor entre y_a e y_b , ou seja,

$$P(y_a < y < y_b) = \int_{y_a}^{y_b} f(y) dy \quad \text{1.111}$$

A função densidade de probabilidade tem as seguintes características:

i) $f(y) \geq 0$

ii) $\int_{-\infty}^{\infty} f(y) dy = 1$

No caso de uma variável discreta, em vez das equações (1.109) e (1.110), tem-se:

$$y_0 = \sum y_i p(y_i) \quad \text{1.112}$$

e

$$\sigma_y^2 = \sum (y_i - y_0)^2 p(y_i) \quad \text{1.113}$$

Onde i assume todos os valores de maneira que todos os valores possíveis da variável sejam considerados.

A Covariância verifica a relação que há entre duas variáveis. Caso a covariância seja nula, dizemos que as variáveis são independentes, caso contrário, as variáveis apresentam determinada dependência entre si. Quando se pretende preservar todo conteúdo estatístico dos resultados de um experimento, a covariância é de extrema importância. De maneira análoga à definição da variância, a covariância entre duas variáveis y_1 e y_2 pode ser definida como:

$$cov(y_1, y_2) = \langle (y_1 - y_{01})(y_2 - y_{02}) \rangle \quad \text{1.114}$$

Onde o símbolo $\langle \rangle$ representa o valor esperado das variáveis internas.

1.5.2 Propagação de erros

A propagação de erros corresponde à estimativa da variância de uma função a partir da variância e covariâncias de suas variáveis. Considerando uma função z de variáveis aleatórias independentes y_1, y_2, \dots, y_n e supondo que se queira determinar sua variância a

partir da variância de y , deve-se expandir linearmente $z(y)$ em torno de y_0 . Para isso calcula-se o valor esperado de z , $\langle z \rangle$.

A expansão de $z(y)$ em torno de y_0 até primeira ordem é:

$$z(y) \cong z(y_0) + \left. \frac{dz}{dy} \right|_{y_0} (y - y_0) \quad \text{1.115}$$

Logo o valor esperado de $z(y)$ é:

$$z_0 = \langle z(y) \rangle \cong z(y_0) + \left. \frac{dz}{dy} \right|_{y_0} \langle (y - y_0) \rangle = z(y_0) \quad \text{1.116}$$

De maneira análoga, usando-se a mesma expressão linear para calcular $\sigma_z^2 = \langle (z - z_0)^2 \rangle$, pode se concluir que:

$$\sigma_z^2 = \langle (z - z_0)^2 \rangle \cong \left\langle \left(\left. \frac{dz}{dy_0} \right) (y - y_0) \right)^2 \right\rangle = \left(\left. \frac{dz}{dy_0} \right) \right)^2 \langle (y - y_0)^2 \rangle = \left(\left. \frac{dz}{dy_0} \right) \right)^2 \sigma_y^2 \quad \text{1.117}$$

Supondo que $z_1(y_1, y_2)$ e $z_2(y_1, y_2)$ sejam duas funções dependentes de duas grandezas experimentais y_1 e y_2 , das quais se conhece as variâncias, $\sigma_{y_1}^2$ e $\sigma_{y_2}^2$ e a covariância entre elas $cov(y_1, y_2)$, pode-se mostrar que:

$$\sigma_{z_1}^2 \cong \left(\frac{\partial z_1}{\partial y_{01}} \right)^2 \sigma_{y_1}^2 + \left(\frac{\partial z_1}{\partial y_{02}} \right)^2 \sigma_{y_2}^2 + 2 \left(\frac{\partial z_1}{\partial y_{01}} \right) \left(\frac{\partial z_1}{\partial y_{02}} \right) cov(y_1, y_2) \quad \text{1.118}$$

Portanto, a variância de z_1 (e de maneira análoga a variância de z_2) depende das variâncias de y_1 e y_2 como também da covariância entre elas. A equação (1.118) mostra a importância da covariância que, ser for desconsiderada, podem-se obter estimativas errôneas das variâncias, uma vez que as suas variáveis são covariantes entre si.

Um modo alternativo, em relação à equação (1.118), de efetuar a propagação de erros com correlação pode ser aplicado, utilizando o método de Monte Carlo. Neste caso, as grandezas y_i são variadas aleatoriamente em torno do seu valor nominal, por meio de uma função normal de média igual à zero e desvio padrão igual à incerteza estimada para a grandeza y_i . Esta variação produzirá uma variação correspondente na função $z(y_i)$ reproduzindo a interdependência, e portanto as correlações, entre as variáveis envolvidas.

Cada valor $z_j(y_j)$, está associado a um vetor y_j , dado por:

$$y_j = y_i + \sigma_i f_m \quad (1.119)$$

onde:

y_i corresponde ao valor nominal da grandeza de ordem i ;

σ_i corresponde à incerteza na grandeza y_i (um desvio padrão) e

$f_{m,j}$ é a função distribuição Normal, de média zero e desvio padrão unitário.

Para a geração da função distribuição Normal foi utilizada a rotina descrita por William et al.^[67], dada por:

$$\begin{aligned} f_{m,1} &= \sqrt{-2 \ln(x_1)} \cos(2\pi x_2) \\ f_{m,2} &= \sqrt{-2 \ln(x_1)} \sin(2\pi x_2) \end{aligned} \quad (1.120)$$

Onde: x_1 e x_2 são números aleatórios entre 0 e 1 e

$f_{m,1}$ e $f_{m,2}$ são dois valores independentes gerados para a função f_m .

A partir dos valores de z_j , calculou-se a média e o desvio padrão associado à função z . Este procedimento foi utilizado para a determinação de α por meio do método dos Três Monitores Descobertos, descrito na seção 1.1.5.1. Uma limitação deste método é que ele não inclui uma possível correlação entre variáveis diferentes. A influência desta limitação nos resultados para a obtenção do parâmetro α é discutida na seção 3.2.3.

1.5.3 Matriz de Covariâncias

Matriz de covariância é uma forma compacta de se escrever as variâncias e covariâncias. Se considerarmos n grandezas y_1, y_2, \dots, y_n , a matriz de covariância dessas grandezas é definida por:

$$V_y = \begin{bmatrix} \sigma_1^2 & cov(y_1, y_2) & \cdots & cov(y_1, y_n) \\ cov(y_1, y_2) & \sigma_2^2 & \cdots & cov(y_2, y_n) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ cov(y_1, y_n) & cov(y_2, y_n) & \cdots & \sigma_n^2 \end{bmatrix} \quad (1.121)$$

Onde: os termos da diagonal são as variâncias das respectivas grandezas e os termos fora dela são as covariâncias entre as grandezas. A matriz de covariância é simétrica, pois pela definição da covariância pode-se observar que $cov(y_i, y_j) = cov(y_j, y_i)$.

Quando se pretende calcular as variâncias e covariâncias de grandezas dependentes de outras grandezas cujas variâncias e covariâncias são conhecidas, tais como as m equações $z_1(y_1, y_2, \dots, y_n)$, $z_2(y_1, y_2, \dots, y_n)$, $\dots, z_m(y_1, y_2, \dots, y_n)$, pode-se fazer uso da seguinte fórmula^[68]

$$V_z \cong D V_y D^t \quad (1.122)$$

Onde: t simboliza transposição e D é a matriz de planejamento definida por:

$$D = \begin{bmatrix} \partial z_1 / \partial y_{01} & \partial z_1 / \partial y_{02} & \cdots & \partial z_1 / \partial y_{0n} \\ \partial z_2 / \partial y_{01} & \partial z_2 / \partial y_{02} & \cdots & \partial z_2 / \partial y_{0n} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \partial z_m / \partial y_{01} & \partial z_m / \partial y_{02} & \cdots & \partial z_m / \partial y_{0m} \end{bmatrix} \quad (1.123)$$

1.5.4 Ajuste de Parâmetros de Curvas por Mínimos Quadrados

Considerando um conjunto de dados contendo n pares de valores (x, y) obtidos numérica ou experimentalmente, se o objetivo é calcular algum valor y que não esteja no conjunto de dados, é necessário então ajustar uma função $y = f(x)$ que permita determinar esse valor. Um dos métodos que permite a determinação dessa função é denominado Método dos Mínimos Quadrados.

Se for considerado uma equação que relaciona a variável dependente y com a variável independente x pela expressão $\hat{y} = f(x)$ onde \hat{y} é o valor aproximado de y , o Método dos Mínimos Quadrados permite determinar a função $\hat{y} = f(x)$ que melhor se ajusta aos dados, pois é ele que minimiza o somatório S dos desvios quadráticos.

$$S = \sum_{i=1}^n \delta^2 = \sum_{i=1}^n (y_i - \hat{y})^2 \quad \text{1.124)}$$

Uma metodologia de se analisar de forma mais detalhada esse processo de ajuste se dá por meio do formalismo matricial^[68]. Neste método, o vetor Y é dado por

$$Y = X A_0 + e, \quad \text{1.125)}$$

Onde:

Y é o vetor de dados;

X é a matriz denominada de planejamento, dada por:

$$x_{ij} = \frac{\partial y_i}{\partial a_{0j}}$$

A_0 é o vetor dos parâmetros a serem ajustados e

e é o vetor de erros.

Por meio das derivadas da equação (1.125), em relação a cada parâmetro, igualadas a zero, obtém-se os valores ajustados do vetor \tilde{A} , dado por:

$$\tilde{A} = (X^t V^{-1} X)^{-1} X^t V^{-1} Y \quad \text{1.126)}$$

Onde V é a matriz de covariância dos dados experimentais.

A matriz de covariância dos parâmetros ajustados é dada por:

$$V_{\tilde{A}} = (X^t V^{-1} X)^{-1} \quad \text{1.127)}$$

Este foi o procedimento adotado para o ajuste das curvas de eficiência dos espectrômetros de HPGe, utilizados no presente trabalho e associados ao Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) e ao Laboratório de Ativação Neutrônica (LAN) do IPEN.

A relação que determinou as curvas de eficiências foi dada por:

$$y(x) = \sum_{k=1}^m a_k x^{k-1} \quad (1.128)$$

onde:

$$y(x_i) = \ln(\varepsilon_{p,i})$$

e

$$x_i = \ln(E_i)$$

2. PARTE EXPERIMENTAL

2.1. Irradiação das amostras

2.1.1. Características do reator IEA-R1

O reator utilizado para as pesquisas realizadas no presente trabalho foi o reator IEA-R1, que é um reator de pesquisas do tipo piscina com moderação e refrigeração a água leve, utilizando como refletores berílio e grafite e operando com potência máxima de 5 MW. Esse reator possui 144 posições de irradiação no núcleo distribuídas em 15 elementos de irradiação para irradiações longas e um sistema pneumático para irradiações curtas.

Possui também um total de nove tubos para irradiações horizontais que fornecem feixes de nêutrons utilizados para vários tipos de pesquisas. Um destes tubos está sendo planejado para irradiações de amostras para realizações de análises multielementares pela técnica de Análise por Ativação de Nêutrons, utilizando gamas prontos.

A figura 2.1 mostra o mapa de configuração do núcleo do reator IEA-R1, durante as irradiações realizadas no presente trabalho. A posição escolhida para estas irradiações foi a 24A, próxima do núcleo do reator. A potência utilizada durante as irradiações efetuadas no presente trabalho foi de 3,5 MW.

2.1.2. Características dos alvos

Os alvos escolhidos foram ^{197}Au (liga de Al 0,10%), ^{59}Co (liga de Al 0,475 %), ^{94}Zr , ^{64}Zn , ^{45}Sc e ^{139}La (liga de 0,665%) e Zr puro para serem usados como monitores de fluxo e na determinação dos parâmetros α e f_{ϕ} em uma posição específica de irradiação (24A) do reator IEA-R1. As amostras selecionadas para as medidas de k_0 e Q_0 foram folhas de Zn puro com 0,09 cm de espessura. Todas as amostras foram envolvidas em folhas de alumínio para facilitar a identificação e a separação dos alvos. Em seguida foram posicionadas no interior de um coelho de alumínio. O intervalo de massas foi de 5 mg (^{94}Zr) a 250 mg (^{64}Zn).

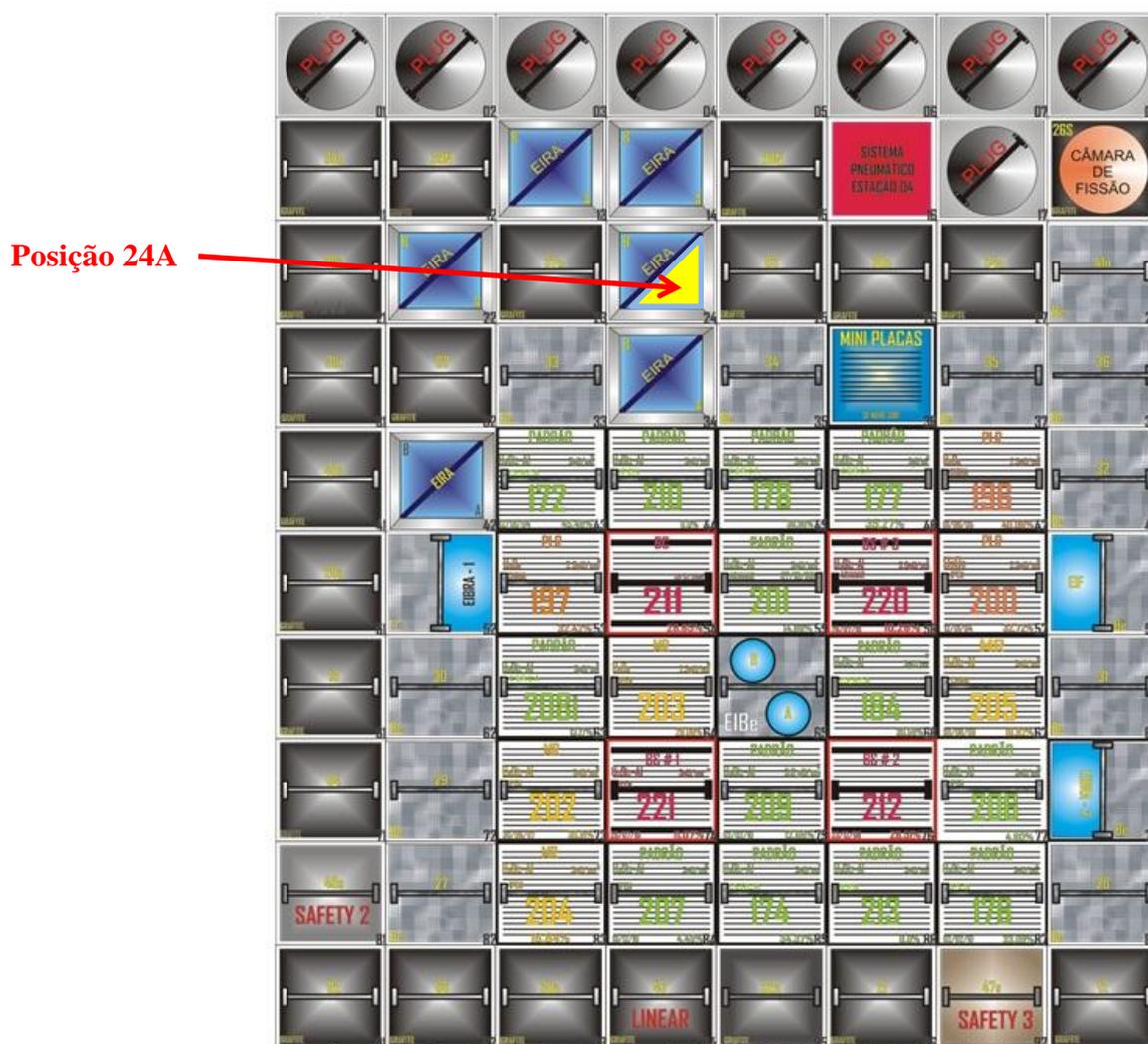


Figura 2.1 - Mapa da configuração do núcleo do reator IEA-R1. A posição 24A, utilizada no presente trabalho, está localizada no diagrama na terceira linha e quarta coluna, de cima para baixo.

A tabela 2.1 mostra os valores de Q_0 , e k_0 e seus respectivos erros percentuais utilizados na determinação de α e f_ϕ no presente trabalho^[17, 23]. Os valores de Q_0 para o ^{139}La e ^{46}Sc foram extraídos de Mughabghab^[70], em razão da ausência de valores de incerteza nos dados apresentados por de Corte^[17, 23].

Tabela 2.1 - Parâmetros associados às reações nucleares obtidos na literatura^[17,23,70] e utilizados na determinação dos parâmetros α e f_ϕ . Os valores de Q_0 para o ^{139}La e ^{46}Sc foram extraídos de Mughabghab^[70].

Reação	$T_{1/2}$ ^[17, 23] (d)	E_γ (keV)	\bar{E}_r ^[17,23] (eV)	Q_0 ^[17,23]	k_0 ^[17,23]
$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	2,695	411,8	5,65(40)	15,71(3)	1,000(0)
$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$	1925,5	1173,2 1332,5	136(7)	1,993(54)	1,320(5) 1,320(5)
$^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr}$	64,02	724,2 756,7	6260(250)	5,31(18)	0,0000890(1) 0,000110(2)
$^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97}\text{Zr}$	0,7046	743,4	338(6)	251,6(25)	0,00001240(4)
$^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$	244,26	1115,5	2560(256)	1,908(93)	0,00572(2)
$^{68}\text{Zn}(n,\gamma)^{69m}\text{Zn}$		438,6	590(59)	3,19(4)	0,000398(2)
$^{139}\text{La}(n,\gamma)^{140}\text{La}$	1,6785	328,8 487,0 815,8 1596,2	76,0(3)	1,339(67) ^[70]	0,0287(3) 0,0637(6) 0,0332(2) 0,1340(14)
$^{46}\text{Sc}(n,\gamma)^{47}\text{Sc}$	83,788	889,3 1120,5	5130(300)	0,445(19) ^[70]	1,220(5) 1,220(13)

Os valores de Q_0 , e k_0 para a reação $^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$ e Q_0 , para a reação $^{68}\text{Zn}(n,\gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$ não estão em acordo com os de outros autores^[24,70].

Para o primeiro experimento (2008), duas irradiações foram feitas em sequência, usando dois conjuntos de amostras: um conjunto com cobertura de Cd e outro não. A espessura de Cd utilizada no presente trabalho foi de 0,6 mm. Os tempos de irradiação foram de uma e duas horas respectivamente, sob um fluxo de nêutrons térmicos de $1.6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. A espectrometria gama foi realizada a partir de 29 horas após o final de irradiação e os tempos de medida variaram entre 10^3 e 2×10^5 s.

Para o segundo experimento (2010), o procedimento foi o mesmo, exceto que as duas irradiações foram de uma hora cada uma, em sequência.

2.2 Atividade induzida nas amostras

2.2.1 Descrição do espectrômetro de HPGe

O detector utilizado no presente trabalho foi de germânio Hiper Puro (HPGe), marca CAMBERRA modelo GX020, de geometria cilíndrica e eficiência relativa de 20% para a energia de 1332,5 keV do ^{60}Co . Para esta energia a resolução obtida experimentalmente resultou em 2,15 keV. Este detector possui um diâmetro externo de 57,7 mm, área sensível $26,1 \text{ cm}^2$ e volume sensível 109 cm^3 . O detector opera a -4000 Volts. A eletrônica associada, convencional para este tipo de medida, é esquematizada na figura 2.2. O sistema é constituído por um pré-amplificador e filtro de alta tensão incorporados ao criostato, um amplificador marca INTERCHNIQUE, modelo 724, um analisador multicanal ORTEC, modelo ACE de 8192 canais e um micro computador PC compatível.

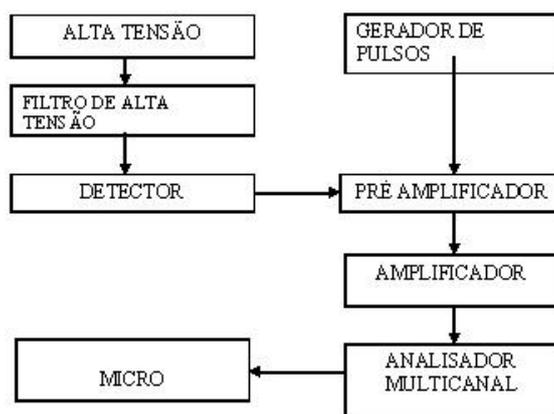


Figura 2.2 - Diagrama eletrônico para medida da radiação gama com HPGe.

A figura 2.3 mostra o diagrama esquemático do arranjo experimental para as medidas com o espectrômetro de HPGe.

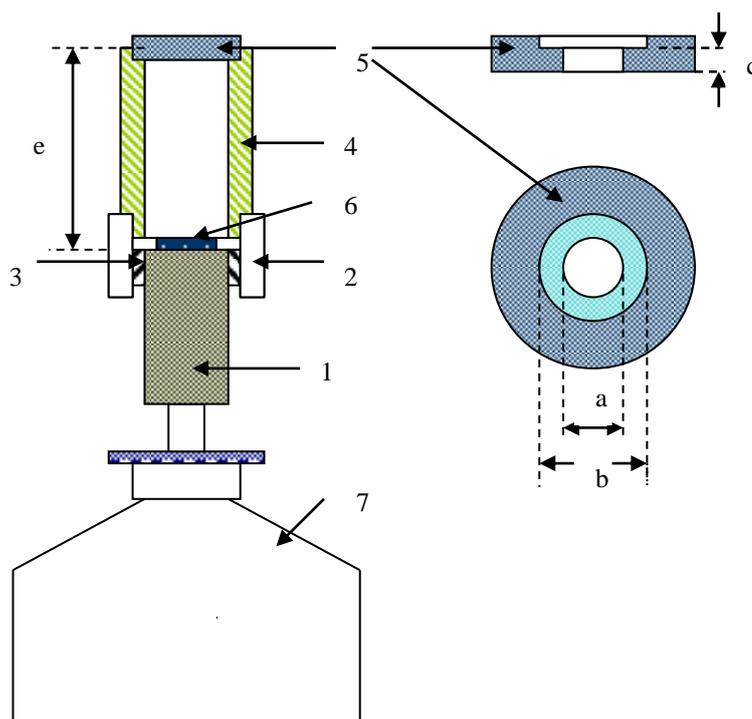


Figura 2.3 - Diagrama esquemático (fora de escala) do arranjo experimental para as medidas com espectrômetro de HPGe: 1 – detector de HPGe; 2 – base de lucite; 3 – anel fixador; 4 – tubo de lucite com altura fixa (e); 5 – suporte de lucite para a fonte, com diâmetros internos (b) diferentes, dependendo do tipo de fonte: padrão com anel de alumínio ou de anéis de aço inox; 6 – anel de lucite e 7 – criostato.

O detector de HPGe (1) possui na sua parte superior, um anel fixador e um suporte usinado em lucite (2). Neste suporte é encaixado um tubo do mesmo material, com altura fixa (4). Estes suportes foram feitos de modo a garantir a reprodutibilidade no posicionamento da fonte da ordem de $\pm 0,3$ mm.

2.2.2 Determinação da curva de eficiência do detector de HPGe

Uma primeira curva de eficiência para o espectrômetro de HPGe foi determinada em 2008, em data próxima ao primeiro experimento, por meio de fontes padrões de ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs e ^{152}Eu fornecidas pela AIEA (Agência Internacional de Energia Atômica), com energias variando entre 244 e 1408 keV, aplicando-se a equação (1.92). Os parâmetros relacionados com as fontes radioativas utilizadas são apresentados na tabela 2.2. A distância das fontes radioativas do detector HPGe foi de aproximadamente 17,9 cm, com o objetivo de reduzir as correções para o efeito soma em cascata^[63,66], conforme descrito no item 1.3.4.5. A radiação de fundo foi subtraída por meio do método numérico descrito na seção 1.3.3.

A curva de eficiência do detector em função da energia gama foi obtida por meio de um polinômio em escala log-log aplicando-se a metodologia da matriz de covariância^[68, 71]. Todos os erros parciais envolvidos em cada calibração de energia, bem como suas correlações, foram considerados, a saber: área de pico, valor padrão de atividade, correção de decaimento, correção geométrica, tempo morto, correção da soma em cascata e probabilidade de emissão gama por decaimento. As atividades das amostras irradiadas foram determinadas por meio da equação (1.99), conforme descrito no item 1.3.5.

Tabela 2.2 - Radionuclídeo, meia-vida, energia gama, probabilidade de emissão gama por decaimento, atividade e fator de correção para o efeito soma em cascata (f_s), para as fontes radioativas padrões utilizadas no primeiro experimento do segundo experimento do presente trabalho. Os números entre parênteses representam as incertezas nos últimos dígitos.

Radionuclídeo	Meia-vida ^[69] (d)	E_γ	I_γ ^[69]	Atividade (kBq)	f_s
¹³³ Ba	3862(15)	276,40	0,07147(30)	376,0(45)	1,0056(6)
		302,85	0,1830(6)		1,0060(6)
		356,02	0,6194(14)		1,0051(5)
¹⁵² Eu	4933(11)	244,70	0,0753(4)	404,0(65)	1,0086(9)
		344,28	0,2657(11)		1,0026(3)
		443,96	0,03125(14)		1,0000(9)
		778,90	0,1297(6)		1,0045(5)
		867,39	0,04214(25)		1,0110(11)
		964,05	0,1463(6)		1,0081(8)
		1112,10	0,1354(6)		1,0074(7)
1408,01	0,2085(9)	1,0072(7)			
⁶⁰ Co	1925,5(6)	1173,20	0,99857(22)	379,2(19)	1,0027(3)
		1332,50	0,9983(6)		1,0028(3)
¹³⁷ Cs	11020(66)	661,66	0,8510(20)	406,5(41)	1,0000(0)

Uma segunda calibração em eficiência foi efetuada, em 2010, em data próxima ao segundo experimento, utilizando fontes radioativas de ⁶⁰Co, ¹⁵²Eu e ^{166m}Ho, preparadas sobre suportes de Collodion, com espessura da ordem de 20 $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ e calibradas em sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$. A faixa de energia abrangida foi de 121 a 1408 keV. As condições de medida e de análise foram as mesmas da calibração anterior. Os parâmetros envolvidos na determinação da eficiência são apresentados na tabela 2.3.

Tabela 2.3 - Radionuclídeo, meia-vida, energia gama, probabilidade de emissão gama por decaimento, atividade e fator de correção para o efeito soma em cascata (f_s), para as fontes radioativas utilizadas no presente trabalho. Os números entre parênteses representam as incertezas nos últimos dígitos.

Radionuclídeo	Meia-vida ^[69] (d)	E_γ	I_γ ^[69]	Atividade (kBq)	f_s
¹⁵² Eu	4933(11)	121,78	0,2837(13)	6,906(64)	1,0054(5)
		244,70	0,0753(4)		1,0086(9)
		344,28	0,2657(11)		1,0026(3)
		411,13	0,02238(10)		1,0085(9)
		443,96	0,03125(14)		1,0000(9)
		778,90	0,1297(6)		1,0045(5)
		964,05	0,1463(6)		1,0081(8)
		1112,10	0,1354(6)		1,0074(7)
⁶⁰ Co	1925,5(6)	1408,01	0,2085(9)	4,441(13)	1,0072(7)
		1173,20	0,99857(22)		1,0027(3)
^{166m} Ho	$4,38(73) \times 10^5$	1332,50	0,9983(6)	3,150(7)	1,0028(3)
		184,41	0,7240(36)		1,0094(9)
		280,45	0,2970(15)		1,0102(10)
		410,94	0,1139(6)		1,0098(10)
		529,81	0,0963(5)		1,0094(9)
		571,00	0,05540(27)		1,0083(8)
		711,69	0,5600(28)		1,0079(8)
		752,27	0,1227(6)		1,0085(9)
		810,31	0,5820(29)		1,0087(9)

As vantagens no uso destas fontes foram: ausência de atenuação na fonte e maior exatidão no valor das atividades. Entretanto, como a distância entre fonte e detector foi relativamente grande (17,9 cm) e os valores de atividade foram baixos, a incerteza estatística resultante para algumas energias gama foi relativamente alta, de certo modo diminuindo as vantagens acima apontadas.

Uma terceira curva de eficiência foi determinada para o espectrômetro de HPGe do Laboratório de Análise Neutrônica, por meio de fontes radioativas padrões de ⁵⁴Mn, ⁶⁵Zn e ¹³⁹Ce, fornecidas pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD), do Rio de Janeiro, além de fontes de ⁵⁷Co, ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs e ¹⁵²Eu, fornecidas pelo Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do IPEN e cobrindo o intervalo de energias gama entre 121 e 1408 keV. As fontes radioativas foram posicionadas a uma distância fonte-detector de

aproximadamente 10 cm. Foi colocada uma camada de lucite de (3mm) entre a fonte e o detector, para evitar riscos de contaminação do detector e efeitos de Bremsstrahlung. Os parâmetros envolvidos na determinação da eficiência são apresentados na tabela 2.4.

Tabela 2.4 - Radionuclídeo, meia vida, energia gama, probabilidade de missão gama por decaimento, atividade e fator de correção para efeito soma em cascata (f_s), para as fontes radioativas do IRD(RJ) e do LMN(PEN-SP). Os números entre parênteses representam as incertezas nos últimos dígitos

Radionuclídeo	Meia-vida ^[71] (d)	E_γ	I_γ ^[71]	Atividade (kBq)	f_s
¹⁵² Eu	4933(11)	121,78	0,2837(13)	8,59(17)	1,060(6)
		244,70	0,0753(4)		1,084(8)
		344,28	0,2657(11)		1,024(2)
		443,96	0,0312(1)		1,095(9)
		778,90	0,1297(6)		1,036(4)
		867,39	0,0421(2)		1,086(9)
		964,05	0,1463(6)		1,068(7)
		1112,10	0,1354(6)		1,063(6)
		1408,01	0,2085(9)		1,066(7)
⁶⁰ Co	1925,5(6)	1173,2	0,9985(2)	6,97(14)	1,058(6)
		1332,5	0,9983(6)		1,060(6)
¹³⁷ Cs	11020(66)	661,66	0,8510(20)	75,2(19)	1,000(0)
⁵⁷ Co	271,80(5)	122,06	0,8551(6)	76,9(23)	1,004(1)
		136,47	0,1071(5)		1,028(3)
⁵⁴ Mn	312,2(1)	834,84	0,99974(1)	36,9(4)	1,000(0)
¹³⁹ Ce	137,64(3)	165,86	0,7990(4)	41,9(9)	1,046(5)
⁶⁵ Zn	243,9(2)	1115,54	0,5022(1)	36,3(5)	1,000(0)

Observa-se que os valores da correção para o efeito de soma em cascata apresentados na tabela 2.4 são aproximadamente uma ordem de grandeza maiores que os apresentados nas tabelas 2.2 e 2.3. Isto pode ser explicado considerando que esta correção está diretamente ligada ao valor da eficiência total do detector

de HPGe. Como a distância fonte-detector para o arranjo do Laboratório de Análise por Ativação Neutrônica (LAN) foi bem menor que para o arranjo do Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN), estas eficiências resultaram uma ordem de grandeza maior, para o caso do LAN, aumentando proporcionalmente os valores desta correção.

3 RESULTADOS E DISCUSSÃO

3.1 Irradiações e medidas efetuadas no Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do IPEN

Uma série de medidas foram efetuadas junto ao Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do IPEN, com o objetivo de determinar os parâmetros de caracterização do campo de nêutrons na posição de irradiação 24A do reator IEA-R1, além de calibrar o espectrômetro de HPGe em energia e determinar as atividades induzidas nas amostras irradiadas.

3.1.1 Curva de eficiência do espectrômetro de HPGe

A tabela 3.1 mostra os parâmetros da curva de eficiência obtidos e a matriz de covariância correspondente à primeira calibração em eficiência e utilizando fontes radioativas padrões de ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs e ^{152}Eu , fornecidas pela Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA). Esta curva de eficiência foi utilizada para as medidas das amostras correspondentes ao primeiro experimento (2008). O grau do polinômio ajustado em escala log-log foi três e o valor mínimo obtido para o Qui-Quadrado reduzido (χ^2) foi de 1,25, indicando um ajuste aceitável.

Tabela 3.1 - Parâmetros da primeira curva de eficiência e correspondente matriz de covariância do ajuste polinomial.

Parâmetro Ajustado	Valor	Matriz de covariância
a_0	-5,98402	1,07091E+01
a_1	1,90106	-5,07090E+00 2,40317E+00
a_2	-0,516355	7,96689E-01 -3,77881E-01 5,94691E-02
a_3	0,03020	-4,15337E-02 1,97163E-02 -3,10543E-03 1,62296E-04
χ^2	1,25	

A tabela 3.2 mostra os parâmetros da curva de eficiência obtidos e a matriz de covariância correspondente à segunda calibração, utilizando fontes de ^{60}Co , ^{152}Eu e $^{166\text{m}}\text{Ho}$, preparadas sobre suportes de Collodion, e calibradas em sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$. Esta curva de eficiência foi utilizada para as medidas das amostras correspondentes ao segundo experimento (2010). O valor de Qui-Quadrado reduzido (χ^2) foi de 1,48, indicando um ajuste no limiar do aceitável.

Tabela 3.2 - Parâmetros da segunda curva de eficiência e correspondente matriz de covariância do ajuste polinomial.

Parâmetro Ajustado	Valor	Matriz de covariância			
a_0	2.01530E+00	2.27635E+01			
a_1	-1.86786E+00	-1.07301E+01	5.06247E+00		
a_2	7.30518E-02	1.67819E+00	-7.92492E-01	1.24174E-01	
a_3	-3.58306E-04	-8.71003E-02	4.11686E-02	-6.45653E-03	3.36020E-04
χ^2	1,48				

As figuras 3.1 e 3.2 mostram os gráficos das curvas de eficiências obtidas pelas fontes fornecidas pela Agência Internacional de Energia Atômica e pelas fontes de Collodion respectivamente.

A figura 3.3 mostra os resíduos obtidos para estas duas curvas de eficiência. Os pontos negros correspondem à fontes em Collodion e os pontos brancos às fontes fornecidas pela AIEA. Em geral, observa-se que os pontos estão distribuídos de forma aproximadamente uniforme, indicando um comportamento não tendencioso. A utilização da curva em Collodion pode ser justificada pela maior exatidão obtida nas atividades das fontes calibradas. Entretanto, como estas atividades são muito menores, quando comparadas com os padrões da AIEA, as incertezas estatísticas nas contagens no

espectrômetro de HPGe para algumas transições gama resultaram maiores, fazendo com que a incerteza final das duas curvas fossem comparáveis, conforme mostra a figura 3.3.

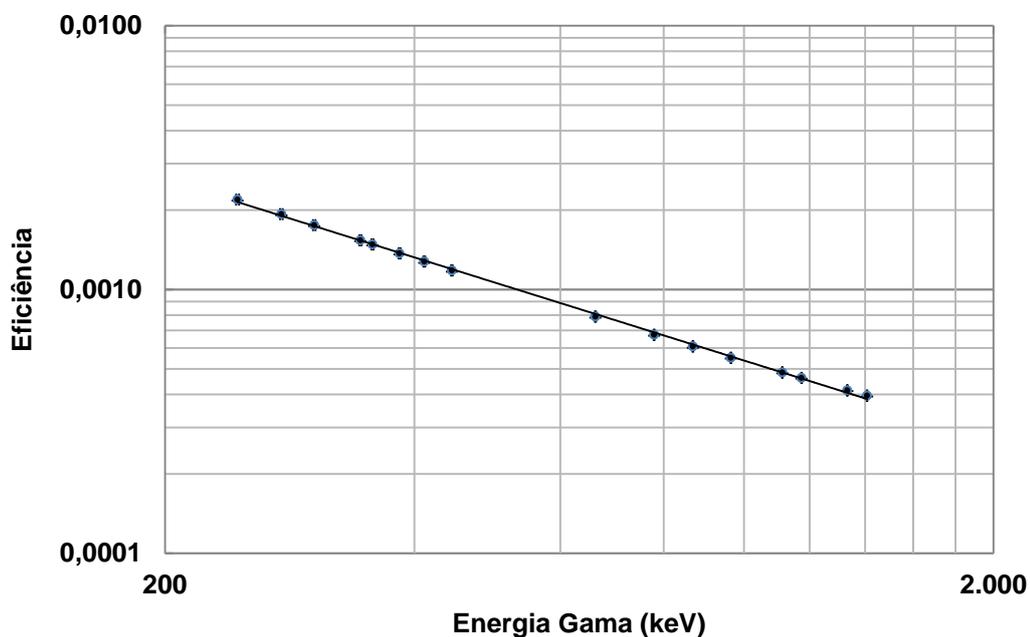


Figura 3.1 - Curva de eficiência para o espectrômetro de HPGe em função da energia gama, obtida pelas fontes padrões fornecidas pela Agência Internacional de Energia Atômica.

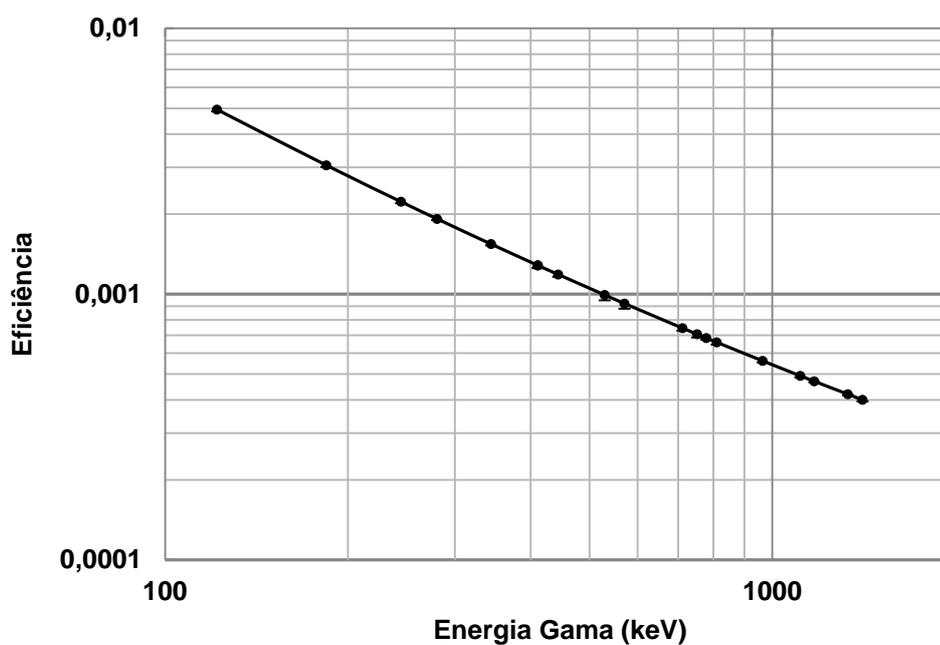


Figura 3.2 - Curva de eficiência para o espectrômetro de HPGe em função da energia gama obtida pelas fontes padrões em substrato de Collodion.

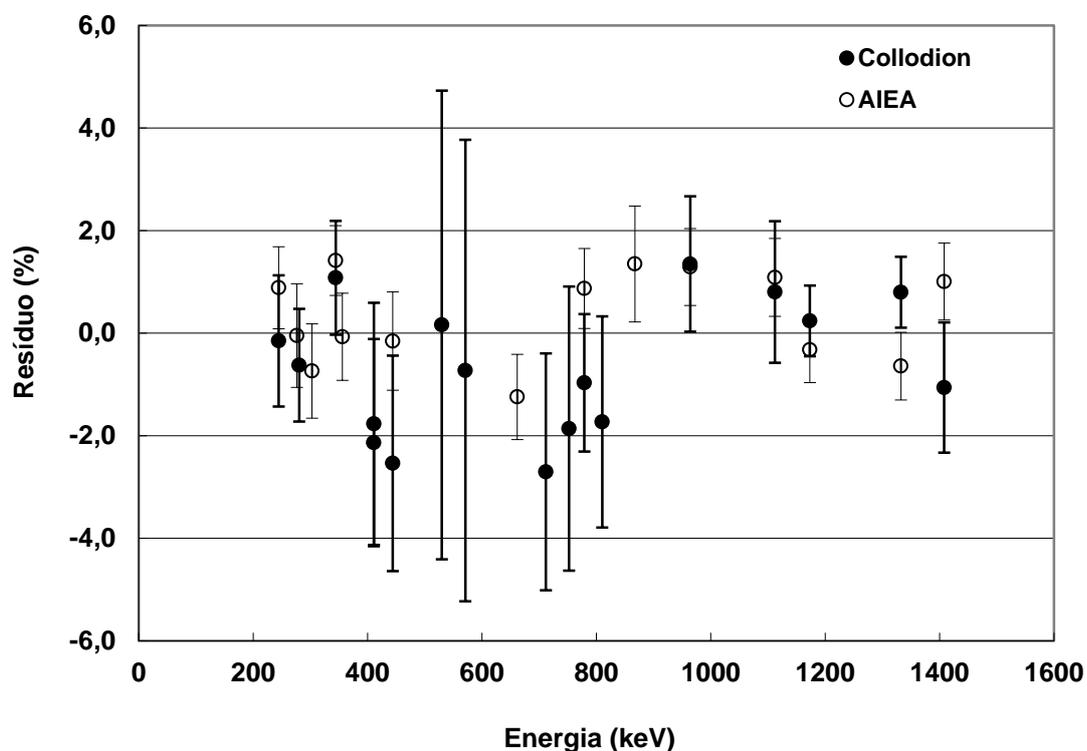


Figura 3.3 - Resíduos obtidos nas duas curvas de eficiência para o espectrômetro de HPGe.

3.1.2 Atividades induzidas nas amostras

A tabela 3.3 mostra os valores de atividades obtidas nos dois experimentos, juntamente com suas respectivas incertezas percentuais. Os alvos de cobalto foram incluídos apenas no segundo experimento.

3.1.3 Parâmetros utilizados para a obtenção de α e f_ϕ

A tabela 3.4 mostra os valores obtidos para G_{th} , G_e e para os fatores de transmissão no Cádmiu, F_{Cd} , juntamente com suas incertezas. Nota-se que o valor de F_{Cd} para o ^{139}La resultou maior que a unidade, indicando uma contribuição importante na transmissão de nêutrons para a região abaixo do corte de Cádmiu. Os demais parâmetros utilizados na determinação de α e f_ϕ foram apresentados na tabela 2.1.

Tabela 3.3 - Atividades obtidas para as amostras, correspondentes a cada um dos experimentos efetuados. A espessura do envoltório de Cd utilizado no presente trabalho foi de 0,6 mm.

Radionuclídeo	Energia Gama (keV)	Primeiro Experimento				Segundo Experimento			
		Atividade sem Cd	σ	Atividade com Cd	σ	Atividade sem Cd	σ	Atividade com Cd	σ
		(Bq g ⁻¹)	(%)						
Au-198	411,80	5,932E+07	0,83	2,9395E+07	0,85	1,1478E+08	0,94	2,7258E+07	0,92
Co-60	1173,24	-	-	-	-	5,9700E+05	1,33	2,1722E+04	1,37
	1332,50	-	-	-	-	5,7943E+05	1,36	2,1612E+04	1,38
Zr-95	724,20	4,0543E+05	0,82	7,9784E+04	1,03	6,0835E+05	0,94	5,4766E+04	1,58
	756,73	4,0691E+05	0,73	7,9860E+04	0,90	6,0930E+05	0,88	5,4743E+04	1,34
Zr-97	743,36	1,8316E+07	0,85	1,9431E+07	1,13	1,6205E+07	3,06	1,3588E+07	1,80
Sc-46	889,27	1,6555E+09	1,59	3,5304E+07	0,78	2,5848E+09	0,96	2,5920E+07	0,95
	1120,54	1,6593E+09	1,59	3,5382E+07	0,78	2,5604E+09	0,96	2,5888E+07	0,96
La-140	328,73	6,1077E+07	1,76	3,2813E+06	1,88	9,7319E+07	2,45	2,3256E+06	2,48
	487,02	6,1400E+07	1,25	3,2968E+06	1,35	9,8103E+07	2,12	2,3608E+06	2,14
	815,78	6,1509E+07	1,07	3,2155E+06	1,45	9,7848E+07	2,01	2,3616E+06	2,07
Zn-65	1115,55	5,4477E+06	0,88	3,6616E+05	0,95	8,0252E+06	0,92	2,5749E+05	0,90
Zn-69m	438,63	-	-	-	-	1,3001E+08	1,22	5,6220E+06	1,08

Tabela 3.4 - Fatores de correção G_{th} , G_e e F_{cd} para os alvos utilizados no presente trabalho. Os números entre parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.

Alvo	G_{th}	G_e	F_{cd}
^{197}Au	1,0000(0)	0,9808(40)	0,9999(4)
^{59}Co	1,0000(0)	0,9971(6)	0,9909(20)
^{94}Zr	0,9999(1)	0,9990(4)	0,9968(7)
^{96}Zr	1,0000(0)	0,9988(10)	0,9995(1)
^{64}Zn	0,9924	0,9605(91)	0,9928(3)
^{68}Zn	0,9993(1)	0,9564(95)	0,9985(2)
^{139}La	0,9999(1)	0,9981(40)	1,0160(24)
^{45}Sc	0,9792(42)	0,9858(29)	0,9937(67)

3.1.4 Resultados obtidos para α e f_ϕ

A figura 3.4 mostra o comportamento do parâmetro Y como função de X pelo Método de Monitores Múltiplos Cobertos Com Cádmiu, para a determinação de α (equação 1.79), resultante do primeiro experimento. Para esta curva, foram escolhidos os alvos de ^{197}Au , ^{140}La , ^{46}Sc , ^{95}Zr e ^{65}Zn , de modo a cobrir uma faixa de valores de $\ln(E_r)$ satisfatória. A curva é praticamente horizontal, com todas as barras de erro cruzando a reta de ajuste. O valor resultante para α foi de $0,1(18) \times 10^{-2}$, indicando um campo de nêutrons epitérmicos próximo do ideal.

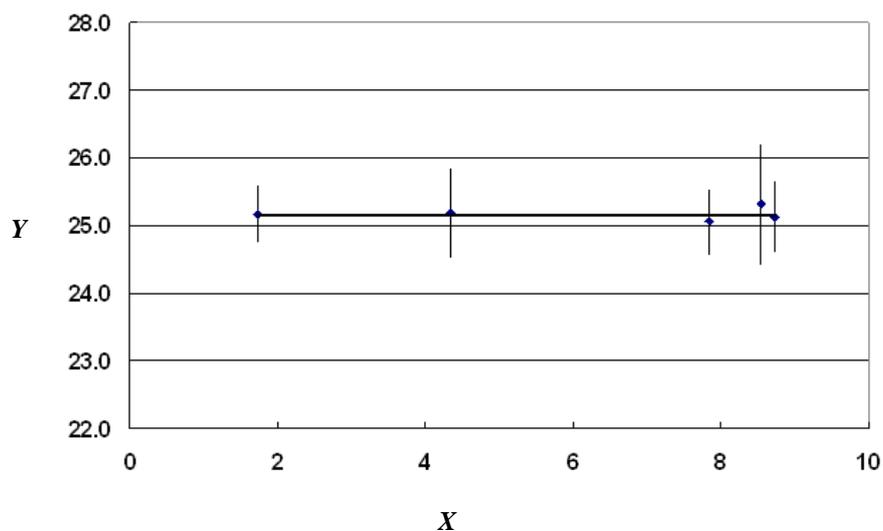


Figura 3.4 - Resultados experimentais e curva ajustada para o Método dos Monitores Múltiplos cobertos com Cádmiu, para o primeiro experimento.

A tabela 3.5 mostra os valores obtidos para X e Y para este método. Considerando os valores apresentados na matriz de covariância, pode-se concluir que os seus elementos possuem correlações relativamente pequenas. A explicação para isto é que apenas a eficiência de detecção apresenta correlação, e ainda assim de modo parcial.

Tabela 3.5 - Matriz de covariância da função Y obtida pelo Método de Monitores Múltiplos Cobertos Com Cádmiu, correspondente ao primeiro experimento.

Monitor	X	Y	σ_Y (%)	Matriz de correlação						
^{198}Au	1,732	25,173	1,63	1000						
^{95}Zr	8,742	25,130	2,06	144	1000					
^{65}Zn	7,848	25,057	1,92	146	76	1000				
^{140}La	8,543	25,317	3,48	211	113	118	1000			
^{46}Sc	4,331	25,181	2,65	276	148	146	216	1000		

A figura 3.5 mostra o comportamento de Y como função de X para o Método da Razão de Cádmiu com Monitores Múltiplos, indicado pela equação (1.81). Foram utilizados os mesmos alvos do método anterior. Observa-se um comportamento similar ao da figura 3.2. O valor resultante para α por este método foi de $0,1(19) \times 10^{-2}$, para o primeiro experimento e $-0,16(86) \times 10^{-2}$ para o segundo experimento, em excelente acordo com o primeiro método.

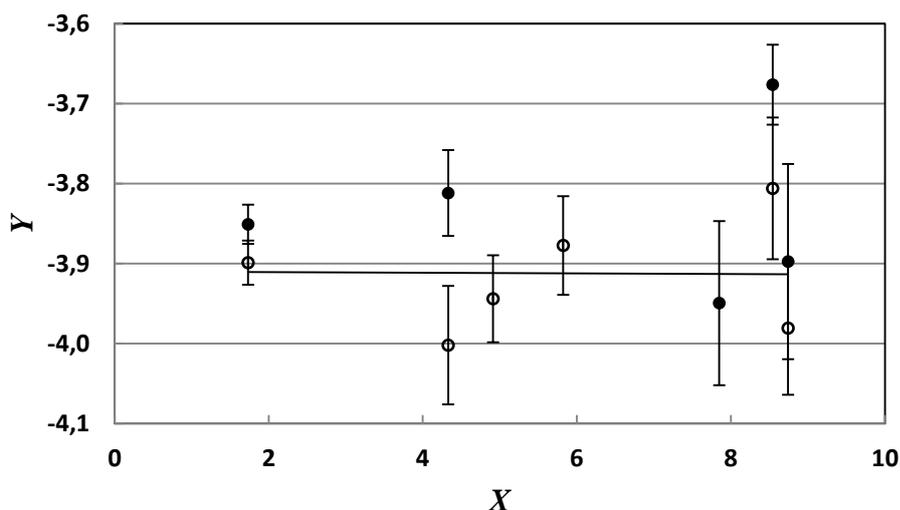


Figura 3.5 - Resultados experimentais e curva ajustada para o Método da Razão de Cádmiu com Monitores Múltiplos. Os símbolos pretos correspondem ao primeiro experimento e os símbolos brancos ao segundo experimento.

A tabela 3.6 mostra os valores obtidos para X e Y para o Método da Razão de Cádmiu com Monitores Múltiplos, definido pela equação (1.81), juntamente com sua respectiva matriz de covariância, para o primeiro experimento. A matriz mostra que as correlações entre os elementos envolvidos pelo método usado são extremamente pequenas. Neste caso, a maior parte das contribuições procedem de parâmetros não-correlacionados.

A tabela 3.7 mostra as principais incertezas envolvidas na determinação do parâmetro α para cada monitor, em ambos os métodos. Como pode ser observado, as principais contribuições foram dos parâmetros Q_0 , k_0 e da área do pico de absorção total, no espectrômetro de HPGe.

Tabela 3.6 - Matriz de covariância da função Y obtida pelo Método da Razão de Cádmiu com Monitores Múltiplos.

Monitor	X	Y	σ_Y (%)	Matriz de correlação						
¹⁹⁸ Au	1,732	3,851	0,64	1000						
⁹⁵ Zr	8,742	3,898	3,13	0	1000					
⁶⁵ Zn	7,848	3,950	2,60	11	0	1000				
¹⁴⁰ La	8,543	3,676	1,36	4	0	10	1000			
⁴⁶ Sc	4,331	3,812	1,41	0	0	1	0	1000		

Tabela 3.7 - Principais incertezas envolvidas na função Y, nas equações (1.79) e (1.81) (em percentagem).

Monitor	Energia (keV)	Área do pico	Q ₀	k ₀	R _{Cd}	Eficiência
¹⁹⁸ Au	411,8	0,85	1,8	0,0	0,39	0,46
¹⁴⁰ La	1596,2	1,09	1,3	1,1	0,44	0,79
⁴⁶ Sc	1120,5	0,78	1,4	1,2	0,36	0,44
⁹⁵ Zr	724,2	0,97	3,1	1,3	0,26	0,42
⁶⁵ Zn	1115,5	0,72	2,5	0,4	0,34	0,36

O valor de f_ϕ pelo Método da Razão de Cádmiu, definido pela expressão (1.82), corresponde ao inverso do intercepto da reta ajustada. Os resultados para este parâmetro

foram 48,4(16) para o primeiro experimento e 49,7(19) para o segundo experimento, em excelente acordo entre si.

Notar que este valor da razão entre fluxos térmico e epitérmico não deve ser comparado diretamente àquele que seria obtido pelo formalismo de Westcott, uma vez que o fluxo epitérmico *não* está multiplicado pelo fator $\ln(E_2/E_1)$, que é da ordem de 15,1. Portanto, a razão de fluxos, pelo formalismo de Westcott, seria da ordem de 3,3 .

3.1.5 Resultados obtidos para k_0 e Q_0

Os fatores k_0 e Q_0 foram determinados experimentalmente para os núcleos de ^{64}Zn e ^{68}Zn no reator de pesquisa IEA-R1 na posição 24A, por meio do formalismo apresentado na seção 1.4.3. Estes valores estão apresentados na tabela 3.8. As derivadas das equações 1.106 e 1.107 são apresentadas nas tabelas A1 e A2 do Apêndice A.

Tabela 3.8 - Valores de k_0 e Q_0 obtidos no presente trabalho, em comparação com os dados da literatura.

Reação	Parâmetro	Presente Trabalho	Literatura
$^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$	k_0	$5,63(8)\times 10^{-3}$	$6,55(22)\times 10^{-3}$ [24] $5,72(2)\times 10^{-3}$ [23] $6,16(22)\times 10^{-3}$ [70] $6,08(16)\times 10^{-3}$ [26]
	Q_0	$1,69(6)$	$1,908(94)$ [23] $1,73(9)$ [70]
$^{68}\text{Zn}(n,\gamma)^{69m}\text{Zn}$	k_0	$4,00(6)\times 10^{-4}$	$4,10(17)\times 10^{-4}$ [24] $3,98(2)\times 10^{-4}$ [23,26]
	Q_0	$2,34(4)$	$3,19(4)$ [23] $3,3(3)$ [70]

O fato do valor de α ter resultado muito próximo de zero, indica um campo de nêutrons epitérmicos próximo ao ideal (1/E). Isto tem como consequência que os valores

obtidos para Q_0 no presente trabalho sejam mais confiáveis, uma vez que a correção em seu valor, associada ao valor de α conforme descrito pela equação (1.108), torna-se muito pequena.

Para o ^{64}Zn , o valor de k_0 concorda com De Corte e Simonits^[17, 23], que corresponde a um valor experimental, mas não está de acordo com o valor de $6,55(22) \times 10^{-3}$ de Firestone^[24], nem com o valor de $6,16(22) \times 10^{-3}$ de Mughabghab^[70]. Recentemente^[26], o valor de Firestone foi alterado para $6,08(16) \times 10^{-3}$ no relatório final do CRP, IAEA. Este último valor está em acordo com Mughabghab^[70], mas em desacordo com De Corte e Simonits^[17,23] e com o valor do presente trabalho. Entretanto, deve ser mencionado que os valores de Firestone^[26] e Mughabghab^[70] não foram obtidos diretamente de experimentos. Para o ^{64}Zn , o valor de Q_0 concorda parcialmente com De Corte e Simonits^[17,23] e está em excelente acordo com Mughabghab^[70]. Este último valor foi calculado a partir dos valores tabelados de seção de choque térmica e integral de ressonância.

Para o ^{68}Zn , o valor de k_0 concorda com todas as referências^[17,23,26], dentro da incerteza estimada, porém Q_0 não está em acordo com De Corte e Simonits^[17,23], nem com o valor de Mughabghab^[70], que concordam entre si. Esta discrepância indica a necessidade de novas medidas, para verificar o valor correto.

A tabela 3.9 mostra as incertezas dos parâmetros k_0 e Q_0 , juntamente com sua matriz de correlação.

Tabela 3.9 - Incertezas nos parâmetros k_0 e Q_0 e matriz de correlação.

Reação	Parâmetro	Incerteza(%)	Matriz de correlação (x1000)			
$^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$	k_0	1,4	1000			
	Q_0	3,3	-214	1000		
$^{68}\text{Zn}(n,\gamma)^{69m}\text{Zn}$	k_0	1,6	558	-191	1000	
	Q_0	1,7	-283	706	-371	1000

A correlação entre os dois valores de k_0 é positiva. Isso pode ser explicado considerando o fato do comparador ser o mesmo e contribuir de forma idêntica na determinação de seus respectivos valores apresentado na equação (1.106). Pela mesma razão e considerando a equação (1.107) o valor da correlação entre os dois valores de Q_0 também é positiva. A correlação entre os fatores k_0 e Q_0 é negativa, neste caso, o componente comparador na determinação do k_0 aparece no denominador da fração, enquanto na determinação do Q_0 aparece no numerador. Desta forma o aumento do comparador tende a diminuir o valor do k_0 enquanto aumenta o valor do Q_0 .

As figuras 3.6 e 3.7 mostram as contribuições das incertezas de cada parâmetro multiplicado pela derivada parcial da expressão em relação a ele, envolvidas na determinação dos parâmetros k_0 e Q_0 para o ^{64}Zn e ^{68}Zn , respectivamente. Observa-se uma simetria aproximadamente especular entre os valores de incerteza para k_0 e Q_0 . Este comportamento pode ser explicado, considerando que os parâmetros comuns aparecem como numerador na expressão de k_0 (equação 1.106) e como denominador em Q_0 (equação 1.107). Pode-se notar que as incertezas que mais contribuem para o parâmetro k_0 dos elementos ^{64}Zn e ^{68}Zn , são, ε_{pc} e ε_{pa} , e as incertezas que mais contribuem para o parâmetro Q_0 são, G_{ea} e G_{ec} para ^{64}Zn e G_{ea} e f_a para ^{68}Zn .

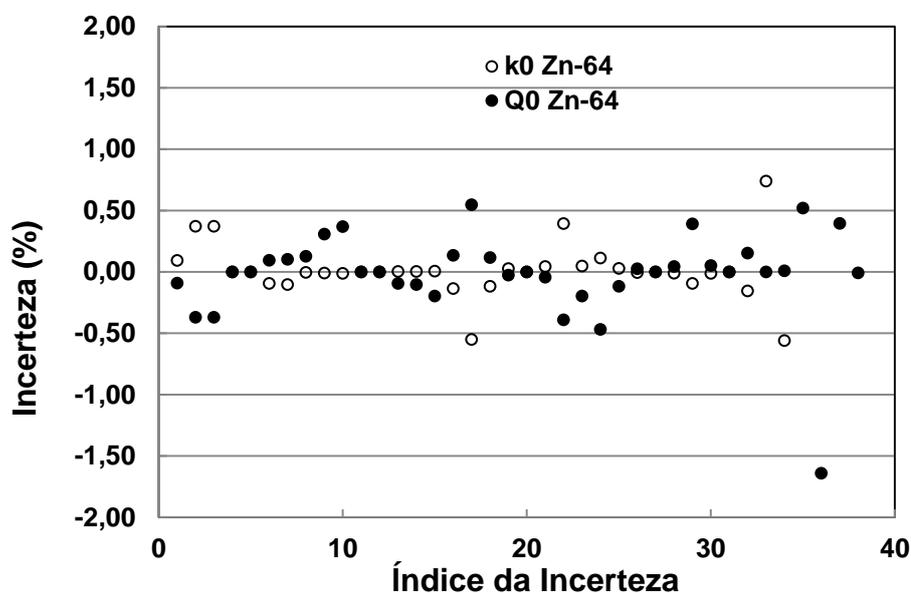


Figura 3.6 - Contribuições das incertezas de cada parâmetro multiplicado pela derivada parcial da expressão em relação a ele, envolvidas na determinação dos parâmetros k_0 e Q_0 para o ^{64}Zn .

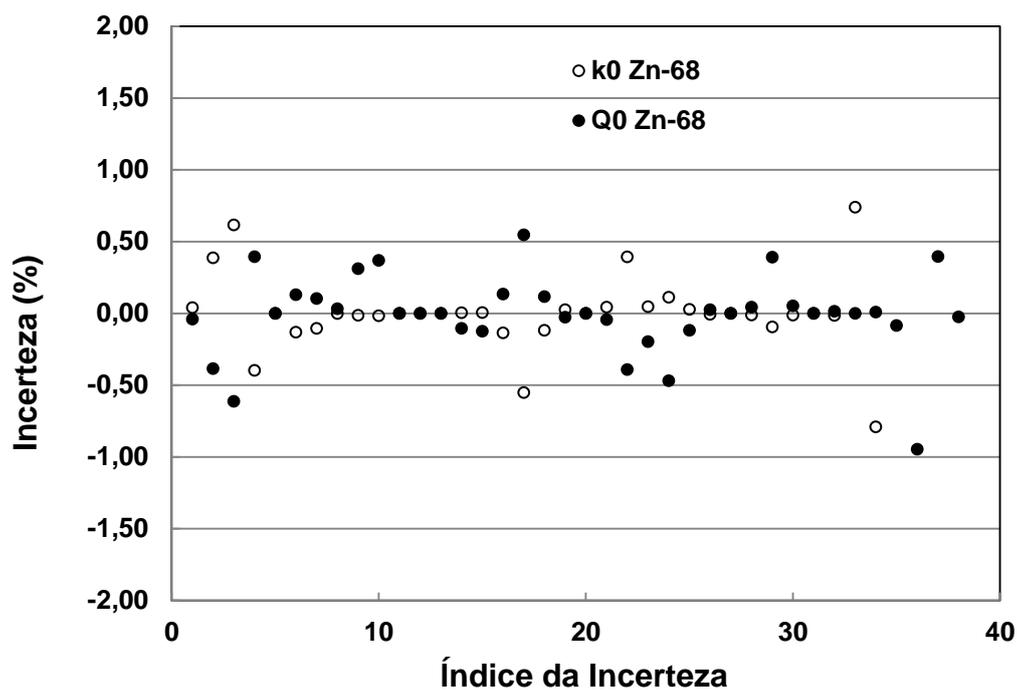


Figura 3.7 - Contribuições das incertezas de cada parâmetro multiplicado pela derivada parcial da expressão em relação a ele, envolvidas na determinação dos parâmetros k_0 e Q_0 para o ^{68}Zn .

A tabela 3.10 apresenta a identificação e os valores das incertezas multiplicadas pelas derivadas parciais referentes a cada parâmetro que compõem as expressões das variáveis k_0 e Q_0 , tanto para o ^{64}Zn como para o ^{68}Zn .

Tabela 3.10 - Incertezas dos parâmetros multiplicados pelas derivadas parciais referentes a cada parâmetro que compõem as variáveis k_0 e Q_0 .

Índice	Parâmetro	Zn-64		Zn-68	
		k_0	Q_0	k_0	Q_0
1	N_1	9,27E-02	-9,21E-02	4,00E-02	-3,98E-02
2	f_{g1}	3,72E-01	-3,69E-01	3,87E-01	-3,84E-01
3	f_a	3,72E-01	-3,69E-01	6,17E-01	-6,13E-01
4	D_1	0,00E+00	0,00E+00	-3,97E-01	3,95E-01
5	C_1	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
6	S_1	-9,48E-02	9,41E-02	-1,31E-01	1,30E-01
7	W_1	-1,03E-01	1,03E-01	-1,05E-01	1,04E-01
8	N_2	-4,14E-03	1,27E-01	-1,40E-03	3,22E-02
9	f_{g2}	-1,00E-02	3,08E-01	-1,35E-02	3,12E-01
10	f_{a2}	-1,20E-02	3,69E-01	-1,60E-02	3,69E-01
11	D_2	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
12	C_2	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
13	S_2	3,06E-03	-9,41E-02	9,96E-06	-2,29E-04
14	W_2	3,34E-03	-1,03E-01	4,51E-03	-1,04E-01
15	F_{cda}	6,39E-03	-1,96E-01	5,43E-03	-1,25E-01
16	N_3	-1,35E-01	1,34E-01	-1,35E-01	1,35E-01
17	f_{g3}	-5,51E-01	5,47E-01	-5,51E-01	5,48E-01
18	f_{a3}	-1,18E-01	1,17E-01	-1,18E-01	1,17E-01
19	D_3	2,63E-02	-2,61E-02	2,63E-02	-2,61E-02
20	C_3	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
21	S_3	4,38E-02	-4,35E-02	4,38E-02	-4,35E-02
22	W_3	3,94E-01	-3,91E-01	3,94E-01	-3,91E-01
23	N_4	4,73E-02	-1,97E-01	4,73E-02	-1,97E-01
24	f_{g4}	1,13E-01	-4,69E-01	1,13E-01	-4,70E-01
25	f_{a4}	2,81E-02	-1,17E-01	2,81E-02	-1,17E-01
26	D_4	-6,25E-03	2,61E-02	-6,25E-03	2,61E-02
27	C_4	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
28	S_4	-1,04E-02	4,35E-02	-1,04E-02	4,35E-02
29	W_4	-9,38E-02	3,91E-01	-9,38E-02	3,91E-01
30	F_{cdc}	-1,25E-02	5,21E-02	-1,25E-02	5,22E-02
31	G_{thc}	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
32	G_{thi}	-1,55E-01	1,54E-01	-1,46E-02	1,45E-02
33	ϵ_{pc}	7,40E-01	-	7,40E-01	-
34	ϵ_{pa}	-5,60E-01	-	-7,9E-01	-
33	Q_{0Au}	-	0,00E+00	-	0,00E+00
34	E_{rAu}	-	9,05E-03	-	9,05E-03
35	α	-	5,20E-01	-	-8,40E-02
36	G_{ea}	-	-1,6E+00	-	-9,46E-01
37	G_{eAu}	-	3,96E-01	-	3,96E-01
38	E_{ra}	-	-7,62E-03	-	-2,44E-02

3.2 Análise de dados provenientes de irradiação e medidas efetuadas pelo Laboratório de Análise por Ativação Neutrônica (LAN) do IPEN

Uma série de medidas foram efetuadas pelo Laboratório de Análise de Ativação Neutrônica (LAN) do IPEN, por ocasião da vinda de um especialista da França, Denis Piccot, no ano de 2000, e com o objetivo de determinar os parâmetros de caracterização do campo de nêutrons na mesma posição de irradiação 24A do reator IEA-R1, além de calibrar o seu espectrômetro de HPGe e determinar as atividades induzidas nas amostras irradiadas. Estas medidas foram reanalisadas no presente trabalho para aplicação da metodologia de matriz de covariâncias, e são apresentadas a seguir.

A tabela 3.11 mostra os valores dos coeficientes do ajuste polinomial de grau 3 em escala log-log, para a curva de eficiência juntamente com sua matriz de covariância. O Qui-Quadrado reduzido resultou 1,66, indicando um valor pouco acima do limiar aceitável. Uma explicação possível para este resultado pode ser no valor da correção para o efeito de soma em cascata, que variou entre 2,4 a 9,5 % e contribuiu significativamente para a incerteza final.

Tabela 3.11 - Parâmetros da curva de eficiência para o arranjo experimental do LAN, prateleira 1, e sua correspondente matriz de covariância.

Parâmetros Ajustados	Valor	Matriz de covariância
a_0	-1.3925E+01	3.1753E+00
a_1	6.6899E+00	-1.6213E+00 8.2907E-01
a_2	-1.2588E+00	2.7264E-01 -1.3961E-01 2.3544E-02
a_3	6.8609E-02	-1.5117E-02 7.7510E-03 -1.3088E-03 7.2856E-05
χ^2	1,66	

A figura 3.8 mostra o gráfico da curva de eficiência obtida pelas fontes fornecidas pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD-RJ) e pelo Laboratório de Metrologia Nuclear LMN do (IPEN-SP). Observa-se que os valores de eficiência são cerca de uma ordem de grandeza maiores que os apresentados nas figuras 3.1 e 3.2, em razão da menor distância entre as fontes e o detector.

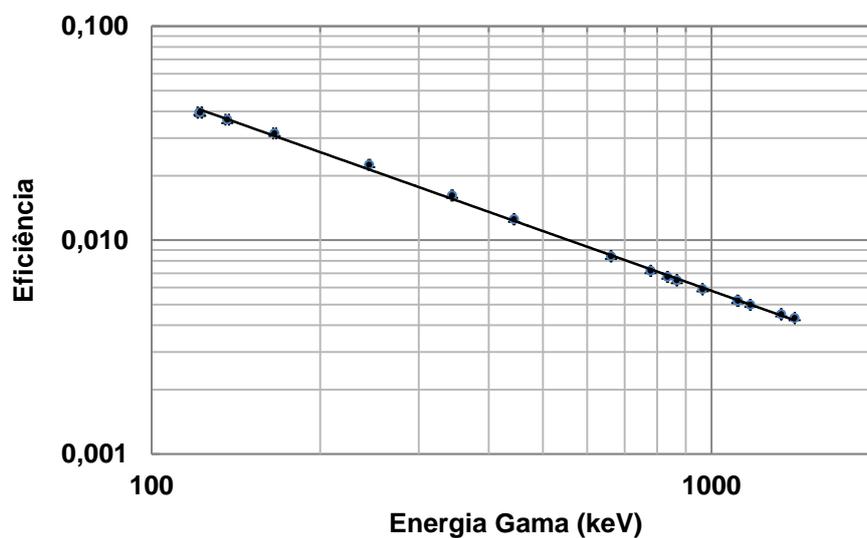


Figura 3.8 – Curva de eficiência para espectrômetro de HPGe em função da energia gama, obtida pelas fontes do IRD (RJ) e LMN (IPEN-SP).

3.2.1 Atividades induzidas nas amostras

Com a curva de eficiência obtida, foram determinadas as atividades das amostras de ^{197}Au , ^{95}Zr e ^{97}Zr , com o objetivo de se obter os parâmetros α e f_{ϕ} pelo método dos Três Monitores Descobertos, discutido nas seções 1.1.5.1 e 1.1.6.2, respectivamente. As atividades obtidas são apresentadas na tabela 3.12, juntamente com suas incertezas percentuais.

Tabela 3.12 - Atividades obtidas para as amostras de ^{197}Au , ^{95}Zr e ^{97}Zr , no arranjo experimental do LAN.

Radionuclídeo	Energia Gama (keV)	Atividade sem Cd (Bq g ⁻¹)	Incerteza (%)
Au-197	411,80	3.61E+07	1,60
Zr-95	724,20	2.49E+05	1.62
	756,73	2.51E+05	1.56
Zr-97	743,36	9.84E+06	1,73

3.2.2 Valores obtidos para α e f_ϕ

Com os valores de atividades das amostras de ^{197}Au , ^{95}Zr e ^{97}Zr , apresentadas na tabela 3.12, foram determinados os valores de α e f_ϕ por meio das equações (1.77) e (1.83), respectivamente. O número de histórias utilizado para esta simulação foi de 10000. Para cada história, a raiz da equação 1.77 foi obtida por aproximação sucessiva, variando-se α entre -0,2 a +0,2, em passos de 1×10^{-5} . As incertezas foram obtidas pelo método de propagação por Monte Carlo, discutido na seção 1.5.2. Os parâmetros obtidos para α e f_ϕ foram de $-2,3(22) \times 10^{-2}$ e $38,5(39)$, respectivamente.

Observa-se que a incerteza resultante no parâmetro α é da mesma ordem de grandeza que as obtidas pelos outros métodos descritos nas seções 1.1.5.2 e 1.1.5.3, e apresentados na seção 3.1.4. Esta incerteza em α é apenas aproximada, porque a relação (1.119) não considera a correlação entre variáveis diferentes para a equação (1.77). Entretanto, as únicas variáveis correlacionadas, que são diferentes entre si, correspondem às eficiências ϵ_{p1} e ϵ_{p2} , que fazem parte dos parâmetros a e b na equação (1.77).

A contribuição da incerteza das eficiências no parâmetro α foi estimada recalculando-se o valor da incerteza total e considerando incerteza nula para as eficiências. Neste caso, a incerteza para α foi igual a $1,7 \times 10^{-2}$, indicando que a

contribuição das eficiências é da ordem de 0,5 %. A incerteza correta deve estar entre $1,7 \times 10^{-2}$ e $2,2 \times 10^{-2}$. Sugere-se que, para trabalhos futuros seja desenvolvido um algoritmo que leve em conta este efeito.

A figura 3.9 mostra o histograma da variável aleatória contínua correspondente à geração do parâmetro α . Observa-se que a distribuição dos valores obtidos apresenta uma acentuada simetria em torno do valor médio de alfa que resultou $-2,3 \times 10^{-2}$.

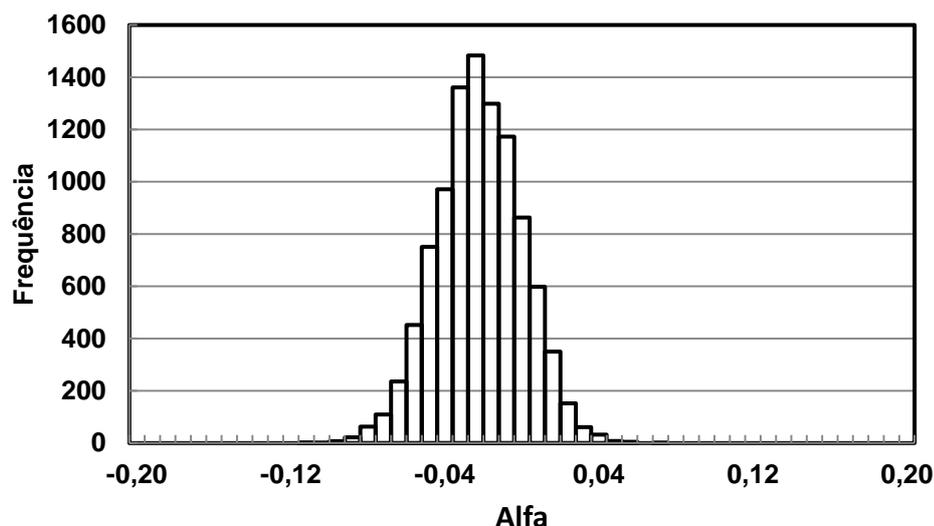


Figura 3.9 – Histograma da distribuição de valores, para a obtenção do parâmetro α .

3.2.3 Valores obtidos para concentrações em materiais de referência

Após a determinação dos parâmetros α e f_{ϕ} , procedeu-se à determinação da concentração de elementos em dois materiais de referências bem conhecidos: GSN e Soil7. Na discussão a seguir, foram utilizados apenas dois elementos, uma vez que o objetivo foi apenas apresentar a metodologia de análise por covariâncias, para este tipo de determinação experimental.

Para isto, aplicou-se a fórmula de concentração, dada pela equação (1.105), apresentada na seção 1.4.2. Os materiais de referência foram irradiados por 8 horas na posição 24A e as concentrações resultantes são encontradas na tabela 3.13 e comparadas com os valores apresentados pelo certificado. Em geral, a concordância é boa, com

exceção dos valores para o material GSN, que estão um pouco abaixo dos esperados. Outras medidas, não mostradas no presente estudo, poderiam ser incluídas para melhorar a estatística de contagem e reduzir a diferença apresentada.

As correlações entre os valores de incerteza obtidos para as concentrações são apresentadas na tabela 3.14. As derivadas da equação (1.105) estão incluídas na tabela A3 do Apêndice A. Nota-se que, em geral, as correlações são baixas. Isto pode ser explicado porque a incerteza dominante corresponde à estatística de contagem, que é uma componente não correlacionada.

Tabela 3.13 - Concentrações obtidas para os materiais de referência GSN e Soil7.

Material de Referência	Elemento	Energia Gama (keV)	Concentração	Incerteza	Concentração	Incerteza
			Experimental (mg kg ⁻¹) *(g kg ⁻¹)	(mg kg ⁻¹) *(g kg ⁻¹)	Referência (mg kg ⁻¹) *(g kg ⁻¹)	(mg kg ⁻¹) *(g kg ⁻¹)
GSN	Co	1173,2	57,0	3,4	65	4
		1332,5	62,8	3,3	65	4
	Fe	1099,3	*22,5	*1,5	*26,2	*0,3
		1291,6	*24,0	*1,3	*26,2	*0,3
Soil7	Co	1173,2	8,6	1,0	8,9	0,9
		1332,5	11,1	0,9	8,9	0,9
	Fe	1099,3	*26,0	*1,0	*25,7	*0,6
		1291,6	*24,8	*1,0	*25,7	*0,6

Correlações entre as incertezas nas concentrações obtidas para os materiais de referência GSN e Soil7.

Material de Referência	Elemento	Energia Gama (keV)	Matriz de Correlação (x 1000)							
GSN	Co	1173,2	1000							
		1332,5	65	1000						
	Fe	1099,3	71	82	1000					
		1291,6	81	94	88	1000				
Soil7	Co	1173,2	29	34	32	36	1000			
		1332,5	42	48	45	52	22	1000		
	Fe	1099,3	126	146	138	156	65	93	1000	
		1291,6	114	132	-35	144	59	86	220	1000

A figura 3.10 e a tabela 3.15 mostram as contribuições das incertezas de cada parâmetro envolvidas na determinação da concentração por (1.104) correspondente à linha gama de 1099,3 keV do ^{59}Fe multiplicadas pelas derivadas parciais da expressão em relação a eles. Pode-se notar em ambos que os parâmetros N_a , f_ϕ , Ef_{Au} e α são os que mais contribuem no cálculo da incerteza.

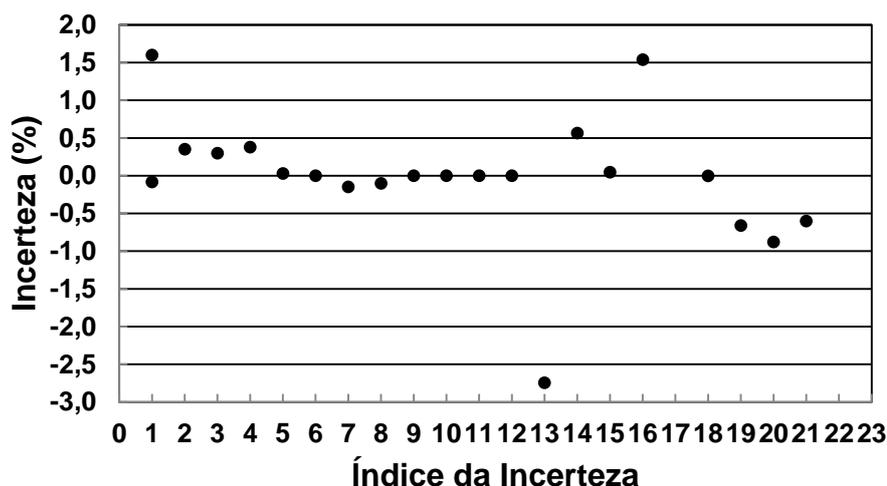


Figura 3.10 - Contribuições das incertezas de cada parâmetro multiplicada pelas derivadas parciais da expressão envolvidas na determinação da concentração do ^{59}Fe .

Tabela 3.15 - Incertezas dos parâmetros que compõem a expressão da concentração.

<i>Concentração</i>		
<i>Índice</i>	<i>Parâmetros</i>	<i>Erro Percentual</i>
1	N_a	1,6
2	W_{Au}	0,4
3	t_{Au}	0,3
4	S_{Au}	0,4
5	D_{Au}	0,0
6	C_{Au}	0,0
7	N_{Au}	-0,1
8	W_a	-0,1
9	t_a	0,0
10	S_a	0,0
11	D_a	0,0
12	C_a	0,0
13	f	-2,7
14	Q_{0Au}	0,6
15	E_{Au}	0,0
16	Ef_{Au}	1,5
17	Q_{0a}	-0,1
18	E_a	0,0
19	Ef_a	-0,7
20	Alfa	-0,9
21	k_{0a}	-0,6

4 CONCLUSÃO

Uma análise rigorosa do Método k_0 deve considerar todos os erros parciais dos parâmetros envolvidos, bem como suas correlações para a determinação da concentração de um elemento presente em uma amostra. A omissão deste tratamento estatístico pode acarretar em uma alteração no valor final para a concentração, além de resultar em uma subestimação ou superestimação na incerteza final obtida, prejudicando análises posteriores que dependam destes valores.

No presente trabalho, todos os parâmetros utilizados na determinação da concentração de um elemento, conforme apresentado na equação (1.105), tiveram todas suas incertezas e respectivas correlações consideradas, mostrando que os objetivos iniciais foram alcançados. Esta equação envolve vinte e um parâmetros diferentes e a influência de cada um deles no resultado final foi verificada, determinando-se aqueles que são os mais importantes na contribuição na incerteza final.

Para um estudo mais profundo das correlações envolvidas no Método k_0 , os valores de k_0 e Q_0 foram determinados para as reações $^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$ e $^{68}\text{Zn}(n,\gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$ e comparados com a literatura. Neste caso, o número de parâmetros envolvidos foi de trinta e quatro para a determinação de k_0 e trinta e oito, para a determinação de Q_0 .

Neste estudo, observou-se que a correlação entre os valores calculados de k_0 é positiva e entre os valores de Q_0 também é positiva, isso se deve ao fato do comparador ser o mesmo e contribuir de forma idêntica na determinação de seus valores. A correlação entre os fatores k_0 e Q_0 é negativa; neste caso o componente comparador se encontra no denominador da expressão que possibilita calcular o valor de k_0 enquanto aparece no numerador da expressão do Q_0 , desta forma o aumento do comparador diminui o valor de k_0 enquanto aumenta o valor de Q_0 . Este estudo, além de aplicar toda a metodologia de análise por covariância, contribuiu para a melhoria dos dados nucleares para este tipo de aplicação.

O fato do valor de α ter resultado muito próximo de zero, indica um campo de nêutrons epitérmicos próximo ao ideal ($1/E$). Isto tem como consequência que os valores obtidos para Q_0 no presente trabalho sejam mais confiáveis, uma vez que a correção em seu valor, associada ao valor de α conforme descrito pela equação (1.108), torna-se muito pequena.

Para trabalhos futuros, sugere-se que o estudo de covariâncias seja aplicado também a outros métodos apresentados na literatura para a obtenção de parâmetros utilizados no Método k_0 . Como exemplo, pode-se citar o Método do Monitor Descoberto^[20], para a determinação dos valores de k_0 e Q_0 .

Outros alvos de interesse poderão ser escolhidos, para os quais os valores de k_0 e Q_0 tenham baixa exatidão ou apresentem discrepâncias entre os dados da literatura, como foi o caso do ^{64}Zn , estudado no presente trabalho.

Como parte do presente trabalho, foi realizada também a análise de padrões de referência irradiados juntamente com um comparador de Au, na mesma posição de irradiação no reator IEA-R1 (24A) utilizada nas medidas de k_0 e Q_0 e em condições de medida rotineiramente realizadas pelo Laboratório de Ativação Neutrônica (LAN) do IPEN. Esta análise possibilitou estudar as correlações envolvidas nos valores de concentração de um mesmo elemento presente em amostras diferentes, para a mesma energia gama, e para energias gamas diferentes. Permitiu também a análise das correlações entre elementos diferentes presentes em uma mesma amostra, e entre concentrações de elementos diferentes presentes em amostras diferentes. Além disto, possibilitou determinar quais são os parâmetros que mais influenciam na estimativa final da incerteza da concentração de um elemento.

Como a distância fonte-detector para o arranjo do (LAN) foi bem menor que para o arranjo do Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN), estas eficiências resultaram uma ordem de grandeza maior, para o caso do LAN, aumentando proporcionalmente os valores desta correção. Este efeito gerou incertezas maiores, aumentando os valores das incertezas finais para a concentração dos elementos nas amostras. Este estudo poderá servir de base para a análise de incertezas, em condições práticas no LAN.

Sugere-se também implementar essa metodologia no Laboratório de Ativação Nuclear, por meio do desenvolvimento de um programa de computador que possibilite analisar todas as correlações entre os parâmetros envolvidos na determinação da concentração de um elemento presente em uma amostra pelo Método dos Monitores Descobertos. Este programa poderá fornecer a concentração de um elemento em função da energia gama considerada. No caso de um elemento com mais de uma linha gama, o programa deverá determinar a correlação entre as concentrações obtidas para cada energia considerada e a concentração média, calculada com auxílio dessas correlações.

O desenvolvimento do presente trabalho propiciou a publicação de dois artigos em periódico internacional^[72,73].

APÊNDICE A

As tabelas seguintes apresentam as derivadas das expressões de k_0 , Q_0 e da Concentração de Elemento, com relação a cada parâmetro envolvido.

Tabela A1 – Derivadas em relação ao parâmetro k_0 , dado pela equação (1.106). Os índices 1, 2, 3 e 4, correspondem à amostra descoberta, amostra coberta com cádmio, comparador descoberto e comparador coberto com cádmio, respectivamente.

Parâmetro	Derivada
N_1	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{a1} f_{g1} G_{thAu}}{\varepsilon_a G_{tha} W_1 C_1 D_1 S_1 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
f_{g1}	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{a1} f_{g1} G_{thAu} N_1}{\varepsilon_a G_{tha} W_1 C_1 D_1 S_1 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
f_{a1}	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{g1} G_{thAu} N_1}{\varepsilon_a G_{tha} W_1 C_1 D_1 S_1 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
D_1	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{a1} f_{g1} G_{thAu} N_1}{\varepsilon_a G_{tha} W_1 C_1 D_1^2 S_1 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
C_1	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{a1} f_{g1} G_{thAu} N_1}{\varepsilon_a G_{tha} W_1 C_1^2 D_1 S_1 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
S_1	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{a1} f_{g1} G_{thAu} N_1}{\varepsilon_a G_{tha} W_1 C_1 D_1 S_1^2 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
W_1	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{a1} f_{g1} G_{thAu} N_1}{\varepsilon_a G_{tha} W_1^2 C_1 D_1 S_1 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
f_{g2}	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{a2} G_{thAu} N_2}{\varepsilon_a F_{Cda} G_{tha} W_2 C_2 D_2 S_2 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$

Tabela A1 – (cont.)

Parâmetro	Derivada
D_3	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{a3} f_{g3} G_{thAu} N_3 \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a G_{tha} W_3 C_3 D_3^2 S_3 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$
C_3	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{a3} f_{g3} G_{thAu} N_3 \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a G_{tha} W_3 C_3^2 D_3 S_3 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$
S_3	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{a3} f_{g3} G_{thAu} N_3 \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a G_{tha} W_3 C_3 D_3 S_3^2 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$
W_3	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{a3} f_{g3} G_{thAu} N_3 \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a G_{tha} W_3^2 C_3 D_3 S_3 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$
N_4	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{a4} f_{g4} G_{thAu} \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a F_{CdAu} G_{tha} W_4 C_4 D_4 S_4 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$
f_{g4}	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{a4} G_{thAu} N_4 \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a F_{CdAu} G_{tha} W_4 C_4 D_4 S_4 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$
f_{a4}	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{g4} G_{thAu} N_4 \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a F_{CdAu} G_{tha} W_4 C_4 D_4 S_4 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$
D_4	$\frac{\varepsilon_{Au} f_{a4} f_{g4} G_{thAu} N_4 \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a F_{CdAu} G_{tha} W_4 C_4 D_4^2 S_4 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$

Tabela A1 – (cont.)

Parâmetro	Derivada
f_{a2}	$-\frac{\varepsilon_{Au} f_{g2} G_{thAu} N_2}{\varepsilon_a F_{Cda} G_{tha} W_2 C_2 D_2 S_2 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
f_{a2}	$-\frac{\varepsilon_{Au} f_{g2} G_{thAu} N_2}{\varepsilon_a F_{Cda} G_{tha} W_2 C_2 D_2 S_2 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
N_2	$-\frac{\varepsilon_{Au} f_{a2} f_{g2} G_{thAu} N_2}{\varepsilon_a F_{Cda} G_{tha} W_2 C_2 D_2^2 S_2 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
C_2	$-\frac{\varepsilon_{Au} f_{a2} f_{g2} G_{thAu} N_2}{\varepsilon_a F_{Cda} G_{tha} W_2 C_2^2 D_2 S_2 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
S_2	$-\frac{\varepsilon_{Au} f_{a2} f_{g2} G_{thAu} N_2}{\varepsilon_a F_{Cda} G_{tha} W_2 C_2 D_2 S_2^2 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
W_2	$-\frac{\varepsilon_{Au} f_{a2} f_{g2} G_{thAu} N_2}{\varepsilon_a F_{Cda} G_{tha} W_2^2 C_2 D_2 S_2 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
F_{Cda}	$-\frac{\varepsilon_{Au} f_{a2} f_{g2} G_{thAu} N_2}{\varepsilon_a F_{Cda}^2 G_{tha} W_2 C_2 D_2 S_2 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
N_3	$-\frac{\varepsilon_{Au} f_{a3} f_{g3} G_{thAu} \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a G_{tha} W_3 C_3 D_3 S_3 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$
f_{g3}	$-\frac{\varepsilon_{Au} f_{a3} f_{g3} G_{thAu} N_3 \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a G_{tha} W_3 C_3 D_3 S_3 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$
f_{a3}	$-\frac{\varepsilon_{Au} f_{g3} G_{thAu} N_3 \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a G_{tha} W_3 C_3 D_3 S_3 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$

Tabela A1 – (cont.)

Parâmetro	Derivada
C_4	$-\frac{\varepsilon_{Au} f_{a4} f_{g4} G_{thAu} N_4 \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a F_{CdAu} G_{tha} W_4 C_4^2 D_4 S_4 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$
S_4	$-\frac{\varepsilon_{Au} f_{a4} f_{g4} G_{thAu} N_4 \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a F_{CdAu} G_{tha} W_4 C_4 D_4 S_4^2 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$
W_4	$-\frac{\varepsilon_{Au} f_{a4} f_{g4} G_{thAu} N_4 \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a F_{CdAu} G_{tha} W_4^2 C_4 D_4 S_4 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$
F_{CdAu}	$-\frac{\varepsilon_{Au} f_{a4} f_{g4} G_{thAu} N_4 \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a F_{CdAu}^2 G_{tha} W_4 C_4 D_4 S_4 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)^2}$
G_{thAu}	$\frac{\varepsilon_{Au} \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a G_{tha} \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
G_{tha}	$-\frac{\varepsilon_{Au} G_{thAu} \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a G_{tha}^2 \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
ε_{Au}	$\frac{G_{thAu} \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a G_{tha} \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$
ε_a	$-\frac{\varepsilon_{Au} G_{thAu} \left(\frac{f_{a1} f_{g1} N_1}{W_1 C_1 D_1 S_1} - \frac{f_{a2} f_{g2} N_2}{F_{Cda} W_2 C_2 D_2 S_2} \right)}{\varepsilon_a^2 G_{tha} \left(\frac{f_{a3} f_{g3} N_3}{W_3 C_3 D_3 S_3} - \frac{f_{a4} f_{g4} N_4}{F_{CdAu} W_4 C_4 D_4 S_4} \right)}$

Tabela A2 – Derivadas em relação ao parâmetro Q_0 , dado pela equação (1.107). Os índices 1, 2, 3 e 4, correspondem à amostra descoberta, amostra coberta com cádmio, comparador descoberto e comparador coberto com cádmio, respectivamente.

Parâmetro	Derivada
N_I	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} G_{eAu} G_{tha} S_2 W_2 \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} G_{ea} G_{thAu} N_2 S_1 W_1 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)^2}$
f_{gI}	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} G_{eAu} G_{tha} N_1 S_2 W_2 \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} G_{ea} G_{thAu} N_2 S_1 W_1 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)^2}$
f_{aI}	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} G_{eAu} N_1 G_{tha} S_2 W_2 \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} G_{ea} G_{thAu} N_2 S_1 W_1 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)^2}$
D_I	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} G_{eAu} G_{tha} N_1 S_2 W_2 \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{C_1 D_1^2 f_{a2} f_{g2} G_{ea} G_{thAu} N_2 S_1 W_1 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)^2}$
C_I	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} G_{eAu} G_{thaa} N_1 S_2 W_2 \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{C_1^2 D_1 f_{a2} f_{g2} G_{ea} G_{thau} N_2 S_1 W_1 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)^2}$
S_I	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} G_{ea} G_{thAu} N_1 S_2 W_2 \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} G_{ea} G_{thAu} N_2 S_1^2 W_1 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)^2}$
W_I	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} G_{ea} G_{thAu} N_1 S_2 W_2 \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} G_{ea} G_{thAu} N_2 S_1 W_1^2 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)^2}$
N_2	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} G_{ea} G_{thAu} N_1 S_2 W_2 \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} G_{ea} G_{thAu} N_2 S_1 W_1^2 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)^2}$

Tabela A2 – (cont.)

Parâmetro	Derivada
fg_2	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} G_{ea} G_{thAu} N_1 S_2 W_2 \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4 - 1}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2}^2 G_{ea} G_{thAu} N_2^2 S_1 W_1^2 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)^2}$
fa_2	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} G_{ea} G_{thAu} N_1 S_2 W_2 \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4 - 1}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2}^2 G_{ea} G_{thAu} N_2^2 S_1 W_1^2 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)^2}$
C_2	$-\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} G_{ea} G_{thAu} N_1 S_2 W_2 \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4 - 1}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2}^2 G_{ea} G_{thAu} N_2^2 S_1 W_1^2 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)^2}$
S_2	$-\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} G_{ea} G_{thAu} N_1 S_2 W_2 \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4 - 1}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2}^2 G_{ea} G_{thAu} N_2^2 S_1 W_1^2 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)^2}$
W_2	$-\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} G_{ea} G_{thAu} N_1 S_2 W_2 \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4 - 1}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2}^2 G_{ea} G_{thAu} N_2^2 S_1 W_1^2 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)^2}$
F_{Cda}	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_2 D_2 f_{a1} f_{g1} G_{ea} G_{thAu} N_1 S_2 \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4 - 1}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2}^2 G_{ea} G_{thAu} N_2^2 S_1 W_1^2 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)^2}$
N_3	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_4 D_4 f_{a3} F_{Cda} f_{g3} G_{eAu} G_{tha} S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} G_{ea} G_{thAu} N_4 S_3 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3}$
f_{g3}	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_4 D_4 f_{a3} F_{Cda} G_{eAu} G_{tha} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} G_{ea} G_{thAu} N_4 S_3 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3}$

Tabela A2 – (cont.)

Parâmetro	Derivada
f_{a3}	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_4 D_4 F_{Cda} f_{g3} G_{eAu} G_{tha} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} G_{ea} G_{thAu} N_4 S_3 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3}$
D_3	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_4 D_4 f_{a1} F_{Cda} f_{g3} G_{eAu} G_{tha} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3^2 f_{a4} f_{g4} G_{ea} G_{thAu} N_4 S_3 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3}$
C_3	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_4 D_4 f_{a1} F_{Cda} f_{g3} G_{eAu} G_{tha} N_3 S_4 W_4}{C_3^2 D_3 f_{a4} f_{g4} G_{ea} G_{thAu} N_4 S_3 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3}$
S_3	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_4 D_4 f_{a1} F_{Cda} f_{g3} G_{eAu} G_{tha} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} G_{ea} G_{thAu} N_4 S_3^2 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3}$
W_3	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_4 D_4 f_{a1} F_{Cda} f_{g3} G_{eAu} G_{tha} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} G_{ea} G_{thAu} N_4 S_3 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3^2}$
N_4	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_4 D_4 f_{a1} F_{Cda} f_{g3} G_{eAu} G_{tha} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} G_{ea} G_{thAu} N_4^2 S_3 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3}$
f_{g4}	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_4 D_4 f_{a1} F_{Cda} f_{g3} G_{eAu} G_{tha} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4}^2 G_{ea} G_{thAu} N_4 S_3 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3}$
f_{a4}	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_4 D_4 f_{a1} F_{Cda} f_{g3} G_{eAu} G_{tha} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4}^2 f_{g4} G_{ea} G_{thAu} N_4 S_3 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3}$
D_4	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_4 f_{a3} F_{Cda} f_{g3} G_{eAu} G_{tha} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} G_{ea} G_{thAu} N_4 S_3 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3}$

Tabela A2 – (cont.)

Parâmetro	Derivada
C_4	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) D_4 f_{a3} F_{Cda} f_{g3} G_{eAu} G_{tha} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} G_{ea} G_{thAu} N_4 S_3 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3}$
S_4	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_4 D_4 f_{a3} F_{Cda} f_{g3} G_{eAu} G_{tha} N_3 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} G_{ea} G_{thAu} N_4 S_3 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3}$
W_4	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_4 D_4 f_{a3} F_{Cda} f_{g3} G_{eAu} G_{tha} N_3 S_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} G_{ea} G_{thAu} N_4 S_3 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3}$
F_{CdAu}	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) C_4 D_4 f_{a3} f_{g3} G_{eAu} G_{tha} N_3 S_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} G_{ea} G_{thAu} N_4 S_3 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right) W_3}$
G_{thAu}	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) G_{eAu} G_{tha} \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 F_{a4} F_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{G_{ea} G_{thAu}^2 \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)}$
G_{tha}	$\frac{\left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}\right) G_{eAu} \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{G_{ea} G_{thAu} \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)}$
Q_{0Au}	$\frac{G_{eAu} G_{tha} \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{E_{rAu}^\alpha G_{ea} G_{thAu} \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)}$
E_{rAu}	$\frac{\alpha E_{rAu}^{-\alpha-1} (Q_{0Au} - 0,429) G_{eAu} G_{tha} \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1\right)}{G_{ea} G_{thAu} \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1\right)}$

Tabela A2 – (cont.)

Parâmetro	Derivada
α	$\frac{\left(\frac{\ln(E_{rAu})(Q_{0Au} - 0,429)}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,256}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} - \frac{0,858}{(2\alpha + 1)^2 0,55^\alpha} \right) G_{eAu} G_{tha} \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1 \right)}{G_{ea} G_{thAu} \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1 \right)} +$ $+ \frac{0,429 \ln(E_{ra})}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha E_{ra}^\alpha} - \frac{0,256}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha E_{ra}^\alpha} + \frac{0,858}{(2\alpha + 1)^2 0,55^\alpha E_{ra}^\alpha}$
G_{ea}	$\frac{\left(\frac{(Q_{0Au} - 0,429)}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) G_{eAu} G_{tha} \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1 \right)}{G_{ea}^2 G_{thAu} \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1 \right)}$
G_{eAu}	$\frac{\left(\frac{(Q_{0Au} - 0,429)}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) G_{thAu} \left(\frac{C_4 D_4 f_{a3} F_{CdAu} f_{g3} N_3 S_4 W_4}{C_3 D_3 f_{a4} f_{g4} N_4 S_3 W_3} - 1 \right)}{G_{ea} G_{thAu} \left(\frac{C_2 D_2 f_{a1} F_{Cda} f_{g1} N_1 S_2 W_2}{C_1 D_1 f_{a2} f_{g2} N_2 S_1 W_1} - 1 \right)}$
E_{ra}	$\frac{0,429 \alpha E_{ra}^{-\alpha-1}}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}$

Tabela A3 – Derivadas em relação concentração do elemento, dada pela equação (1.105).

Parâmetro	Derivada
N_a	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} \left(\frac{Q_{0au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a W_a}$
α	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_{Au} \left(\frac{\ln(E_{rAu}) (Q_{0au} - 0,429)}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,26}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} - \frac{0,858}{(2\alpha + 1)^2 0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a W_a}$ $\left(C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_{Au} \left(\frac{\ln(E_{rAu}) (Q_{0au} - 0,429)}{E_{rAu}^\alpha} + \frac{0,26}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} - \frac{0,858}{(2\alpha + 1)^2 0,55^\alpha} \right) \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au} \right)$ $\left(C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right)^2 \right) S_a t_a W_a \right)$
W_{Au}	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a W_a}$
t_{Au}	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a W_a}$
S_{aI}	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a W_a}$
D_{Au}	$\frac{C_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a W_a}$
C_{Au}	$\frac{D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a W_a}$
N_{Au}	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au}^2 \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a W_a}$
W_a	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a W_a^2}$

Tabela A3 – (cont.)

Parâmetro	Derivada
C_a	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a^2 D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a W_a}$
t_a	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a^2 W_a}$
S_a	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a^2 t_a W_a}$
D_a	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a^2 \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a W_a}$
f	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a W_a}$ $\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right)^2 S_a t_a W_a}$
Q_{0Au}	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a E_{rAu}^\alpha \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a W_a}$
E_{rAu}	$\frac{\alpha C_{Au} D_{Au} E_{Au}^{-\alpha-1} \varepsilon_{Au} N_a (Q_{0Au} - 0,429) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a t_a W_a}$
Q_{0a}	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0Au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a E_{ra}^\alpha \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right)^2 S_a t_a W_a}$
E_{ra}	$\frac{\alpha C_{Au} D_{Au} E_a^{-\alpha-1} \varepsilon_{Au} N_a (Q_{0Au} - 0,429) \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a k_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right)^2 S_a t_a W_a}$

Tabela A3 – (cont.)

Parâmetro	Derivada
ε_a	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a \varepsilon_a^2 K_{0a} N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a^t W_a}$
K_{0a}	$\frac{C_{Au} D_{Au} \varepsilon_{Au} N_a \left(\frac{Q_{0au} - 0,429}{E_{rAu}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_{Au} W_{Au}}{C_a D_a^2 \varepsilon_a K_{0a}^2 N_{Au} \left(\frac{Q_{0a} - 0,429}{E_{ra}^\alpha} + f_\phi + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha} \right) S_a^t W_a}$

APÊNDICE B

Listagem parcial do código COVAR, para a determinação das covariâncias entre os parâmetros k_0 e Q_0 determinados experimentalmente, aplicando-se as equações (1.106) e (1.107).

```

C   COVAR
C   28/09/10 - Vanderlei Cardoso / Mauro S.Dias
C   DETERMINA A COVARIANCIA ENTRE OS K0S E Q0S CALCULADOS;
.
.
.
REAL*4 N1,N2,N3,N4,KCHARACTER*70 INP1,INP2,INP3, OUT,AAA
DATA INP1/'C:\LMN\FORTRAN\DATA\COVAR1.DAT'/
DATA INP2/'C:\LMN\FORTRAN\DATA\COVAR2.DAT'/
DATA INP3/'C:\LMN\FORTRAN\DATA\COVAR3.DAT'/
DATA OUT/'C:\LMN\FORTRAN\PROG\COVAR.OUT'/
.
.
.
READ(1,*) N1(I),FZ1(I),FA1(I),D1(I),C1(I),S1(I),W1(I),GTHI(I),
'EFI(I),FCDI(I),Q0C(I),ERC(I),ALFA(I),GEI(I),ERI(I)
  READ(1,*) N2(I),FZ2(I),FA2(I),D2(I),C2(I),S2(I),W2(I),GTHI(I),
'EFI(I),FCDI(I),Q0C(I),ERC(I),ALFA(I),GEI(I),ERI(I)
  READ(1,*)
N3(I),FZ3(I),FA3(I),D3(I),C3(I),S3(I),W3(I),GTHC(I),'EFC(I),FCDC(I),Q0C(I),ERC(I),
ALFA(I),GEC(I),ERI(I)
  READ(1,*) N4(I),FZ4(I),FA4(I),D4(I),C4(I),S4(I),W4(I),GTHC(I),
'EFC(I),FCDC(I),Q0C(I),ERC(I),ALFA(I),GEC(I),ERI(I)
.
.
.
C   DERIVADAS EM RELAÇÃO AOS PARAMETROS DO K0
    DO 600 I=1,2
C   PRIMEIRO CONJUNTO
C   N1
DEL(I,1)= (Efc(i)*fa1(i)*fz1(i)*Gthc(i))/(Efi(i)*Gthi(i)*w1(i)
 '*C1(i)*D1(i)*S1(i)*((fa3(i)*fz3(i)*N3(i))/(w3(i)*C3(i)*D3(i) '*S3(i))-
 (fa4(i)*fz4(i)*N4(i))/(Fcdc(i)*w4(i)*C4(i)*D4(i)*S4(i)))
.
.
.
C   DERIVADAS EM RELAÇÃO AOS PARAMETROS DO Q0
C   N1
DEL(J,1)=-(((Q0c(i)-0.429)/Erc(i)**alfa(i)+0.429/((2*alfa(i)+1)
 '*0.55**alfa(i)))*C2(i)*D2(i)*FA1(i)*FCDI(i)*FZ1(i)*GEC(i)*GTHI(i)
 '*S2(i)*W2(i)*((C4(i)*D4(i)*FA3(i)*FCDC(i)*FZ3(i)*N3(i)*S4(i)
 '*W4(i))/(C3(i)*D3(i)*FA4(i)*FZ4(i)*N4(i)*S3(i)*W3(i))-1))/(C1(i)

```

```

'*D1(i)*FA2(i)*FZ2(i)*GEI(i)*GTHC(i)*N2(i)*S1(i)*W1(i)*((C2(i)
'*D2(i)*FA1(i)*FCDI(i)*FZ1(i)*N1(i)*S2(i)*W2(i))/(C1(i)*D1(i)
'*FA2(i)*FZ2(i)*N2(i)*S1(i)*W1(i)-1)**2)
.
.
.
C   CALCULO DA MATRIZ DE COVARIANCIA
DO 1110 I=1,LL
DO 1510 J=1,LL
COVAR(I,J) = 0
DO 1610 K=1,M2
PARC = DEL(I,K)*DEL(J,K)*RO(I,J,K)*SIG(I,K)*SIG(J,K)
COVAR(I,J) = COVAR(I,J) + PARC
1610 CONTINUE
WRITE(6,*) 'COVAR FINAL'
WRITE(6,*) 'I,I'  ' J,J,' COVAR(I,J)',COVAR(I,J)
.
.
.
C   MATRIZ DE CORRELACAO
WRITE(6,*) 'CORRELACAO FINAL'
DO 1120 I=1,LL
DO 1520 J=1,LL
CORREL(I,J) = 1000*COVAR(I,J)/SQRT(COVAR(I,I)*COVAR(J,J))
WRITE(6,*) 'I,I'  ' J,J,' CORREL(I,J)',CORREL(I,J)
1520 CONTINUE
1120 CONTINUE
CLOSE (1)
CLOSE (2)
CLOSE (3)
CLOSE (6)
STOP
END

```

APÊNDICE C

Listagem parcial do código TRIPLEB, para a determinação do parâmetro α pelo Método dos Três Monitores Descobertos, dado pela equação (1.77) e sua incerteza calculada por Monte Carlo.

```

*****
C   TRIPLE BARE
C   DETERMINACAO DO PARAMETRO ALFA(I) SEM CADMIO E SUA
INCERTEZA POR MONTE CARLO
C   17/09/11 - Vanderlei Cardoso / Mauro S.Dias
REAL*4 N,K0,N2,K02
INTEGER, DIMENSION(1):: SEED
INTEGER*4 COUNT
DATA INP/'C:\LMN\FORTRAN\DATA\TRIPLEB.DAT'/
DATA OUT/'C:\LMN\FORTRAN\PROG\TRIPLEB1.OUT'/
DATA OUT2/'C:\LMN\FORTRAN\PROG\TRIPLEB2.OUT'/
CALL SYSTEM_CLOCK( Count )
Seed = Count
CALL RANDOM_SEED( PUT = Seed )
.
.
.
READ(1,*) NH, ALFA1, ALFA2, NCANAL
DO 10 I=1,3
  READ(1,*) N(I),FZ(I),FA(I),D(I),C(I),S(I),W(I),GTH(I),
'EF(I),GE(I),Q0(I),ER(I),K0(I)
  READ(1,*) SN(I),SFZ(I),SFA(I),SD(I),SC(I),SS(I),SW(I),SGTH(I),
'SEF(I),SGE(I),SQ0(I),SER(I),SK0(I)
.
.
.
CALL SRANDOM (SRAN)
N2(J) = N(J) + SN(J)*(SRAN-6)
20  CONTINUE
.
.
.
C   CALCULANDO OS PARÂMETROS "ASP1,ASP2 E ASP3 USADOS PARA
DETERMINAÇÃO DE ALFA(I)
ASP1=N2(1)*FA2(1)/(W2(1)*S2(1)*D2(1)*C2(1))
ASP2=N2(2)*FA2(2)/(W2(2)*S2(2)*D2(2)*C2(2))
ASP3=N2(3)*FA2(3)/(W2(3)*S2(3)*D2(3)*C2(3))
.
.
.
C   *****CALCULANDO ALFA(I)*****
      ALFA(I) = ALFA1
Q02A(1)=(Q02(1)-0.429)/ER2(1)**ALFA(I) +
*0.429/((2*ALFA(I)+1)*0.55**ALFA(I))

```

```

Q02A(2)=(Q02(2)-0.429)/ER2(2)**ALFA(I) +
*0.429/((2*ALFA(I)+1)*0.55**ALFA(I))
Q02A(3)=(Q02(3)-0.429)/ER2(3)**ALFA(I) +
*0.429/((2*ALFA(I)+1)*0.55**ALFA(I))
FALFA1 = (A - B)*Q02A(1)*GE2(1)/GTH2(1)
FALFA2 = -A*Q02A(2)*GE2(2)/GTH2(2)
FALFA3 = B*Q02A(3)*GE2(3)/GTH2(3)
.
.
.
C  CALCULANDO O PRAMETRO f
F0=((GE(1)*K0(1)*EF(1)*Q0(1)/(K0(2)*EF(2)))-(GE(2)
*'ASP1*Q0(2)/ASP2))/(GTH(2)*ASP1/ASP2 - GTH(1)*K0(1)
*'EF(1)/(K0(2)*EF(2)))
WRITE(2,*)'PARAMETRO f=',F0
WRITE(2,*)'*****'
WRITE(2,*)'***** ALFA INICIAL    = ',ALFA0
WRITE(2,*)'*****'
WRITE(2,*)'***** F INICIAL      = ',F0
WRITE(2,*)'*****'
WRITE(2,*)'***** ASP1 INICIAL   = ',ASP1
WRITE(2,*)'*****'
WRITE(2,*)'***** ASP2 INICIAL   = ',ASP2
WRITE(2,*)'*****'
WRITE(2,*)'***** ASP3 INICIAL   = ',ASP3
WRITE(2,*)'*****'
WRITE(2,*)'***** A INICIAL     = ',A
WRITE(2,*)'*****'
WRITE(2,*)'***** B INICIAL     = ',B
WRITE(2,*)'*****'
CLOSE (1)
CLOSE (2)
CLOSE (3)
STOP
END
*****

```

5 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] GUINN, V.P., Nuclear activation analysis 45 years after George Hevesy's discovery Journal of of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 59, No. 2, 309 -314, 1980.
- [2] WESTPHAL, G. P., GRASS, F.,H. LEMMEL, STERBA, J., A low-cost system for rapid automatic neutron activation analysis at small research reactors. Journal of of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 272, No.2, 267–27, 2007.
- [3] MOON, J. H., KIM, S. H., CHUNG, Y. S., KIM,Y. J., Application of the k_0 -NAA method at the HANARO research reactor. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 271, No.2, 289–295, 2007.
- [4] ABUGASSA, O. ABUGASSA, S. O., KHRBISH, Y. S., BASHIR, A. T., DOUBALI, K., BEN FAID, N., Determination of trace elements in human gallstone and bile by k_0 -INAA. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 269, No.3, 643–646, 2006.
- [5] MENEZES, M. A. B. C., PALMIERI, H. E. L., LEONEL, L. V., NALINI JR., H. A., JÁCIMOVI, R., Iron Quadrangle, Brazil: Elemental concentration determined by k_0 -instrumental neutron activation analysis Part I: Soil samples. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 270, No.1, 111–116, 2006.
- [6] FREITAS, M. C., PACHECO, A. M. G., VIEIRA, B. J., RODRIGUES, A. F., Neutron activation analysis of atmospheric biomonitors from the Azores: A comparative study of lower and higher plants. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 270, No.1, 21–27, 2006.
- [7] De CORTE, F., DEJAEGER, M., HOSSAIN, S. M., VANDENBERGHE, D., De WISPELAERE, A., VAN DEN HAUTE, P., A performance comparison of k_0 -based ENAA and NAA in the (K, Th, U) radiation dose rate assessment for the luminescence dating of sediments. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 263, No. 3, 659- 665, 2005.

- [8] SUN, G. M., PARK, C. S., CHOI, H. D., Determination of the prompt k_0 factors and partial γ -ray production cross sections for B, N, Si, P, S and Cl. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 264, No. 3, 603 – 616, 2005.
- [9] De CORTE, F., DE WISPELAERE, A., The performance of k_0 -INAA in recent exercises on the certification of rare earth elements in bio- environmental materials. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 259, No. 3, 401- 408, 2004.
- [10] SUDARSHAN, K., NAIR, A. G. C., GOSWAMI, A., A proposed k_0 based methodology for neutron activation analysis of samples of non-standard geometry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 256, No. 1, 93–98, 2003.
- [11] LIN, X., HENKELMANN, R., Contents of arsenic, mercury and other trace elements in Napoleon.s hair determined by INAA using the k_0 -method. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 257, No. 3, 615 – 620, 2003.
- [12] GLASCOCK, M.D., An Overview of Neutron Activation Analysis. University of Missouri Research Reactor (MURR). Disponível em: www.itarp.uiuc.edu/atam/teaching/documents/naaoverview.pdf, 2004. *Acessado em 22/09/2011*.
- [13] BODE, P., De NADAI FERNANDES E. A., GREENBERG, R. R., Metrology for Chemical Measurements and the Position of INAA. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 245, 109-114, 2000.
- [14] BODE, P., Quality and Project management scientific research in INAA. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 245, No. 1, 133-135, 2000.
- [15] De CORTE F., k_0 and Comparator NAA: Influences and Interactions. *J. radioanal. Nucl. Chem.*, 245/1, 157-161, 2000.
- [16] SIMONITS, A., De CORTE F., HOSTE, J., Single-Comparator Methods in reactor Neutron Activation Analysis. *J. radioanal. Nucl. Chem.*, 24, 31-46, 1975.
- [17] KOLOTOV, V.P., De CORTE F., Compilation of k_0 and Related Data for Neutron-Activation Analysis (NAA) in the Form of an Eletronic Database (IUPAC). *Pure and Appl. Chem.*, 76,1921-1925, 2004.
- [18] De CORTE F., The k_0 -Standardization Method. *A Move to the Optimisation of Neutron Activation Analysis*. Ryksuniversiteit Gent, Faculteit Van de Wetenschappen, 464, 1986.

- [19] DUNG, H. M., SASAJIMA, F., Determination of α and f for k_0 -NAA in irradiation sites with high thermalized neutrons. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 257, No. 3, 509 – 512, 2003.
- [20] JERAN, Z., JACIMOVIC, R., SANSONE, U., BELLI, M., The use of k_0 -INAA for determination of surface contamination of some aquatic plants by trace elements. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 257, No. 3, 633 – 637, 2003.
- [21] ROBOUCH, P., ARANA, G., EGUSKIZA, M., POMME, S., ETXEBARRIA, N., Uncertainty Budget for k_0 -NAA., *J. radioanal. Nucl. Chem.*, 245/1, 195-197, 2000.
- [22] VAN LIERD, S., De CORTE F., BOSSUS, D., VAN SLUIJS, R., POMME, S., Determination of k_0 and related nuclear data for short-lived radionuclides to be used in Kaizero-NAA at DSM research. *Nucl. Instrum. Methods A422*, 874, 1999.
- [23] 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* 85, 47-67, 2003.
- [24] FIRESTONE, R.B., 2008. Comparison of neutron activation analysis k_0 and σ_0 data. Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley CA. In: *Proceedings of the Third Co-ordination Meeting on a Reference Database for Neutron Activation Analysis, 17–19 November 2008—IAEA, Vienna, 2008.*
- [25] DE CORTE, F., SIMONITS, A., De WISPELEAERE, A., ELEUK, A., k_0 – Measurements and Related Nuclear data compilation for (n, γ) Reactor Neutron Activation analysis (experimental). *J. radioanal. Nucl. Chem.* 133, 3, 1989.
- [26] FIRESTONE, R.B., Comunicação pessoal, 2011.
- [27] SMODIŠ, B., BUCAR, T., Overall measurement uncertainty of k_0 -based neutron activation analysis. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 269, No.2, 311–316, 2006.
- [28] De CORTE, F., SIMONITS, A., De WISPELAERE, A., HOSTE, J., Accuracy and Applicability of the k_0 – Standardization Method. *J. radioanal. Nucl. Chem.* 113/1, 145-161, 1987.

- [29] YOUNES, N., ROBOUCH, P., A Web tool for calculating k_0 -NAA uncertainties. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 257, No. 3, 665 – 667, 2003.
- [30] ROBOUCH, P., ARANA, G., EGUSKIZA, M., POMME, S., ETXEBARRIA N., Uncertainty Budget for k_0 -NAA., J. radioanal. Nucl. Chem., 245/1, 195-197, 2000.
- [31] KRAGTEN, J., Calculating Standard Deviations and Confidence Intervals with a Universally Applicable Spreadsheet Technique. ANALYST, 119 - 161, 1994.
- [32] KUCERA, J., BODE, P., STEPANEK, V., The 1993 ISO Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement Applied to NAA. J. radioanal Nucl. Chem., 245/1, 115-122, 2000.
- [33] ROSSBACH, M., BLAAUW, M., BACCHI, M. A., LIN, XILEI. The K_0 -IAEA program. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 274, No. 3, 657–662, 2007 . Acesso: <http://www-naweb.iaea.org/napc/iachem/K0-IAEA.html>, 2011
- [34] IAEA. The k_0 -IAEA program manual for version 5.00 IAEA-Vienna, Austria TU Delft, The Netherlands, 2007. <http://www-naweb.iaea.org/napc/iachem/K0-IAEA.HTML>, 2011
- [35] DIAS, M.S.; TAKEDA, M. N.; KOSKINAS, M. F., Application of Monte Carlo simulation to the prediction of extrapolation curves in the coincidence technique. Applied Radiation and Isotopes, Grã-Bretanha, v. 64, 1186-1192, 2006.
- [36] KOSKINAS, M. F.; MOREIRA, D. S.; TAKEDA, M. N.; SENEDA, J. A.; DIAS, M.S. Primary standardization of ^{72}Ga . Applied Radiation and Isotopes, v. 64, 1225-1228, 2006.
- [37] KOSKINAS, M. F.; SILVA, E.A.; YAMAZAKI, I.M.; DIAS, M.S.. Standardization of Am-241 solution. Applied Radiation and Isotopes, Grã-Bretanha, v. 64, 1238-1241, 2006.
- [38] MAIDANA, N.L.; TAKEDA, M.N.; DIAS, M.S.; KOSKINAS, M.F.; VANIN, V.R. Absolute measurement of ^{242g}Am sources activities in the $^{241}\text{Am}(n,\gamma)$ cross-section determination - Improvement by simulation. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A - Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, UK, v. 553, 559-568, 2005.

- [39] TAKEDA, M.N.; DIAS, M.S.; KOSKINAS, M.F.. Application of Monte Carlo Simulation to ^{134}Cs Standardization by Means of $4\pi\beta\text{-}\gamma$ Coincidence System. IEEE Transactions on Nuclear Science, EUA, v. 52, n. 5, 1716-1720, 2005.
- [40] BRANCACCIO, F.; DIAS, M.S.; KOSKINAS, M.F., Automatic system for ionization chamber current measurements. Applied Radiation and Isotopes, v. 61, n. 6, 1339-1342, 2004.
- [41] MAIDANA, N.L.; MESA, J.; VANIN, V. R.; CASTRO, R.M.; DIAS, M.S.; KOSKINAS, M.F. $^{57}\text{Co}(n,\gamma)^{58}\text{Co}$ reaction cross section: Thermal and resonance integral measurements and energy dependence. Physical Review C - Nuclear Physics, Estados Unidos, v. 70, n. 014602 1-9, 2004.
- [42] DIAS, M.S.; CARDOSO, V.; VANIN, V.R.; KOSKINAS, M. F. Combination of nonlinear function and mixing method for fitting HPGe efficiency curve in the 59-2754 keV energy range. Applied Radiation and Isotopes, v. 60, n. 5, 683-687, 2004.
- [43] BEVINGTON, P. R., ROBINSON, D. K., Data Reduction and Error Analysis for the Physical Science. 2nd. Ed. McGraw-Hill, 1992.
- [44] BECKURTZ, K.H.; WIRTZ, K. Neutron Physics. New York, N. Y.: Springer, 1964.
- [45] LAMARSH, J .R. Introduction to Nuclear Reactor Theory. Reading, Mass.: Addison-Wesley, 1965.
- [46] 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 31, 681–695, 2004.
- [47] GIBSON, W. M. The Physics of Nuclear Reactions. Oxford: Pergamon Press.1980.
- [48] BLATT, J. M.; WEISSKOPF, V F. Theoretical Nuclear Physics. New York, N. Y.: Willey, 1952.
- [49] KODELI, I., TRKOV, A. “Validation of the IRDF-2002 dosimetry library”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 577, 664-681, 2007.
- [50] ENDF/ B-VII. Cross Section Library URL <http://www.nndc.bnl.gov>, 2010.
- [51] TRKOV, A., Nuclear Reactions and Physical Models for Neutron Activation Analysis, Workshop on Nuclear Data for Activation Analysis International Centre for Theoretical Physics, Miramare - Trieste, Italy, 7-18 March 2005

- [52] MARTINHO, E., SALGADO, J., GONÇALVES, I.F.. Universal curve of thermal neutron self-shielding factor in foils, wires, spheres and cylinders. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 261 (3), 637, 2004.
- [53] MARTINHO, E., SALGADO, J., GONÇALVES, I.F.. Universal curve of epithermal neutron self-shielding factor in foils, wires and spheres. *Appl. Radiat. Isot* 58, 371, 2003.
- [54] WESTCOTT, C.H., Effective Cross Section Values for Well Moderated Thermal Reactor Spectra. Report AECL-1101, 1960, Reprinted (1962).
- [55] WESTCOTT, C.H.; WALKER, W. H. and ALEXANDER, T. K. Effective Cross Section and Cadmium ratios for the Neutron Spectra of the Thermal Reactor. Chalk River, Ont: Atomic Energy of Canada.(AECL-612), 1958.
- [56] CURTISS, L. F. Introduction to Neutron Physics. Princeton, NJD. Van Nostrand, 1958.
- [57] HÖGDAHL, O. T., Neutron absorption in pile neutron activation analysis. Michigan Memorial Phoenix Project, University of Michigan, Ann Arbor, Report MMPP-226, 1962.
- [58] M. BLAAUW, P. BODE, M. DE BRUIN., An Alternative Convention Describing the (n, γ) -Reaction Rate Suited for Use In The k_0 -Method of NAA, *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, 152, 435-445, 1991.
- [59] KNOLL, G.F. **Radiation Detection and Measurement**. 2nd and 4th Editions, John Wiley & Sons, (1989, 2010).
- [60] EVANS, R., **The Atomic Nucleus**. New York, McGraw-Hill, 1955.
- [61] DIAS, M.S., Programa Alpino for Versão 1.0. **Manual do Usuário**, 29/01/2001.
- [62] MANNHART, W., Physikalisch Technische Bundesanstalt (PTB). Comunicação pessoal, 1990.
- [63] TAKEDA, M.N., Determinação da Correção para Efeito Soma em Cascata para Espectrômetro de HPGe pelo Método de Monte Carlo. Dissertação de Mestrado, IPEN/Universidade de São Paulo, 2001.
- [64] ORNL. Monte Carlo N-Particle Transport Code System, MCNP5, RSICC Computer Code Collection, Oak Ridge National Laboratory, 2006.

- [65] NIST - Table of attenuation coefficients,
<http://www.nist.gov/pml/data/xcom/index.cfm>. *Acessado em 21/10/2010*.
- [66] DIAS,S.; TAKEDA, M.N.; KOSKINAS, M.F., Cascade summing corrections for HPGe spectrometers by the Monte Carlo method. **Appl. Radioat. Iso.**, Vol.56, pgs 105-109, 2002.
- [67] WILLIAM, H. P.; TEUKOLSKY,S.A.; VETTERLING, W.T.; FLANNERY, B.P. Numerical Recipes in Fortran 77, Second Edition, p. 279, 2001.
- [68] HELENE, O., Método dos Mínimos Quadrados com Formalismo Matricial, Ed. Livraria da Física, 2006.
- [69] BÉ,M.M., CHISTÉ,V., DULIEU,D., BROWNE,E, CHECHEV,V., KUZMENKO,N., HELMER,R., NICHOLSS, A., SCHONFIELD,E., DERSCH,R., Monographic BIPM-5-Table of Radionuclides. Volumes 1 e 2, 2004.
- [70] MUGHABGHAB, S.F., Atlas of Neutron Resonances. Elsevier, Amsterdam, 2006.
- [71] SMITH, DONALD L. Probability, Statistics and Data Uncertainties in Nuclear Science and Technology. Illinois-ANS, 1991.
- [72] DIAS, M. S.; CARDOSO, V.; KOSKINAS, M. F. ; YAMAZAKI, I. M. . Determination of the neutron spectrum shape parameter alpha in k_0 NAA methodology using covariance analysis. Applied Radiation and Isotopes, v. 68, p. 592-595, 2010.
- [73] DIAS, M. S.; CARDOSO, V.; KOSKINAS, M.F.; YAMAZAKI, I.M.; SEMMLER, R.; MORALLES, M.; ZAHN, G.S.; GENEZINI, F.A. ; de MENEZES, M.O.; FIGUEIREDO, A.M.G.. Measurements of k_0 and Q_0 values for $^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$ and $^{68}\text{Zn}(n,\gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$ reactions with covariance analysis. Applied Radiation and Isotopes, v. 69, p. 960–964, 2011.