


ANÁLISE DE POLUENTES TÓXICOS NO AR PELO
MÉTODO DE ATIVAÇÃO NEUTRÔNICA

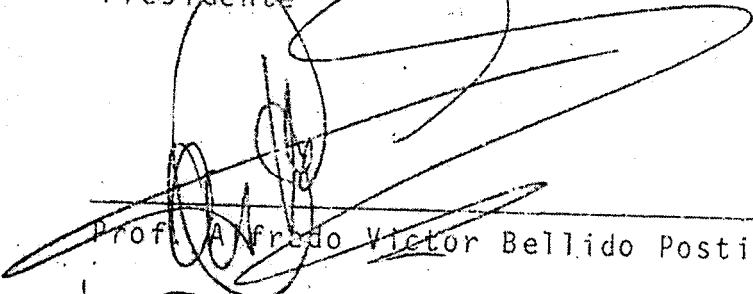
Rubên Bruna Mercado

TESE SUBMETIDA AO CORPO DOCENTE DA COORDENAÇÃO DOS PROGRAMAS DE PÓS-GRADUAÇÃO DE ENGENHARIA DA UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO COMO PARTE DOS REQUISITOS NECESSÁRIOS PARA OBTENÇÃO DO GRAU DE MESTRE EM CIÊNCIAS (M.Sc.)

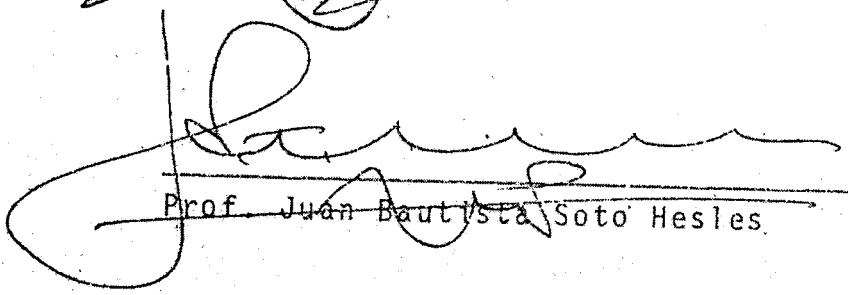
Aprovada por:



Prof. John Douglas Rogers
Presidente



Prof. Alfredo Victor Bellido Postigo



Prof. Juan Bautista Soto Hesles

RIO DE JANEIRO, RJ - BRASIL
Novembro 1981

RESUMO

Amostras de poluentes particulados foram irradiadas com nêutrons térmico e analisados por espectrometria de raios gama.

Descreve-se os dois métodos experimentais usados para determinação desses poluentes, sendo que ambos os métodos de análise, foram não destrutivos.

No primeiro método se irradiaram amostras no Reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear, e foram realizadas medidas absolutas das atividades induzidas. Os resultados indicaram a presença de bromo, sódio e cloro em concentrações acima dos limites de determinação quantitativa. Na descrição do método se faz um exame geral das interferências, e da sensibilidade do método assim como também da precisão dos resultados obtidos.

O segundo método foi o método comparativo de análise, tendo sido as amostras irradiadas do Reator Pulstar da North Carolina State University, num fluxo médio de 5×10^{12} n/cm² seg. Foram identificados em torno de quinze elementos calculadas as suas concentrações e analisados os erros de medida.

ABSTRACT

Samples of air pollution particulates were irradiated with thermal neutrons and analyzed by Gamma-Ray spectrometry.

Two experimental methods were used to determine the elemental concentration of the pollutants, being both non-destructive methods.

In the first method, samples were irradiated in the Argonaut Reactor at the Institute of Nuclear Engenering, and absolute measurements of the induced activities ^{was} were made. The results indicated the presence of Bromine, Sodium and Chlorine, in concentration higher than the limits of the quantitative determination.

A general examination and an evaluation of the sensitivity and precision of the methods were made.

In the second method, a comparative analytical method was used, and the samples were irradiated in the North Carolina State University Pulstar Reactor at a near thermal neutron flux of 5×10^{12} n/cm² seg. About fifteen elements present were identified, their concentration calculated and the errors analyzed.

ÍNDICE

	<u>Pág.</u>
<u>CAPÍTULO I - INTRODUÇÃO</u>	1
<u>CAPÍTULO II - REVISÃO DA LITERATURA</u>	4
II.1 - Sistema de "Ar Poluído"	4
II.2 - Contaminação por Matéria Particulada	5
II.3 - Métodos de Análise por Ativação	8
<u>CAPÍTULO III - O MÉTODO ABSOLUTO</u>	10
III.1 - Considerações Teóricas	10
III.1.1 - Equação de Ativação	10
III.1.2 - Avaliação de Fotopicos	13
III.1.3 - Tratamento de Dados	14
III.2 - Método da Razão de Cádmiu para Correção do flu xo	16
III.3 - Limites de Sensibilidade	24
III.4 - Estudo das Interferências	26
III.5 - Descrição do Método Absoluto	29
<u>CAPÍTULO IV - PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL DO MÉTODO ABSOLUTO</u>	
IV.1 - Técnica de Amostragem	31
IV.1.1- Coleta de Amostras	31
IV.1.2- Dispositivo para Coleta de Amostras	32
IV.2 - Irradiação das Amostras	34
IV.3 - Equipamento de Detecção e Contagem	34
IV.4 - Monitorização do Fluxo de Neutrons	34

IV.5 - Processamento de Dados de Contagem	37
---	----

CAPÍTULO V - RESULTADOS EXPERIMENTAIS DO MÉTODO ABSOLUTO

V .1 - Calibração do Detetor Germânio-Lítio	46
V .1.1 - Determinação da Curva de Eficiência do Detetor Germânio-Lítio	46
V .1.2 - Determinação da Energia dos Picos	50
V .2 - Sensibilidade do Método	52
V .3 - Interferências	54
V .3.1 - Interferências na Determinação do Manganês ..	54
V .3.2 - Interferências na Determinação do Cloro	55
V .3.3 - Interferências na Determinação do Sódio.	56
V .4 - A Determinação do Fluxo Térmico	57
V .5 - Cálculo das Concentrações	60
V .6 - Erros	68
V .6.1 - Erros na Determinação do Fluxo	68
V .6.2 - Erros na Determinação das Massas Elementares do Br, Na e Cl	69

CAPÍTULO VI - MÉTODO DE COMPARAÇÃO

VI.1 - Descrição do Método	72
VI.2 - Equipamento da Irradiação e Contagem	74
VI.3 - Identificação dos Fotopicos	74
VI.4 - Erros	77
VI.5 - Técnica de Amostragem	78
VI.5.1 - Coleta de Amostras	78
VI.5.2 - Área de Amostragem	80

	Pág.
VI.6 - Análise Qualitativa	84
VI.7 - Resultados	84
<u>CAPÍTULO VII - COMENTÁRIOS</u>	98
<u>CAPÍTULO VIII - CONCLUSÕES</u>	101

CAPÍTULO IINTRODUÇÃO

Os primeiros trabalhos de análise por ativação foram realizadas por Hevesy e H. Levi em 1936 e o desenvolvimento deste método foi bastante acelerado, sendo que assim, que já em 1948 o Laboratório Nacional de Oak Ridge dirigido por G.W. Leitch, tinha dedicado muita atenção e era responsável de grande parte do que hoje se conhece em análise por ativação com nêutrons. Daí em diante, foram publicados numerosos trabalhos ao respeito, mais foi a mediados do século que se iniciaram as análises por ativação para identificação e determinação de poluentes atmosféricos.

Winchester⁽¹⁾ em 1967, utilizou separações químicas para determinar a concentração de elementos tais como, sódio, vanádio e cobre em amostras de ar. Os dados apresentados, por este autor, demonstraram que é possível distinguir os aerossóis naturais dos produzidos por contaminação industrial. Provou que as altas concentrações de cloro, em determinados locais, são devidos a fontes de contaminação industrial que vão a incrementar os níveis de cloro dos aerossóis naturais.

Mas, os métodos destrutivos de análise, são na maioria dos casos dificultados pela diluição incompleta da amostra; inclusive, com o uso de ácidos fortes e agentes oxidantes não é possível, as vezes, completar a diluição das amostras, ou em outras vezes, a diluição consome muito tempo. Na atualidade os elevados fluxos neutronicos que é possível alcançar nos reatores nucleares, assim como o desenvolvimento das técnicas

de espectrometria gama e os detetores de estado sólido, fazem possível empregar métodos analíticos não destrutivos para a realização das análises por ativação neutrônica.

Por outro lado, resulta evidente a importância do estudo dos contaminantes atmosféricos, na forma gassosa ou de particular sólidas, assim como a identificação dos constituintes inorgânicos das partículas presentes no ar, devido ao perigo que representam para a saúde humana e a ameaça de contaminação dos nossos recursos naturais tais como o ar e a água, que são substâncias vitais para nossa supervivência.

Bromo, Vanádio e Manganês, são elementos tóxicos, emitidos para a atmosfera, principalmente pela queima incompleta de combustíveis como carvão e os derivados do petróleo, em fornos, em veículos automotores, etc.

Ferro, cromo, antimônio, mercúrio e potássio, são elementos tóxicos emitidos para a atmosfera e produzidos principalmente como resíduos industriais.

Neste trabalho, propõe-se identificar e determinar quantitativamente alguns desses contaminantes atmosféricos, mediante duas variedades do método de análise por ativação. A primeira denominada de método absoluto, visa alcançar como objetivo a análise de três elementos presentes na atmosfera num tempo relativamente curto, devido ao fato de seus radionuclídeos induzidos serem de meia-vida curta, mediante a segunda variedade chamada de comparação, é possível analisar simultaneamente quinze elementos constituintes da atmosfera, porém em tempos mais

longos.

A finalidade de analisar e determinar as concentrações de partículas sólidas no ar, pode suministrar dados básicos necessários para poder detetar as principais fontes de contaminação nos locais estudados.

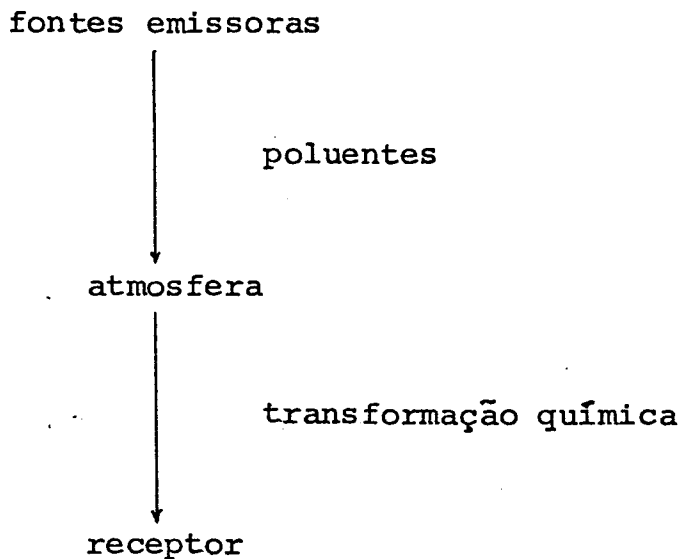
CAPÍTULO IIREVISÃO DA LITERATURAII.1 - SISTEMA "AR POLUIDO"

A crescente demanda de bens de consumo tem provocado uma industrialização massiva que acompanhada de um aumento nos transportes, está causando uma degradação progressiva do ar, rios, lagoas e oceanos (2).

Os fatores que contribuem na formação do ar poluído são os de origens naturais os ocasionados pelo homem. Os de origem natural incluem condições meteorológicas e topografias que restringem a normal diluição dos contaminantes.

O enfoque geral do problema da poluição, fica bastante complexo sem a participação dos vários ramos da ciência, da química analítica até a medicina, sociológica, urbanismo, engenharia, etc., e a busca de uma solução prática torna-se ainda um problema político, econômico e legislativo (3). No entanto, a análise por ativação ajuda a encontrar e determinar esses contaminantes para uma posterior solução do problema.

O sistema "ar poluído" pode ser focado como um sistema, constituído por três etapas básicas:



O estudo dos contaminantes, aplicando as técnicas de análise por irradiação com partículas elementares, leva em conta três aspectos:

- Identificação qualitativa e quantitativa de particulados;
- Estudo do comportamento e distribuição dos contaminantes;
- Efeitos fisiológicos que esses contaminantes produzem nos seres vivos e nos materiais;

O presente trabalho de pesquisa tem como objetivo apenas o primeiro aspecto.

II.2 - CONTAMINAÇÃO POR MATERIA PARTICULADA

A poluição atmosférica por matéria sólida, é formada por partículas de grande tamanho que se sedimentam com rapidez, e por particular de pequeno tamanho que ficam em suspensão por um período de tempo determinado.

Essas partículas em suspensão tem diâmetros que

vão desde menos de um microns até aproximadamente cem microns.

Geralmente, essa matéria particulada em suspensão é emitida diretamente da fonte de contaminação, ou é formada na atmosfera por interação química, e percorre distâncias que variam segundo o tamanho e as condições atmosféricas.

Diversos estudos já comprovaram que esses componentes sólidos no ar, na sua forma elementar ou de compostos, podem ser danosos direta ou indiretamente ao homem⁽⁴⁾.

Essa é a razão, pela qual a toxicologia ambiental estuda os efeitos indesejáveis dos agentes químicos sobre o ambiente.

A contaminação se dá um breve resumo desses elementos contaminantes, suas possíveis fontes e seus possíveis efeitos patológicos sobre os organismos⁽⁴⁾:

- Arsênico

Fonte: Fundição de metais, pesticidas e herbicidas fabricados com compostos de arsênico.

Efeitos: quando é inalado ou absorvido produz irritação nasal ou dermatite, também pode causar bronquite. Há dúvidas se este elemento pode produzir câncer.

- Bário

Fonte: Aditivo nos combustíveis do petróleo, indústria mineral e refinarias.

Efeitos: Tem efeitos nos músculos do coração, via gastro-intestinal, no sistema nervoso central e nas vias respiratórias.

- Bromo

Fonte: Aditivo para combustíveis derivados do petróleo

Efeitos: Irritação e inflamação das vias respiratórias é tóxico por ingestão.

- Cloro

Fonte: Processos industriais que usam cloro, escapamento acidental durante o armazenamento.

Efeitos: Irritação dos olhos, nariz e garganta. Em doses grandes, produz edema pulmonar e bronquite.

- Cromo

Fonte: Industrias químicas e metalúrgicas. Produtos que empregam o cromo.

Efeitos: Irritante e tóxico e os tecidos da pele, exerce ação cancerígena, desenvolve dermatite e úlcera da pele.

- Ferro

Fonte: Usinas de ferro e aço, incineração do carvão, cinzas da combustão do carvão e do óleo combustível.

Efeitos: O óxido de ferro atúa como veículo de transporte de cancerígenos.

- Manganês

Fonte: Fornos para produção de materiais ferro-manganês, aditivo orgânico para os combustíveis de derivados de petróleo.

Efeitos: Envenenamento do sistema nervoso por manganês; pneumonia, absorção desse elemento através da pele.

- Selênio

Fonte: Combustão de detritos industriais e de combustíveis de derivados de petróleo, restos de gases e fumos de refinarias de petróleo, incineração de produtos de papel.

Efeitos: Irritação dos olhos, nariz, garganta, vias respiratórias e gastrointestinais. Intoxicação crônica e possíveis efeitos a longo tempo nos rins, fígado e pulmão.

II.3 - MÉTODOS DE ANÁLISE POR ATIVAÇÃO

Essencialmente a análise por ativação consta de duas etapas:

- a) Irradiação da amostra por partículas elementares;
- b) Medida da atividade produzida.

A opção para a irradiação por partículas elementares tem a ver com a facilidade de obtenção dessas partículas, com o custo e com o tempo gasto para cada irradiação. A escolha geralmente, é a seguinte: reações com nêutrons, reações com partículas carregadas e reações com fótons.

As fontes de maior produção de nêutrons são os reatores nucleares devido aos elevados fluxos neutrônicos que possuem, à facilidade para a irradiação de amostras e ao amplo espectro de energia dos nêutrons.

A medida da atividade de um nuclídeo radioativo está associada aos princípios básicos de detecção e medida da radiação emitida pelo nuclídeo. No caso de radiação gama, os detetores mais usados são os de cintilação e os de estado sólido, particularmente os detetores Ge(Li).

Em geral os equipamentos de detecção de radiação produzem pulsos por cada partícula ou fóton detetado. Esses pulsos após amplificação são analisados e contados em aparelhos eletrônicos chamados analisadores multicanal. A técnica de espectrometria gama usando estes dispositivos permite determinar a energia e a intensidade das radiações gama.

CAPÍTULO IIIO METODO ABSOLUTOIII.1. - CONSIDERAÇÕES TEÓRICASIII.1.1. - EQUAÇÃO DE ATIVAÇÃO

A expressão que relaciona o número de átomos da amostra com a seção de choque de ativação e o fluxo de neutrons incidentes, é chamada taxa de reação. Essa expressão fornece o número de átomos radioativos formados por unidade de tempo:

$$R_A = N \int_0^{\infty} \sigma(E) \phi(E) dE \quad (\text{III.1-a})$$

ou

$$R_A = N \sigma_{th} \phi_{th} \quad (\text{III.1.b})$$

onde:

R_A = Taxa de reação por segundo;

σ = Seção de choque de ativação;

N = Número total de átomos da amostra;

ϕ_{th} = Fluxo de nêutrons térmicos.

A variação do número de átomos radiotivos formados durante a irradiação, é a diferença entre a taxa de reação R_A e a taxa de decaimento:

$$\frac{dN}{dt} = R_A - \lambda N$$

mais

$$\begin{aligned} A = \lambda N &= R_A (1 - e^{-\lambda t_1}) \\ &= R_A S(\lambda, t_1) \end{aligned} \quad (\text{III.2})$$

ou $A = A_{\infty} S(\lambda, t_1)$

onde A_{∞} é a atividade saturada, isto é, a atividade de atingida num tempo infinito de irradiação;

$S(\lambda, t_1)$ é chamado fator de saturação.

Se a atividade é determinada após um tempo t_2 , a expressão fica:

$$A = R_A S(\lambda, t_1) T(\lambda, t_2) \quad (\text{III.3})$$

onde:

$$T(\lambda, t_2) = e^{-\lambda t_2}$$

da equação (III.1) e fazendo $b = S(\lambda, t_1) T(\lambda, t_2)$

Temos:

$$A = N \phi_{th} \sigma b \quad (\text{III.4})$$

onde

$$N = \frac{N_0 W \theta}{M}$$

N_0 = número de Avogadro. [átomo/átomo-grama] ;

W = massa do elemento irradiado [gr] ;

θ = abundância isotópica;

M = peso atômico do elemento [gr/átomo-grama] ;

σ = seção de choque de ativação [barn] ;

$b = S(\lambda, t_1) T(\lambda, t_2)$;

$S(\lambda, t_1) = 1 - e^{-\lambda t_1}$;

$T(\lambda, t_2) = e^{-\lambda t_2}$;

λ = constante de decaimento [seg⁻¹] ;

t_1 = tempo de irradiação [seg] ;

t_2 = tempo de esfriamento (tempo decorrido entre o instante da medida e o da irradiação) [seg] ;

ϕ_{th} = fluxo de neutrons térmicos que contribui a reação nuclear [n/cm² seg⁻¹] .

Em resumo, tem-se:

$$A = \frac{N_0 W \theta \phi_{th} \sigma S(\lambda, t_1) T(\lambda, t_2)}{M}$$

(III-5)

que é a fórmula geral para análise por ativação com neutrons térmicos. De onde pode-se encontrar a massa "W" do elemento irradiado.

III.1.2 - EVALUAÇÃO DE FOTOPICOS

O método da área total considera a área do fotopico como a soma das atividades entre a borda inicial e final do fotopico menos as atividades correspondentes à linha de base (Fig. III.1)

$$A_P = \sum_{I=I_1}^{I=I_2} YB(I) - (YB(I_2) + YB(I_1)) (I_2 - I_1) / 2$$

(III.6)

e m que

- YB(I) = soma acumulada da contagem no canal "I";
 I1 = extremo inferior do fotopico;
 I2 = extremo superior do fotopico.

Na prática, o problema que apresenta a aplicação do método da área total, é a determinação dos limites do canal inicial e final do fotopico. Um método baseado na natureza estatística da medida da radioatividade, e o critério de Pauly e Giraradi⁽⁵⁾ para a determinação dos limites do fotopico.

Para a aplicação deste método, seleciona-se os canais I1 e I2 nos extremos do canal "I0" (Fig. III.1); portanto, encontra-se o canal inicial do fotopico quando a diferença dos canais consecutivos é maior que o erro estatístico da medida (dado pela raiz quadrada do número de contas medido), e de igual forma para encontrar o canal final do fotopico; temos assim:

$$|YB(I1 - 1) - YB(I2)| \leq YB(I1) \quad (\text{III.7.a})$$

para o canal inicial do fotopico;

$$|YB(I2+1) - YB(I2)| \leq YB(I2) \quad (\text{III.7.b})$$

para o canal final do fotopico.

III.1.3. - TRATAMENTO DE DADOS

Na medida dos fotopicos-gama em análise por ativação, é frequente encontrar picos muito fracos, isso é natural se o elemento está presente em baixa concentração; ou a situação inversa, os parâmetros (equação III-5) fluxo, tempo de irradiação, seção de choque, entre outros, não favoreçam a ativação. Para tais situações, existem métodos conhecidos como ajuste de uma curva a uma função... para tratar desses problemas.

O método utilizado é o ajuste por mínimo quadrados de pequenos setores do espectro a uma função de convolução, que descreve o seu comportamento no setor ajustado. Se encontra conveniente o ajuste dos conteúdos de cinco canais consecutivos a um polinômio de terceiro grau, este processo é aplicado da seguinte maneira:

- se toma um conjunto de dados que se ajusta pelos mínimos quadrados a uma equação de terceira ordem, logo o processo se repete para o seguinte conjunto de dados, de maneira que se consegue eliminar pequenas variações não entanto se retêm grandes variações no espectro todo de dados Fig.III.2.

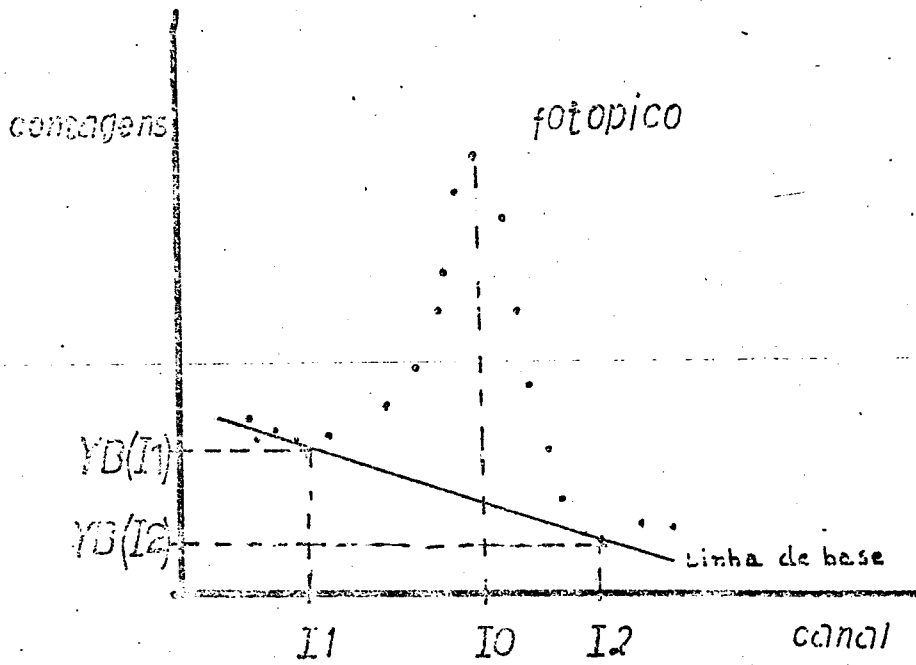


FIGURA III-1 Método da Área Total para Pico Característico de raios Gama. Medidos com um Detetor Ge-Li

$$YB_j = \frac{C_{-2} Y_{i-2} + C_{-1} Y_{i-1} + C_0 Y_j + C_1 Y_{j+1} + C_2 Y_{j+2}}{N_F}$$

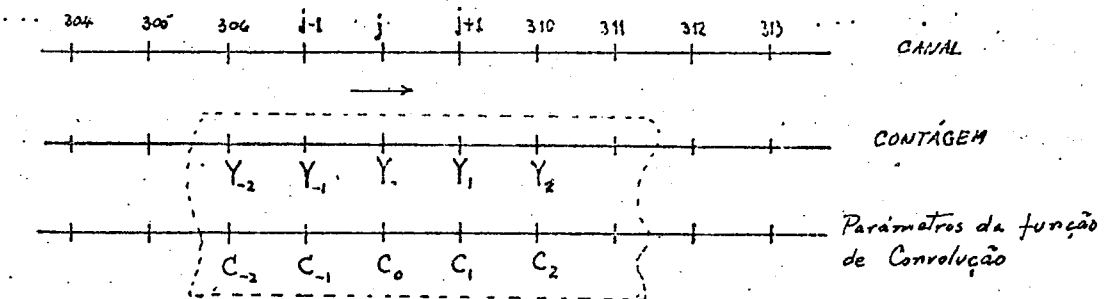


Figura III-2 Simples Representação do Processo de Convulsão para cinco pontos de uma porção do Espectro

- a função de convolução é dada pela expressão (fórmulas deduzidas por Savitzki⁽⁶⁾),

$$YB(J) = \frac{\sum_{I=-m}^{I=m} C_i Y(I+J)}{N_F} \quad (\text{III.8})$$

onde:

$Y(I+J)$ = conteúdo do canal I dos dados a suavizar;

J = índice de repetição;

$YB(I)$ = valor suavizado do ponto central do conjunto;

C_i = parâmetros constantes da função de convolução e dependem da ordem do polinômio;

N_F = fator de normalização.

III.2. - MÉTODO DA RAZÃO DE CADMIO PARA CORREÇÃO DO FLUXO

Devido as variações do fluxo neutrônico durante a irradiação ou de uma irradiação para outra, faz-se necessário o emprego de monitores de fluxo para correção do mesmo.

Os monitores de fluxo térmico e de ressonância são substâncias que se ativam mediante as reações nucleares (n, γ). E quando um monitor deste tipo se submete a um fluxo composto de neutrons térmicos e epitérmicos, ele é ativado por ambos os tipos de neutrons conduzindo ao mesmo produto radioativo.

Em síntese, o método consiste em irradiar dois detetores idênticos, um com involucro de cádmio e o outro sem.

A razão de cádmio é definida com a atividade "A" de uma folha sem cobertura de cádmio, à atividade "A_{cd}" de uma folha com cobertura de cádmio:

$$R_{cd} = \frac{A}{A_{cd}} \quad (\text{III.9})$$

Quando se irradia o monitor nu, a atividade induzida nele é a soma das atividades produzidas pelo fluxo térmico e o fluxo de ressonância, usando a relação (13) do apêndice I, temos:

$$A = N \phi_{th} \sigma_0 g b + N \phi_{epi} I_0 b \quad (\text{III.10})$$

pode ser colocado na forma:

$$A = N \phi_{th} \hat{\sigma}_m S(\lambda, \alpha_1) T(\lambda, \beta_1) + N \phi_{epi} I_0 S(\lambda, \alpha_1) T(\lambda, \beta_1) \quad (\text{III.11})$$

onde:

A = atividade absoluta da folha sem blindar com cádmio;

$$\hat{\sigma}_m = \sigma_0 g$$

N = número de átomos estáveis do monitor irradiado;

$$S(\lambda, \alpha_1) = 1 - e^{-\lambda \alpha_1}; \quad \text{fator de saturação;}$$

$$T(\lambda, \beta_1) = e^{-\lambda \beta_1};$$

I₀ = integral de ressonância;

α_1 = tempo de irradiação da folha sem cobertura de cádmio;

β_1 = tempo de esfriamento da folha com cobertura de cádmio.

Quando se irradia o monitor com cobertura de cádmio sob um fluxo de neutrons térmicos e de ressonância, a atividade induzida será devido somente aos neutrons epitermicos, logo:

$$A_{Cd} = N \phi_{epi} I_0 S(\lambda, \alpha_2) T(\lambda, \beta_2) \quad (III.12)$$

onde:

α_2 = tempo de irradiação da folha com cobertura;

β_2 = tempo de esfriamento da folha com cobertura de cádmio.

restando (III.14) de (III.15):

$$(A - A_{Cd}) = N \phi_{th} \hat{\sigma}_m S(\lambda, \alpha) T(\lambda, \beta_1) + \\ + N \phi_{epi} I_0 S(\lambda, \beta_1) [T(\lambda, \beta_1) - T(\lambda, \beta_2)]$$

de (III.15) temos:

$$\phi_{epi} = \frac{A_{Cd}}{N I_0 S(\lambda, \alpha) T(\lambda, \beta_2)}$$

desta duas relações temos finalmente:

$$\phi_{th} = \frac{A}{N \hat{\sigma}_m S(\lambda, \alpha) T(\lambda, \beta_1)} \left(1 - \frac{G_P}{R_{Cd}}\right)$$

(III.13)

onde:

$$G_t = T(\lambda, \beta_1)/T(\lambda, \beta_2) \quad (\text{III.14})$$

O cálculo do fluxo ϕ considerando todos os fatores de correção é dado por Bothe⁽⁷⁾. Tomando as relações dadas no apêndice I (eq. 16) se obtém a expressão final para o fluxo térmico:

$$\phi_{th} = \frac{A}{F N \sigma_0 (g+rs) S(\lambda, \alpha) T(\lambda, \beta_1)} \left(1 - \frac{G_t}{R_{Cd}}\right) \left(\frac{4T}{\pi T_0}\right)^{1/2} \quad (\text{III.15})$$

onde:

- T = temperatura dos nêutrons numa distribuição maxwelliana;
- G_t = fator de correção devido ao tempo de espera;
- A = atividade da folha irradiada sem cobertura de cádmio;
- F = fator de correção para perturbação do fluxo térmico causada pela presença da folha;
- r = fração de nêutrons epitérmicos;
- g = fator de Westcott, de não acompanhamento à lei "1/v" na região térmica;
- s = fator de correção de não acompanhamento à lei "1/v" na região epitérmica;

$$S(\lambda, \alpha) = 1 - e^{-\lambda\alpha};$$

$$T(\lambda, \beta_1) = e^{-\lambda\beta_1};$$

- $\alpha = \alpha_1 = \alpha_2$ = tempo de irradiação;
 β_1 = tempo de esfriamento da folha sem cobertura;
 β_2 = tempo de esfriamento da folha com cobertura.

a - Para o cálculo de "r" usa-se a expressão (8):

$$R_{Cd} = \frac{g F T_m + r F_p g s T_m}{r (F_p (s - s_i) T_m + g K')} \quad (\text{III.16})$$

onde:

K' = coeficiente tabelado por Westcott (9) para várias espessuras do cádmio;

$T_m = \sqrt{T/T_0}$ temperatura dos neutrons ($T_0 = 293.6K$);

S_1 = é calculada usando a relação (11) do Apêndice I e a expressão semi-empírica dada por Gould (10);

$$\sigma(E) = 15.53(E)^{-1/2} - 0.937 + 5.94(E)^{1/2};$$

$s(T)$ = o fator de correção é dado no Apêndice I fórmula (8);

$g(T)$ = fator de Westcott que depende da temperatura dos neutrons (Fig. III.3);

F_p = obtido pelas curvas dadas por Baumann (11,12) (onde p é a espessura da folha em unidade de caminho livre médio);

F = fator de correção para perturbação de fluxo, dado a continuação.

b - Cálculo do F

Dois são os efeitos que ocasionam a perturbação

do fluxo devido à presença da folha:

(i) Depressão do fluxo "H": Ocorre uma depressão do fluxo causada pela presença da folha no meio. Embora a presença da folha também cause a redução do fluxo na sua vizinhança, uma vez que uma fração considerável de nêutrons é absorvida pela folha.

As fórmulas para depressão do fluxo $H^{(13)}$ são:

$$H = \frac{1}{1 + \frac{\alpha}{2} \left(\frac{3}{2} \frac{R}{\lambda_{tr}} \cdot \frac{L}{R+L} - 1 \right)} \quad (\text{para disco})$$

$$\text{se } R \gg \lambda_{tr} \quad (\text{III.17.a})$$

ou

$$H = \frac{1}{1 + 0.34 \alpha \frac{R}{\lambda_{tr}}} \quad (\text{III.17.b})$$

$$\text{se } R \ll \lambda_{tr}$$

onde:

$$\alpha = 1 - e^{-\tau} (1 - \tau) - \tau^2 \int_{\tau}^{\infty} \frac{e^{-u}}{u} du ; \quad (\text{III.17.c})$$

$$L = \frac{\lambda_{tr} \cdot \lambda_a}{3 \left(1 - 2 \frac{\lambda_{tr}}{\lambda_a} \right)^2}$$

onde:

R = raio da folha;

λ_{tr} = caminho livre médio de transporte;

L = comprimento de difusão térmica;

λ_a = caminho livre médio de absorção;

$\tau = \Sigma_a t$ (disco), definidos em (ii).

(ii) Efeito sombra "G", ocasionado pela própria folha, devido a sua espessura finita, ou seja, causado pela absorção dos nêutrons nas camadas mais externas dos átomos, ficando as camadas mais internas expostas a um fluxo mais baixo, uma vez que parte já foi absorvida pelas camadas externas.

As expressões para G, são:

$$G = \frac{1}{2\tau} \left\{ 1 - e^{-\tau} + \tau e^{-\tau} - \tau^2 \int_{\tau}^{\infty} \frac{e^{-u}}{u} du \right\} =$$

$$= 1 - \frac{\tau}{2} \left(0.1228 + \ln \frac{1}{\tau} \right) \text{ (disco)} \quad \text{(III.18.a)}$$

onde:

$$= 2 \frac{\text{volume}}{\text{área superfície}} \Sigma_a = \Sigma_a p \text{ (disco)} \quad \text{(III.18.b)}$$

onde:

Σ_a = seção eficaz macroscópica de absorção [cm^{-1}] ;

p = espessura da folha [cm] ;

para o cálculo de G usa-se a Fig. (III.4)

(iii) Estes dois efeitos, são expressados na fórmula final:

$$F = GH \quad \text{(III.19)}$$

c - Para o cálculo de K'

Utilizamos a expressão dado por Profio⁽¹⁴⁾ que

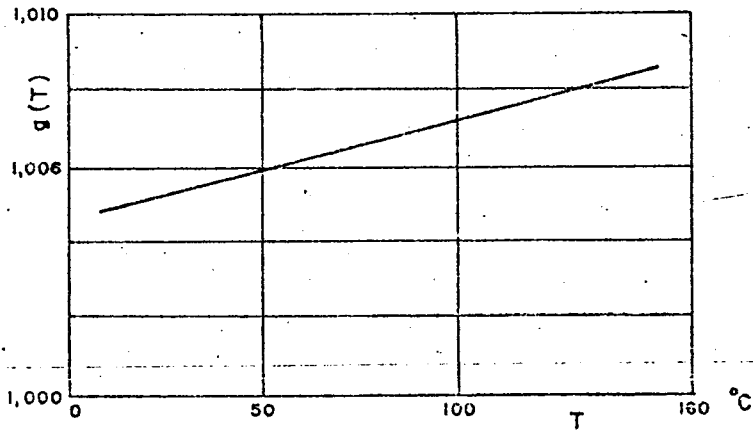


FIGURA III-3 FATOR g DE WESTCOTT DEPENDENTE DE T

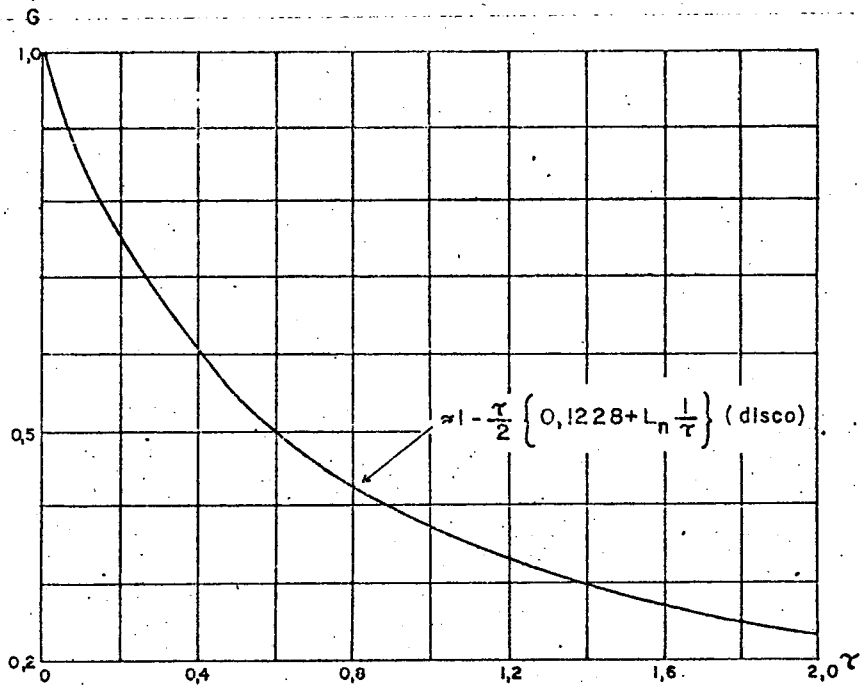


FIGURA III-4 COEFICIENTE DE SELF-SHIELDING (EFEITO SOMBRA) PARA DISCO

relaciona "r", a fração de nêutrons intermediários com a razão de cádmio R_{Cd} para o caso ideal que o filtro (cádmio) obedeça a lei $1/V$. Temos:

$$r \left(\frac{T}{T_0} \right)^{1/2} = \frac{1}{4R_{Cd}} \left\{ \frac{\eta E_{Cd}}{K \cdot T_0} \right\}^{1/2} = \frac{K}{R_{Cd}}$$

ou $R_{Cd} K' = T_m/r$ (III.20)

onde $KT_0 = 0.025$ e V

E_{Cd} = energia de corte efetivo de cádmio (está em torno de 0,5 eV para 0,5 mm de espessura do cádmio);

K' = o valor de K é tabelado por Westcott⁽¹³⁾ relacionando - o com R_{Cd} ;

$$T_m = \left(\frac{T}{T_0} \right)^{1/2}$$

III.3 - LIMITES DE SENSIBILIDADE

A determinação dos limites de sensibilidade de um determinado pico (ou seja a atividade mínima da área do fotopico necessária para poder estabelecer a sua existência com certo grau de probabilidade) tem dado muita confusão dado o número de critérios publicados a respeito.

Usam-se expressões como, limite de detecção igual ao back ground, ou 10% acima do background, 100 desintegrações por segundo, etc. sem prévia definição matemática e ambíguas para se adotar.

As implicações do problema estatístico são muito importantes por que são aplicadas ao problema da sensibilidade analítica. Currie⁽¹⁵⁾ propõe três definições para os limites da sensibilidade:

(i) Limite de decisão (nível crítico) L_C : Se o resultado de uma contagem radioativa da uma diferença de contagens maior que L_C , pode-se concluir, a posterior que a atividade está presente.

(ii) Limite de detecção, L_D : Se uma atividade = L_D , está presente na amostra, pode-se conhecer a priori, que o procedimento analítico em uso é confiável para sua detecção.

(iii) Limite de determinação quantitativa, L_Q :

Se uma atividade L_Q , está presente na amostra, pode-se conhecer a priori, que a determinação será feita com um desvio padrão relativo de 10%, considerando só estatística de contagem.

As principais expressões dão os limites de decisão, detecção e determinação, definidas por Currie:

$$L_C \text{ (contagem)} = K \sqrt{\mu_b} \quad \text{(III.21.a)}$$

$$L_D \text{ (contagem)} = K^2 + 2K \sqrt{\mu_b} \quad \text{(III.21.b)}$$

$$L_Q \text{ (contagem)} = 50 \left\{ 1 + \left(1 + \frac{\mu_b}{12,5} \right)^{1/2} \right\} \quad \text{(III.21.c)}$$

onde:

μ_b = é o valor da contagem de fundo;

K = 1,645 risco de tolerância de 5%;

$K = 2,32$; risco de tolerância de 1%.

A partir das relações de Currie, pode-se calcular a massa limite de detecção " M_d " pela fórmula

$$L_c = \bar{K} M_d \quad (\text{III.22.a})$$

e de igual forma:

$$L_D = \bar{K} m_c \quad (\text{III.22.b})$$

$$L_Q = \bar{K} m_q \quad (\text{III.22.c})$$

onde, \bar{K} é chamado fator de proporcionalidade, e é dado por:

$$\bar{K} = R(\sigma) S(\lambda, t_1) T(\lambda, t_2, \Delta t) E_f$$

sendo:

R = Taxa de reação [núcleos/grama-seg] ;

$S(\lambda, t_1)$ = fator de saturação;

$T(\lambda, t_2, \Delta t) = (e^{-\lambda t_2 / \lambda}) (1 - e^{-\lambda \Delta t})$ [seg.] ;

E_f = eficiência de detecção;

σ = seção de choque de ativação [cm^2] ;

λ = constante de decaimento;

t_1 = tempo de irradiação;

t_2 = tempo de esfriamento;

Δt = tempo de contagem.

III.4 - ESTUDO DAS INTERFERÊNCIAS

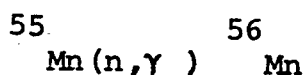
Uma das limitações do método de análise por ativação é a presença de interferências, porque ao submeter uma amostra à irradiação, pode ocorrer que alguns nuclídeos sejam ativa

dos não são nêutrons térmicos, sino também, por nêutrons epitermicos e rápidos, conduzindo ao mesmo nuclídeo de interesse e mascarando assim a reação principal.

a - Interferências de Primeira Ordem

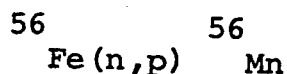
Este tipo de interferências ocorre quando o nuclídeo radioativo, base da análise, tem-se formado diretamente de outra reação nuclear diferente.

Por exemplo, se quiser determinar manganês numa amostra que contém ferro, a reação nuclear que ocorre é:



com uma seção de choque de 13,2 barns.

Paralelamente se tem a reação:



Esta última reação tem uma seção de choque pequena, 0,44 mb; porém, se a massa do ferro for grande, pode mascarar a primeira reação.

A importância deste tipo de interferência pode-se estimar pela relação⁽¹⁶⁾:

$$\text{Interferência ppmM} = 10^6 \frac{M_M \theta_A}{M_A \theta_M} \frac{\bar{\sigma}_F \phi_F}{\sigma \phi_{th}} \quad (\text{III-24})$$

onde:

M_M = peso atômico do elemento a determinar;

M_A = peso atômico do elemento interferente;

θ_M = abundância isotópica do nuclídeo na reação (n, γ) ;

θ_A = abundância isotópica do nuclídeo para a reação (n, p) ou (n, α) ;

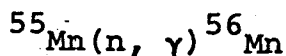
σ = seção de choque efetiva para reação (n, γ) = $\sigma_0 + \frac{\phi_{\text{ress}}}{\phi_{\text{th}}} I_0$;

σ_f = seção de choque média para as reações (n, p) ou (n, α) num espectro de nêutrons de fissão (fluxo ϕ_f).

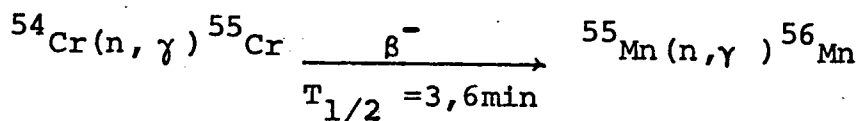
b. - Interferências de Segunda Ordem

Esta interferência ocorre quando se forma o radioisotopo de interesse por ação da partícula bombardeadora sobre o produto de decaimento de uma primeira reação nuclear.

Um exemplo deste tipo de interferência apresenta-se quando se quer determinar manganês em cromo. O manganês pode ser determinado pela atividade do ^{56}Mn que se obtém pela reação:



Mas, se a matriz tem cromo, ocorre também a reação:



como consequência, há um aumento na proporção de ^{55}Mn durante a irradiação.

III.5 - Descrição do Método Absoluto

Uma das vantagens do método absoluto é que precisa de menos trabalho de laboratório do que o método por comparação, no entanto, está sujeito a erros sistemáticos importantes. Como já foi visto anteriormente, que na equação geral de activação por nêutrons, pode-se calcular o peso "W" em gramas (Equação III.5) do elemento irradiado, prévio conhecimento da atividade do isótopo formado e dos parâmetros que nela intervêm. Porém, encontra-se que destes parâmetros só se pode ter confiança nos seguintes:

$T_{1/2}$ = período de semi-desintegração do elemento produto da reação;

M = peso atômico do elemento a irradiar;

θ = abundância isotópica natural do isótopo origem da reação;

t_1 = tempo de irradiação;

t_2 = tempo de esfriamento.

Porém, o fluxo de nêutrons é um parâmetro que precisa ser medido experimentalmente por estar submetido a variações dentro de certa margem, dependendo da potencia de operação do reator, grau de queima do combustível, etc., e, conseqüentemente, se encontrarão também variações de uma irradiação para outra.

Além disso, quando se procura uma seção de choque nas tabelas, encontra-se que os seus valores não concordam, originando-se desta maneira um sério problema na hora de decidir o valor mais adequado.

CAPÍTULO IVPROCEDIMENTO EXPERIMENTAL DO MÉTODO ABSOLUTOIV.1 - TÉCNICA DE AMOSTRAGEMIV.1.1 - Coleta de Amostras

As amostras foram proporcionadas pela "Fundação Estadual de Engenharia do Meio Ambiente", assim mesmo os critérios seguidos para colocação das estações de amostragem.

Alguns dados sobre as amostras são dados a seguir:

- A coleta de partículas atmosféricas foi feita sobre filtros, de fibra de vidro da marca "Gelman A/E";
- A área efetiva dos filtros é de 9x7 polegadas;
- A duração da amostragem foi de 24 horas;
- O volume de ar que passa através do filtro varia em torno de 1700 até 3300 m³;
- A quantidade de massa, que pode acumular o filtro é de aproximadamente 150 mg;
- segundo dados do fabricante, os filtros tem a seguinte composição:

Mais precisa-se também levar em conta:

- a configuração geométrica do conjunto amostra-detetor;
- a eficiência do detetor na energia dos gama do radio-nuclídeo em medição;
- as interferências causadas pelos elementos do alvo; e
- outros efeitos, tais como, autoabsorção, espalhamento nos materiais, etc.

Neste sentido o objetivo será minimizar e eliminar esses inconvenientes.

O primeiro passo será corrigir as variações do fluxo colocando monitores de fluxo no local onde se pretende fazer as irradiações

O passo seguinte, é calibrar o detetor com fontes padrão de atividade absoluta conhecida, e obter experimentalmente uma curva de eficiência do detetor em função da energia.

Este conjunto de medidas, para evitar imprecisões nos resultados, aumentará a possibilidade de empregar - se com mais frequência este método, dado o conhecimento de novos e melhores dados nucleares necessários para as análises.

Um esquema geral do método absoluto é mostrado na Fig. III.5.

ELEMENTOS	g/cm ²
Fe	0,71
Ni	0,01
Mn	0,017
Cr	0,02
Sb	0,17
Pb	0,11
Zn	51,20
Cd	< 0,001
Cu	0,012
Ca	0,09
Mg	3,54
Na	34,87
K	3,60

Os locais de coleta de amostras foram os seguintes:

- Ilha do Governador (Estrada do Galeão);
- São Cristovão (Rua Fonseca Teles);
- Centro (Palácio da Justiça)
- Meier (Hospital Salgado Filho);
- Bonsucesso (Praça da BAndeira).

IV.1.2 - Dispositivo para Coleta de Amostras

O método de coleta de materia particulada em suspensão foi feita por sucção de ar mediante um amostrador de grande volume de ar, o "Hi-Vol" (vazão aproximada 1,2 - 1,7 m³ /min).

O aparelho consiste de uma turbina de ar accio

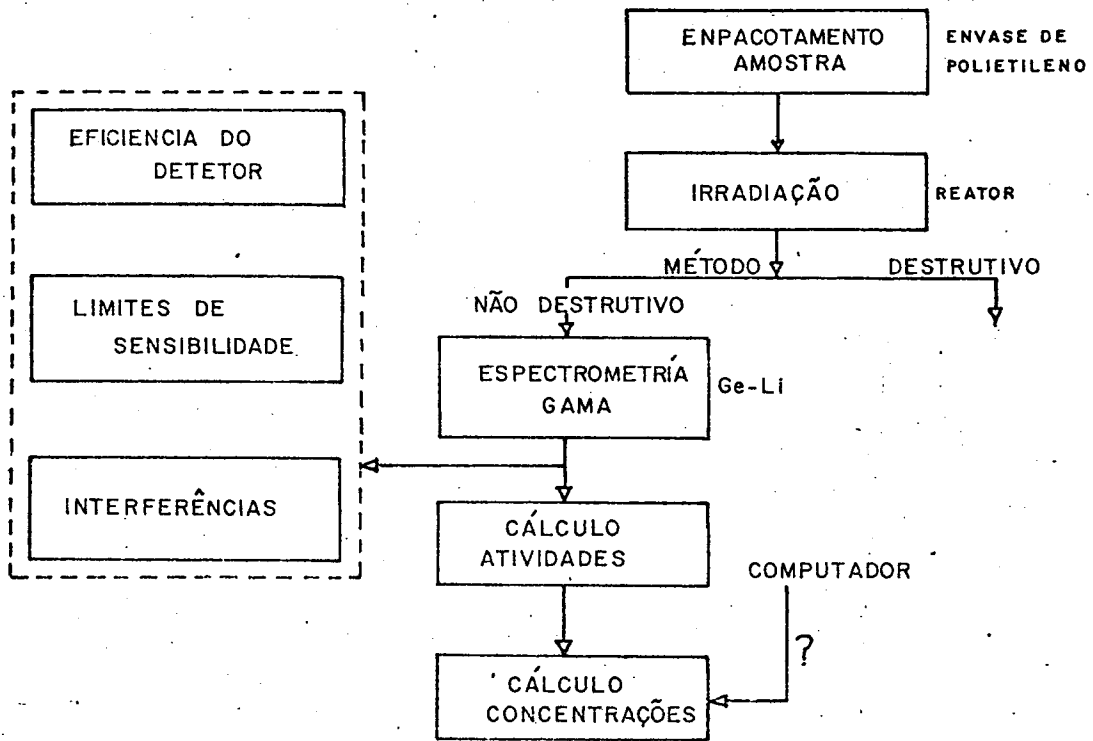


FIGURA III-5 ESQUEMA DO MÉTODO ABSOLUTO

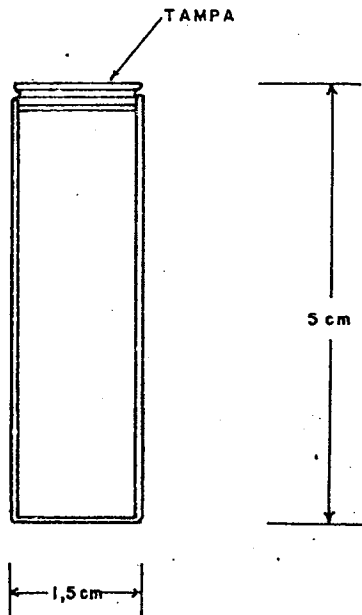


FIGURA IV-1 ENVASE DE POLIETILENO PARA IRRADIAÇÃO DAS AMOSTRAS

nada por um motor de rotação, acoplado diretamente ao suporte do filtro.

IV.2 - Irradiação de Amostras

As amostras foram colocadas em tubos de polietileno de aproximadamente 5 cm de altura por 1,5 cm de diâmetro, (Figura IV.1) e as irradiações foram feitas no Reator Argonauta do IEN, com um fluxo de $\phi = 1,77 \times 10^8$ n/cm² seg (17 watts) no canal de irradiação J-9, posição-4. O esquema do Reator pode ser visto nas Figuras IV.2 e IV.3.

IV.3 - Equipamento de Detecção e Contagem

O equipamento usado foi: - um detetor coaxial de Ge-Li "ortec" modelo Nº 8001; - um pré-amplificador "ortec" modelo Nº 120-4 acoplado;

- uma fonte de alta tensão, modelo "ortec" nº 459;
- amplificador modelo "ortec" nº 450;
- analisador multicanal, modelo "ortec" de 1024 canais Nº 6240;
- impressora, teletipo modelo 33-TC (ortec)

IV.4 - Monitorização do Fluxo de Neutrons

Como monitor foi escolhido o Ouro, pelo fato de ser um material maleável e com alto teor de pureza. Tem as seguintes características:

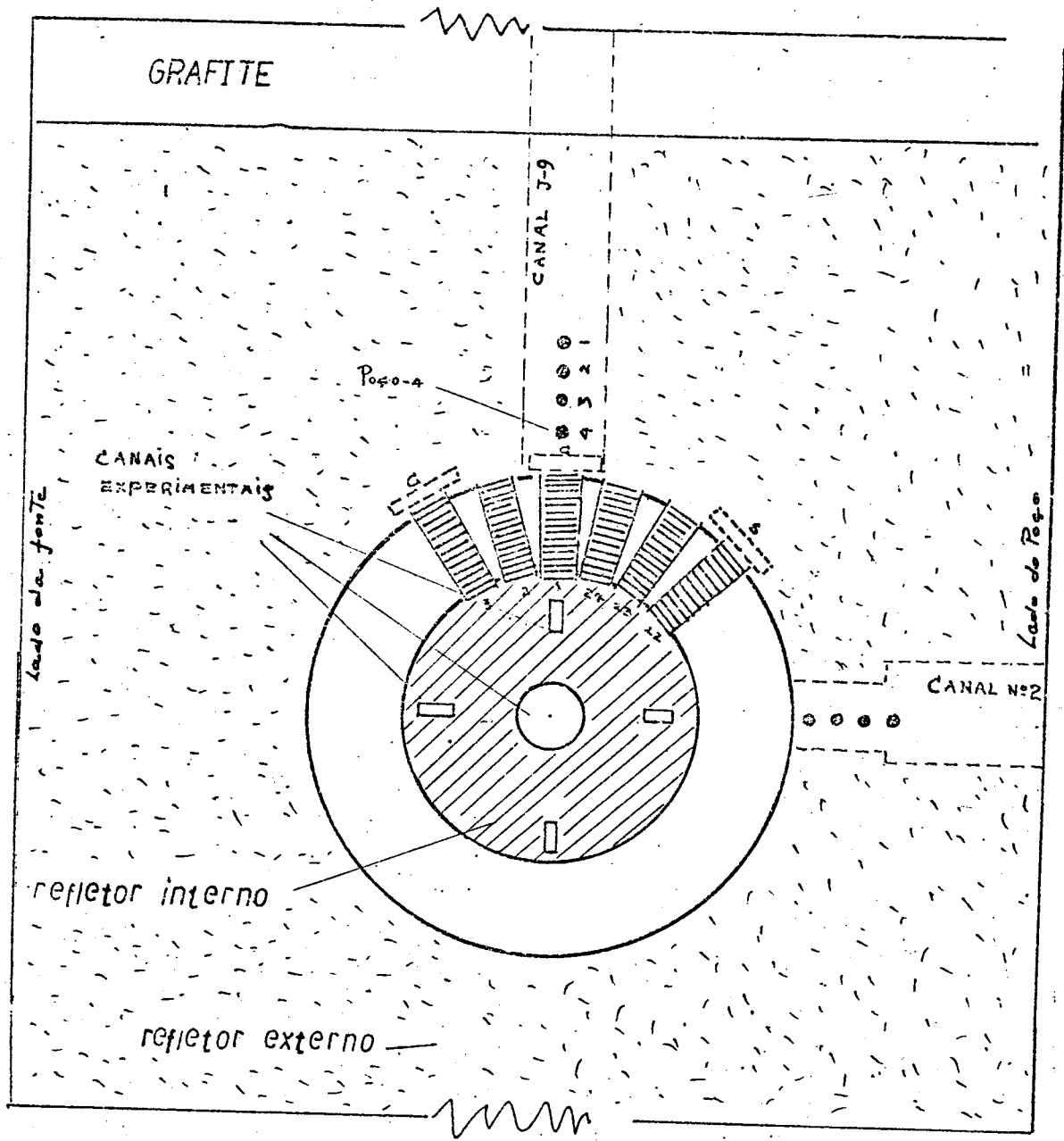


Figura IV-2 Corte horizontal do Reator Argonauta

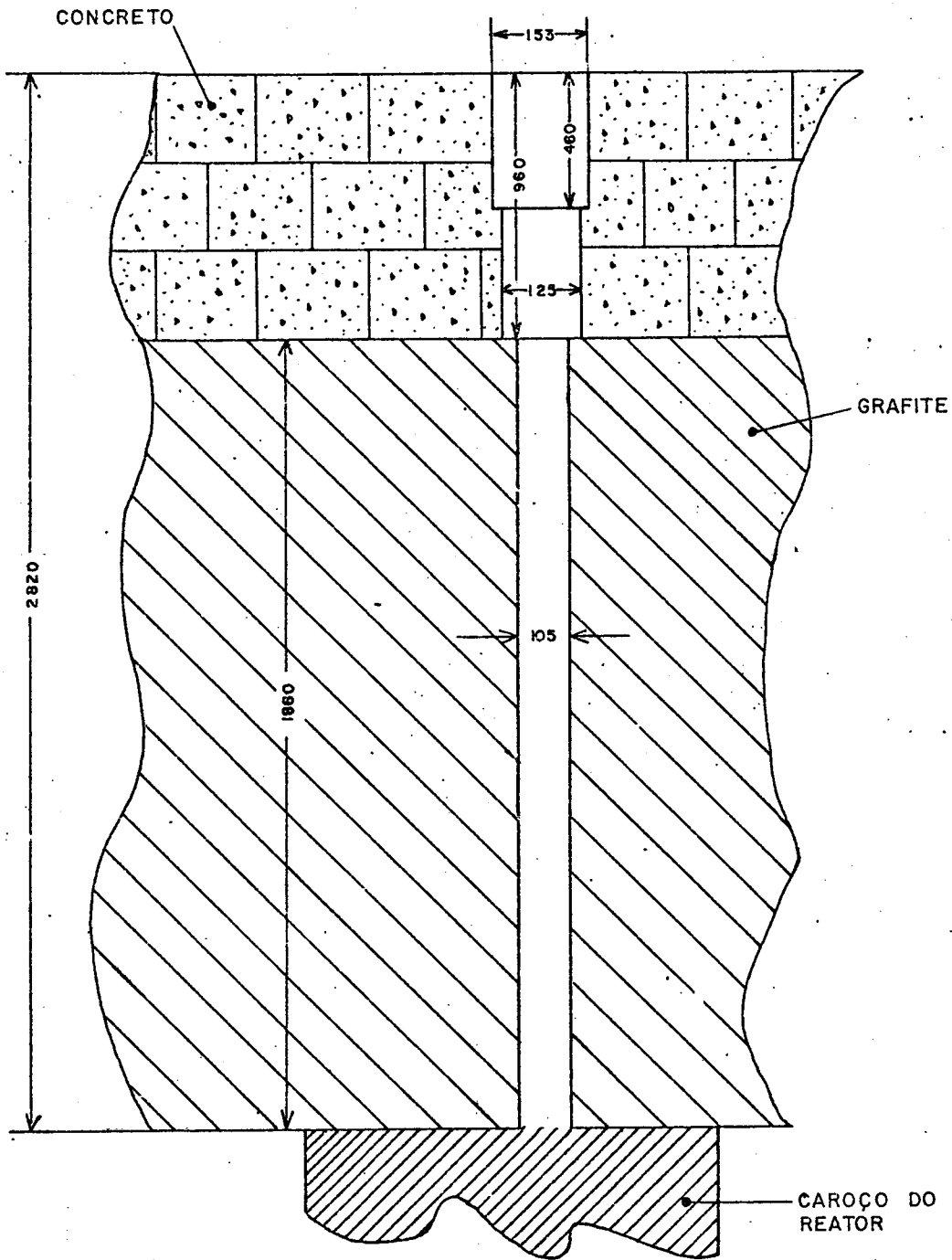


FIGURA IV-3 CANAL DE IRRADIAÇÃO J-9

Observações: Dimensões em mm

- Reação $^{197}\text{Au}(n, \gamma) ^{198}\text{Au}$;
- $E_{\gamma} = 411.8 \text{ Kev}$;
- $G/D = (95,53 \pm 0,05)\%$ ⁽¹⁷⁾ Intensidade absoluta gama;
- $\theta = 100\%$
- $T_{1/2} = 2,697 \pm 0,005 \text{ dias}$ ⁽¹⁸⁾
- $\sigma_0 = 98,6 \pm 0,2 \text{ barn}$ ⁽¹⁹⁾

- Apresenta uma seção de choque com comportamento $1/v$ na região térmica, fugindo levemente na região de energia próxima ao corte do cádmio devida à influência de um forte pico de ressonância centrado em 4,9 eV (Fig. IV.4).

O cádmio é um material que apresenta uma seção de choque de absorção de nêutrons térmicos muito alta, da ordem de 2500 barn, e uma ressonância próxima em 0,178 e V, como é visto na figura (IV.4)

O dispositivo para medida da Razão de Cádmio é mostrado na figura IV.5. As folhas, uma revestida com Cádmio e a outra sem cobertura, foram colocadas nos extremos da placa de lucite a uns três centímetros de distância entre elas, já que segundo a literatura ⁽²⁰⁾ o espaçamento mínimo deve ser duas vezes o diâmetro da amostra para minimizar o efeito mútuo de sombra ocasionado pela presença das folhas.

IV.5 - Processamento de Dados de Contagem

A necessidade do tratamento de dados mediante um computador, aparece como consequência da grande resolução dos

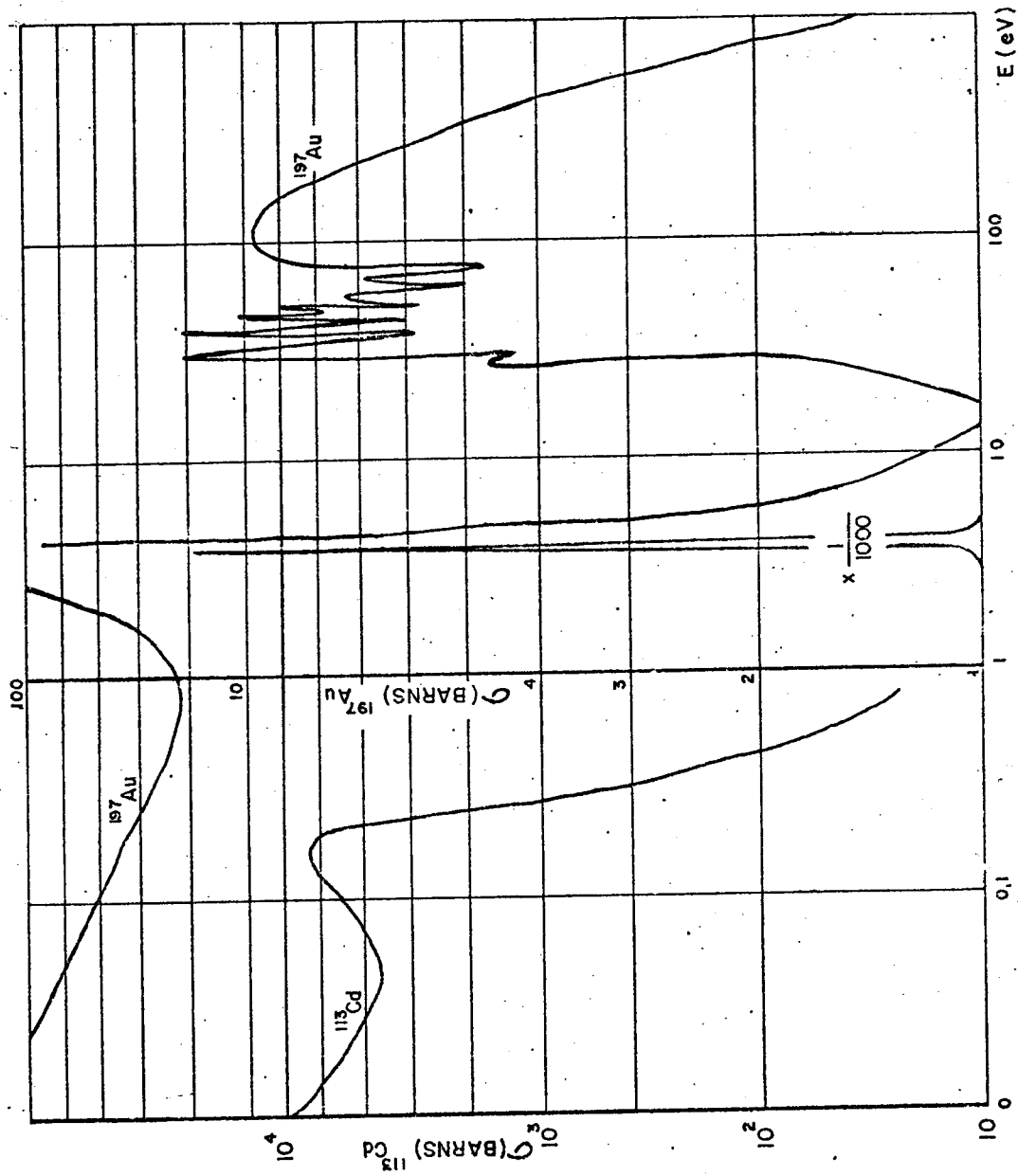


FIGURA IV-4 SEÇÃO DE CHOQUE TOTAL DO ¹⁹⁷Au E ¹¹³Cd

detetores, que dão lugar a grande quantidade de dados, tornando do trabalhoso o cálculo quando são usados analisadores de muitos canais. Por outro lado, a escolha e tratamento manual dos picos torna-se difícil quando tem de ser analisados vários espectros.

Elaborou-se um programa em linguagem FORTRAN, com as seguintes características:

a) suaviza o espectro de dados:

É usado o método de "convolução", dado pela formula (III.8), ajustado a um polinomio de ordem três a cinco canais consecutivos:

$$YB(5) = \frac{1}{35} (-3Y(J-2) + 12Y(J-1) + 17Y(J-0) + 12Y(J+1) - 3Y(J+2)); \quad (IV.1)$$

o ajuste é realizado duas vezes.

Pode-se introduzir erros no caso do pico ser muito prominente, contudo, o alizado é mais eficiente para fotopicos com contagem baixa, isto é, quando o ganho está em torno de 2 Kev/canal. Como pode ser visto na figura IV.7.

E para picos de contagem alto, deve-se colocar o ganho em torno de 1 Kev/canal.

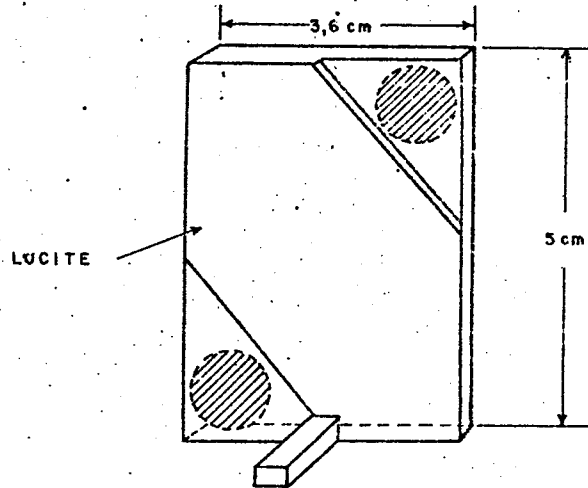


FIGURA IV-5 DISPOSITIVO PARA MEDIDA DA RAZÃO DE CADMIO

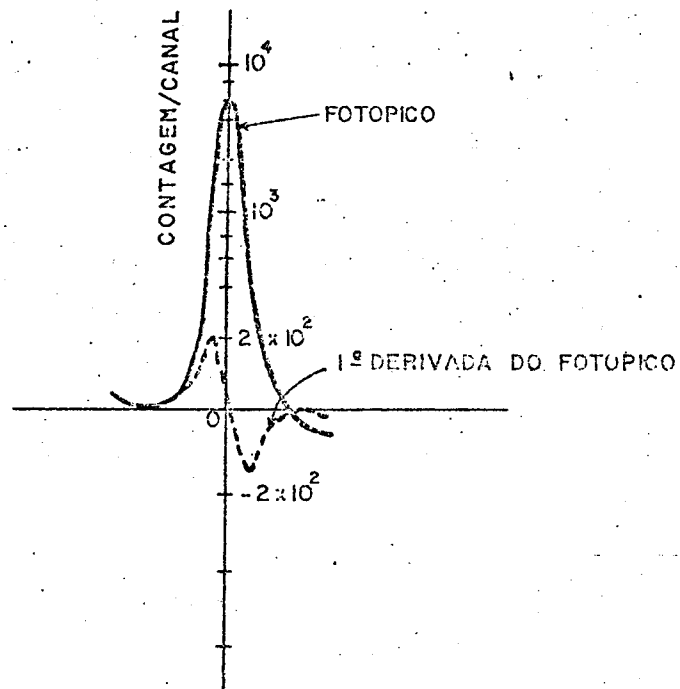


FIGURA IV-6 1ª DERIVADA SUAVIZADA DE UM FOTÓPICO

b) Localiza fotopicos

Faz-se uso da primeira derivada de convolução do espectro suavizado, que elimina a dispersão facilitando a localização do pico, Fig. IV.6.

A primeira derivada de uma função cúbica, é:

$$YD(J) = (Y(J-2) - Y(J+2) + 8Y(J+1) - 8Y(J-1))/12 \quad (IV.2)$$

onde:

$YD(J)$ = primeira derivada no canal J

Y = contagem no canal J

assim,

o fotopico será localizado quando se verifique as seguintes condições:

1ª teste

$$YD_j < 0 \quad ; \quad YD_{j+1} > 0 \quad (IV.3.a)$$

2ª teste

$$\sum_{k=j-2}^{k=j+1} Y_k - 2.0 (Y_{j-2} + Y_{j+2}) > \left(\sum_{k=j-2}^{k=j+2} Y_k \right)^{1/2} \quad (IV.3.b)$$

onde:

$$K=j+1$$

$\sum_{K=j-2}^{K=j+1} Y_k$ = soma total da contagem medida;

$$K=j-2$$

2.0 $(Y_{j-2} + Y_{j+2})$ = uma linha de base;

$$K=j+2$$

$\sum_{K=j-2}^{K=j+2} Y_k$ = desvio padrão da contagem medida .

$$K=j-2$$

Se verificam os dois testes o fotopico é encontrado por interpolação linear no canal:

$$I0(i) = j + D_j/D_j - D_{j-1} \quad (IV.3.c)$$

Para determinação dos limites do fotopico são usadas as relações (III.11.a) e (III.11.b)

c) Testa a Existência dos Fotopicos

E feito comparando a sua altura com o fundo, verificando-se⁽²¹⁾:

$$\frac{YB(I0)}{YB(I1)} = A(K) \text{ e } A(k) \geq BRCH \quad (IV.4)$$

onde:

YB(I0) = conteúdo do canal "I0" no topo;

YB(I1) = conteúdo do canal I1 na base do fotopico;

BRCH = 1.3, mínimo valor que demanda, se o fotopico excede o background em 30%.

d) Calcula a área dos fotopicos

A área total do pico é calculada pela relação (III.10). O desvio padrão da área é calculado por:

$$s_T = \frac{(A_P + B)^{1/2}}{A_P - B} \quad (IV.5)$$

onde:

A_P = área total do pico (contagem medida);

B = contagem de fundo.

e) Calcula a largura da base do fotopico

O "FWTM" (full width tenth-maximum) e a largura na base do fotopico e facilita a identificação dos picos doubles.

Em resumo, o programa localiza os picos, determina as suas energias, calcula as suas áreas e o erro na área de cada pico, ajustando a forma do pico a uma função cúbica. O cálculo das áreas por esse método resultou bom para picos muito fracos como pode ser visto na Fig. IV.7.

Os picos escape simples e duplos não foram considerados, desde que esses eventos tem natureza diferente contrastando com os picos de absorção total.

Os dados são fornecidos por meio de três arquivos guardados em disco. O primeiro arquivo contém os dados relativos a canal e contagem por canal, o segundo arquivo contém

COMPARAÇÃO COM OS DADOS AJUSTADOS
PARA PICO COM BAXA ESTATÍSTICA

□ DADOS ORIGINAIS
* DADOS SUAVIZADOS

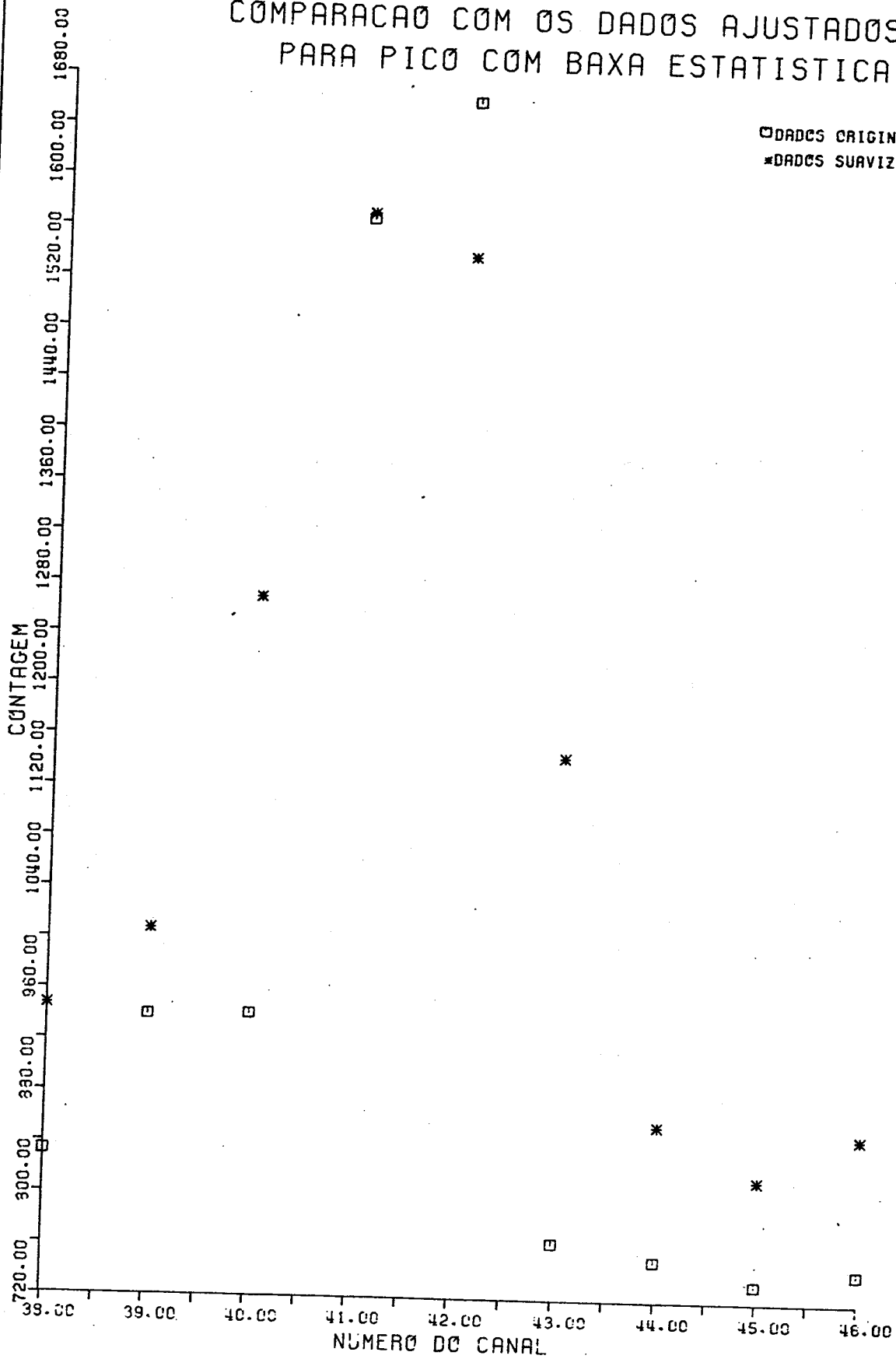


FIGURA IV-7 Comparação do espectro Observado(□) e o Espectro Sintético(*)

dados da eficiência do detetor que são ajustados a um polinômio de ordem dois (cada ponto a ajustar é acompanhado do seu desvio padrão), o terceiro arquivo contém os dados relativos ao ganho (em KeV/canal) e o método a se desenvolver.

CAPÍTULO VRESULTADOS EXPERIMENTAIS DO MÉTODO ABSOLUTOV.1 - CALIBRAÇÃO DO DETETOR GERMÂNIO-LÍTIV.1.1 - Determinação da Curva de Eficiência do Detetor Germânio-Lítio.

As curvas de eficiência absoluta do detetor são determinadas fazendo uso de fontes padrão.

As fontes padrão são preparadas a partir de soluções aquosas de concentração conhecida. Para esta finalidade foram pipetadas 2 ml de uma solução contendo um composto de Na e Se e 0,5 ml de uma solução contendo um composto de K e Mn sobre um retângulo de aproximadamente 61 cm² de papel Whatman Nº 41. O papel é secado ao ambiente, logo envolto e introduzido no tubo de polietileno para ser irradiado, de maneira a produzir as condições geométricas amostra-detetor.

A eficiência do sistema germânio-lítio é determinada através da relação:

$$EF(E) = \frac{N_p / \Delta t}{A_f \quad G/D} \quad (V.1)$$

onde:

N_p = área sob o pico da energia gama considerado;

A_f = atividade da fonte;

G/D = número de emissões-gama de determinada energia/100 desintegrações;

EF = eficiência do detetor;

Δt = tempo de contagem.

Os primeiros resultados são vistos na Tabela V.1, onde são analisados os elementos de maior sensibilidade.

TABELA V.1 - Resultados da Eficiência Absoluta

CANAL	FONTE	E (Kev)	G/D%	EF(E) X10 ⁻³	Log(1/EF)
387	Mn-56	846,8	100,00	2,9	5,843
625	Na-24	1368,5	100,00	2,25	6,097
827	Mn-56	1810,7	89,29	1,45	6,536
965	Mn-56	2112,8	15,15	1,30	6,645

Por outro lado, grandes erros sistemáticos podem ser cometidos, já que as fontes padrão não foram irradiadas a a té saturação; isto significa, que o ajuste dos pontos energia versus eficiência poderia ser um tanto forçada. A curva de eficiência absoluta é mostrada na figura V.1 (Geometria-1)

Adotou-se então outro critério usando-se uma fonte para circular de Europio-152 (diâmetro=Ø,5 cm) com uma atividade de 0,27 Ci (em 17-10-80) que foi colocada 25 cm a cima do detetor, e assim determinar uma curva de eficiência rela tiva, que logo será comparada com a primeira. As duas curvas são apresentadas na figura V.1, e estão deslocadas por um fa tor de 0,2 para melhor visualização.

Assim, para obter as curvas de eficiência relati va se adotou as relações dadas por Donelly⁽²²⁾:

$$R(E_1, E_2, p) \approx \left\{ A(E_1, p) / A(E_2, p) \right\} I_2 / I_1 \quad (V.2)$$

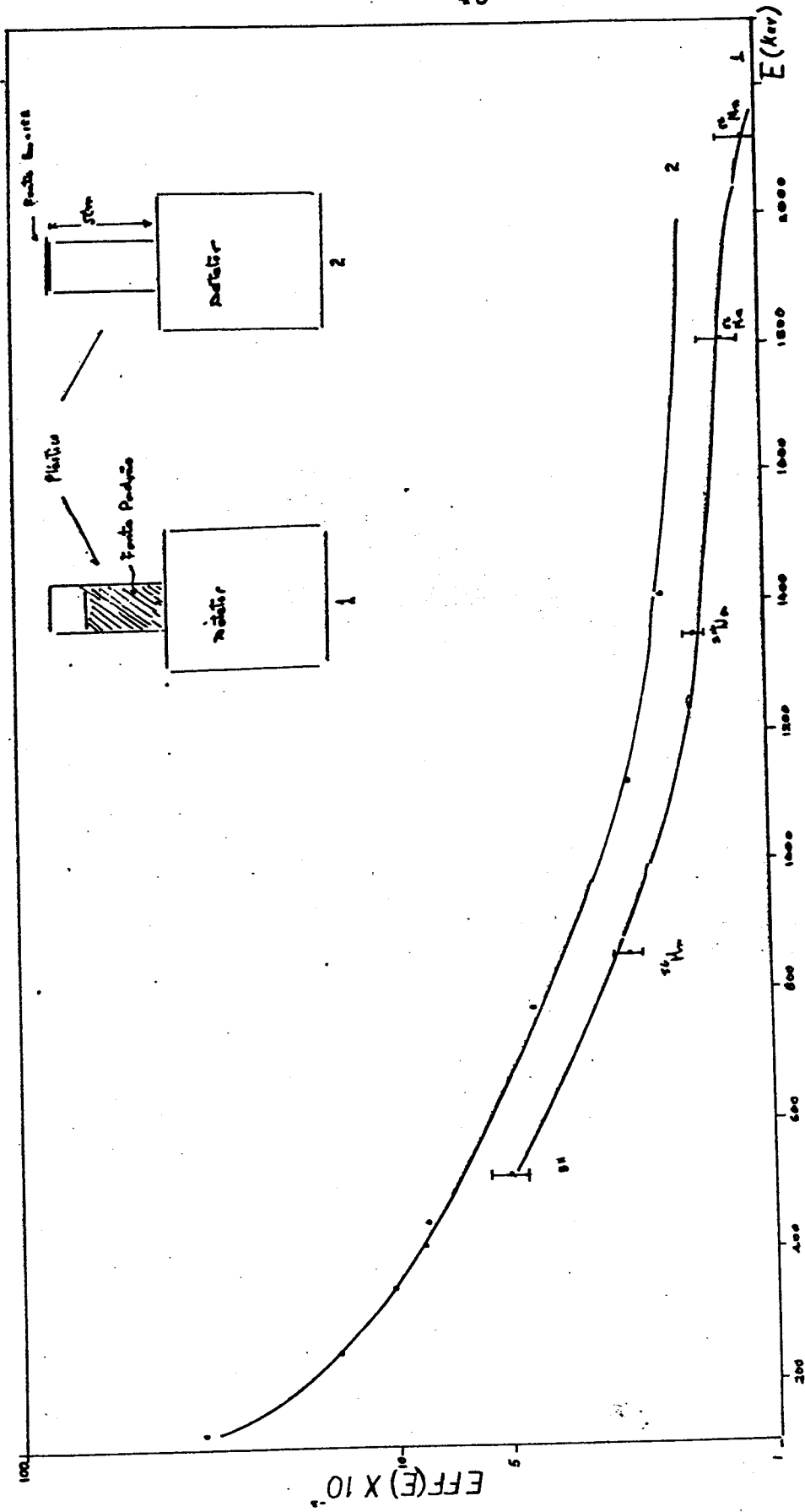


FIGURA V-1 Curva de Eficiência do Detetor $\Theta(Li)$

onde:

$R(E_1, E_2, p)$ = representa a eficiência relativa;

$A(E, p)$ = contagens corrigidas do fotopico de energia E ;

I = intensidade relativa;

p = distância fonte-detetor

Na realidade, a função $R(E_1, E_2, p)$ é dependente da distância p (fonte-detetor), mais nota-se que para $p=5$ cm, não influencia na forma da curva, como pode ser visto na referida publicação.

Na tabela V.2 estão reportados os resultados para a determinação da curva de eficiência relativa do detetor. As medidas foram tomadas para um tempo de contagem $\Delta t=20$ min.

Contudo, a comparação das duas curvas leva erros inerentes sobretudo porque a estimativa do ajuste pelo visual da curva -1 é algo subjetivo. Se esse problema não pode ser solucionado de uma maneira satisfatória optamos pela estimativa das incertezas: 5% na faixa de 200-1400 Kev e 9% acima dessa energia, pela comparação das duas curvas.

Logo, então os dados da tabela V-2 são ajustados pelo método dos mínimos quadrados a uma curva de segunda ordem no programa de computador, como pode ser visto na listagem de saída dado no apêndice IV. Como resultado, se obtém a curva de eficiência do detetor Ge-Li, dada por:

$$EF(E) = \exp \left\{ -(A(1) + A(2)E + A(3) E^2) \right\}$$

onde:

$$A(1) = 0,2893 \times 10^1 ;$$

$$A(2) = 0,4670 \times 10^{-2};$$

$$A(3) = 0,1781 \times 10^{-5} .$$

são os coeficientes do melhor polinômio de ajuste.

O valor $\chi^2 = 0,7999$ indica um bom ajuste (ver apêndice IV)

V.1.2 - Determinação da Energia dos Picos

A construção de uma reta de calibração, energia vs. canal, permite determinar a energia dos fotopicos no espectro de raios gama.

Conhecidas as energias exatas dos picos, consultou-se uma tabela de energia dos raios gama para identificar o radioisótopos correspondentes (23,24,13,25).

Na identificação, fez-se uso do fato de que um grande número de radioisótopos apresenta dois o mais picos, o que serve como confirmação da presença desses radionuclídeos.

No entanto um problema decorrente aparece devido à não linearidade do sistema, os que apresentam uma resposta não-linear para as energias dos raios gama e os canais dos picos. Construímos a curva de desvio da linearidade - x - como função da posição $-\Delta x$ - (canal), como pode ser visto na figura

V.2.

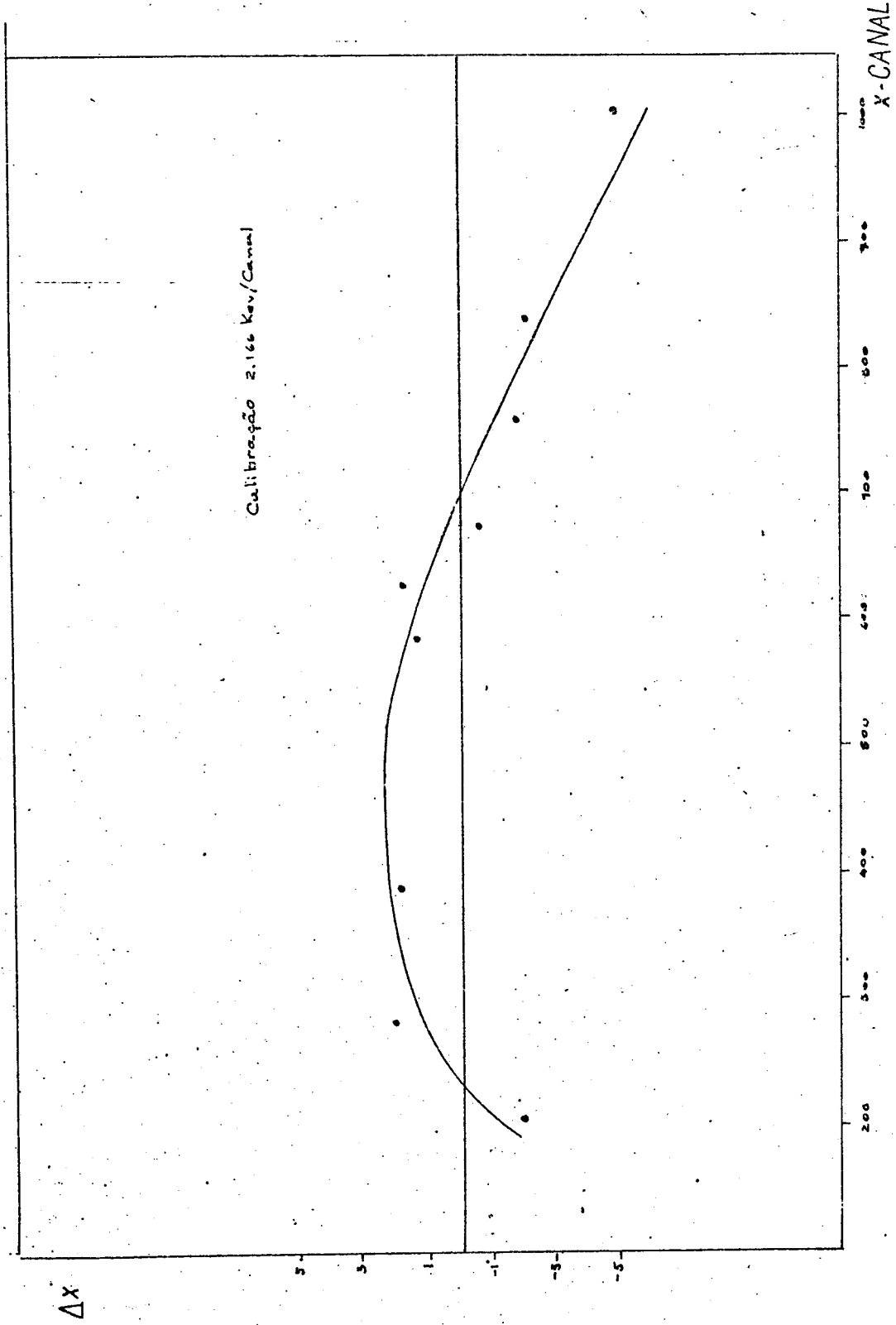


FIGURA V-2 Curva de Desvio da Linearidade do sistema

V.2 - SENSIBILIDADE DO MÉTODO

Os limites de sensibilidade para cada elemento analisado, são determinados por meio das áreas dos fotopicos característicos de cada radioisótopo formado. Esses valores foram calculados conforme os critérios de Currie nas fórmulas (III.21 a.b.c).

Tabela V.2 - Resultados do Cálculo da Eficiência Relativa

CANAL	ENERGIA (KeV)	I (17)	I_1/I_2	$A(E_1)/A(E_2)$	$EF(E_1)/EF(E_2)$
231	121,78	117,0 ± 4	4,05 ± 0,15	8,75 ± 0,01	2,19 ± 0,11
482	244,70	38,9 ± 0,9	0,29 ± 0,01	0,37 ± 0,01	1,29 ± 0,06
688	344,27	100,0	12,09 ± 0,02	15,9 ± 0,03	1,27 ± 0,003
823	411,13	8,27 ± 0,16	0,72 ± 0,4	0,75 ± 0,04	1,05 ± 0,60
890	443,89	11,5 ± 0,6	0,25 ± 0,01	0,47 ± 0,03	1,91 ± 0,12
1576	778,85	46,7 ± 0,02	0,89 ± 0,02	1,15 ± 0,02	1,30 ± 0,05
1955	964,0	52,6 ± 1,1	1,07 ± 0,7	1,24 ± 0,04	1,16 ± 0,81
2258	1112,05	49,1 ± 0,5	0,65 ± 0,02	0,81 ± 0,02	1,26 ± 0,05
2863	1407,92	75,9 ± 1,8	-	-	-

Já que foi usado o método da área total para o cálculo das áreas dos picos, ao valor de μ_B foi adicionada a atividade μ_T correspondente à área do trapézio.

Os resultados obtidos são apresentados na Tabela V.3.

Tabela V.3 - Resultado dos Cálculos para os Limites de Sensibilidade

ELEMENTO	SENSIBILIDADE EM GRAMAS		
	LIMITE DECISÃO WC	LIMITE DETEÇÃO WD	LIMITE DETERMINAÇÃO WQ
⁵⁵ Mn	$9,4 \times 10^{-7}$	$2,8 \times 10^{-6}$	$8,9 \times 10^{-6}$
²³ Na	$9,4 \times 10^{-5}$	$1,8 \times 10^{-4}$	$5,7 \times 10^{-4}$
³⁷ Cl	$1,0 \times 10^{-4}$	$2,1 \times 10^{-4}$	$6,7 \times 10^{-4}$
⁷⁹ Br	$4,8 \times 10^{-6}$	$9,6 \times 10^{-6}$	$3,1 \times 10^{-5}$
⁸⁰ Br	$4,2 \times 10^{-3}$	$8,5 \times 10^{-3}$	$2,6 \times 10^{-2}$

V.3 - INTERFERÊNCIAS

A seguir faz-se uma apreciação das interferências que podem ocorrer nas análises dos elementos que foram encontrados; considerando a possibilidade de serem ou não significativas nos resultados obtidos

V.3.1 - Interferências na Determinação do Manganês

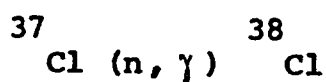
Como já foi dito no Capítulo III, o manganês sofre dois tipos de interferências, uma (de primeira ordem) em

consequência da presença do ferro e a outra (de segunda ordem) pela presença do cromo.

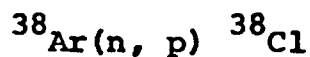
Também a presença de manganês no próprio filtro (branco) dificulta ainda mais a determinação da concentração desse elemento na amostra. Dadas essas considerações mencionadas acima, não será considerado esse elemento na análise.

V.3.2 - Interferências na Determinação do Cloro

O cloro pode sofrer interferências por ^{28}Ar e ^{41}K . Além da reação:



pode ocorrer também as seguintes reações:



O argônio tem uma probabilidade muito pequena de aparecer na amostra como consequência da pouca capacidade retentiva do filtro para esse elemento.

Usa-se a fórmula III.24 para estimar este tipo de interferência, tomando os seguintes dados:

$$\Theta_{\text{Ar}} = 24,47;$$

$$\sigma_0 = 0,43\text{b};$$

$$\theta_A = 6,91 ;$$

$$\sigma_F = 31 \times 10^{-3} \text{ b};$$

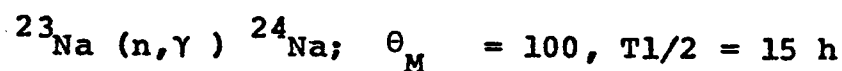
$$T_{1/2} = 37 \text{ min};$$

$$\phi_F / \phi_{th} = 1/10 \text{ (assumido).}$$

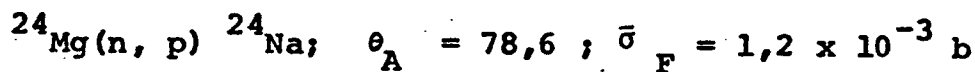
Logo, para um tempo de irradiação de 1 hora, um fluxo de $1.77 \times 10^8 \text{ n/cm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$, o cloro formado a partir do potásio correspondente a 1, 2 ppm de cloro

V.3.3 - Interferências na Determinação do Sódio

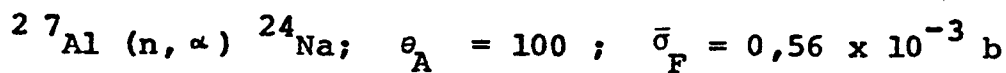
Além da reação principal:



têm-se as reações:



e



se $\sigma_0 = 0,534 \text{ b}$, e assume-se $\phi_F / \phi_{th} = 1/10$ como no caso anterior.

Para a primeira possibilidade:

Pela reação de primeira ordem, um tempo de irradiação de 1 hora, e um fluxo de $1.77 \times 10^8 \text{ n/cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, o sódio

formado a partir do ^{24}Mg corresponde a 0,14 ppm.

Da mesma forma, e em iguais condições, tem-se, que o sódio formado a partir do ^{27}Al corresponde a 0,07 ppm.

V.4 - A DETERMINAÇÃO DO FLUXO TÉRMICO

O fluxo térmico no posso-4, canal J-9, foi obtido mediante a fórmula III.15, e para isso seguem-se os passos seguintes:

- a - A medida das atividades pelo cálculo das áreas dos fotopi-
cos da folha nua e a folha com cobertura de cádmio nos leva
a encontrar a razão de cádmio para o monitor de ouro.
O tempo de irradiação foi de uma hora, e o tempo de conta-
gem (Δt) 600 seg. A tabela V-4 mostra sumarizados esses
valores.
- b - Na tabela V.5 apresentam-se os resultados obtidos para o
fator de correção do fluxo F junto com as características
da folha de ouro. G é encontrado por meio dos valores de
 τ na figura III.5 e "H" da relação (III.17.5) para
 $R \ll \lambda_{tr}$, α é encontrado nas tabelas de integral exponencial.
- c - O cálculo de " τ " (fração de nêutrons intermediários) é fei-
to usando a fórmula (III.16). O valor de T_m é obtido do
trabalho apresentado por Vilar⁽²⁶⁾ para a temperatura dos
neutrons no feixe do canal J-9, valor que dado por $430 \pm$
309 K.

d - O valor de g é encontrado na figura III-3 ou tabelado por Westcott⁽²⁷⁾.

e - O valor de "s" encontra-se tabelado na literatura para vários materiais e várias temperaturas⁽²⁷⁾.

f - O valor de " S_1 ", como já foi mencionado, é encontrado por meio da relação semi-empírica:

$$\sigma(E) = 15,53(E)^{-1/2} + 5,94 (E)^{1/2} - 0,937$$

através da integral (11) do Apêndice I.

g - O valor de F_p é achado das curvas dadas por Baumann^(11,12)

h - K' , é obtido das tabelas de Westcott⁽⁹⁾

Os valores do fluxotérmico, no posso-4, canal J-9 estão registrados na Tabela V-6.

Tabela V.4 - Resultados para a Determinação da Razão de Cádmiio

A (CONTAGEM/SEG) ATIVIDADE DA FOLHA SEM COBERTURA	ERRO	A _{cd} (CONTAGEM/SEG) ATIVIDADE DA FOLHA SEM COBERT.	ERRO	R _{cd}	GT FATOR CORREÇÃO	S(λ, α)	T(λ, β ₁)
35.399,80	1,26	6.254,38	0,61	5,66	0,978	0,011	0,749

TABELA V.5 - Resultados para a Determinação do Fator de Correção do Fluxo

W(gf) MASSA DA FOLHA	R(cm) RATIO DA FOLHA	p(cm) ESPESSURA DA FOLHA	Σ _a (cm ⁻¹)	λ _g (cm) GRAFITE	τ	G	I _e (τ) INTEGRAL	H	F
0,0811	0,511	0,00510	5,836	2,7	0,0292	0,9466	2,9591	1,00	0,9466

Tabela V.6 - Resultados dos Cálculos para a Determinação do Fluxo

T_m	g	s	S_1	F_p	K'	r
0,826	1,0052	20,91	0,033	0,990	0,482	0,0083
$\phi_{th} = 1,77 \cdot 10^8 \text{ n cm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$						

V.5 - CÁLCULO DAS CONCENTRAÇÕES

Como já foi mencionado o trabalho foi iniciado por análise qualitativa das amostras.

Na Tabela V.7 apresentam-se os resultados obtidos na análise qualitativa da amostra Meier.

Nas tabelas V-8 a V-12 são apresentados os resultados das análises.

As concentrações finais, são calculadas subtraindo as concentrações dos elementos encontrados nos filtros as quais foram determinados mediante análise em branco.

O período de amostragem foi, janeiro até março do ano 1979.

Todas as amostras foram irradiadas num fluxo de $1,77 \times 10^8 \text{ n/cm}^2 \text{ seg}$ durante uma hora, seguindo-se um tempo de esfriamento de aproximadamente 15 min.

Tabela V.7 - Análise Qualitativa da Amostra Meier

RADIOISÓTOPO	ENERGIA (KeV)	MEIA VIDA	Θ%	$\dots\sigma_0$ (barn)
Br - 80	V.E. = 616	17,55 ± 0,07 min	50,537	8,5 ± 1,4
	V.T. = 617			
Br - 82	V.E. = 771,7	35,344 h	49,463	3,3 ± 0,4
	V.T. = 777			
Mn-56	V.E. = 840,4	2,486 h	100	13,17 ± 0,1
	V.T. = 847			
Na-24	V.E. = 1372	18,0 ± 0,02 horas	100	0,534 ± 0,005 ^(a)
	V.T. = 1368			
K-40	V.E. = 1462	1,27 x 10 ⁹ anos	93,10	3,0 ± 2
	V.T. = 1461			
Cl-38	V.E. = 1646,2	37,12 ± 0,12 min	24,47	0,56 ± 0,12
	V.T. = 1642			
M _n -38	V.E. = 1815	2,586 h	100	13,17 ± 0,1
	V.T. = 1811			
Cl-38	V.E. = 2176	37,12 ± 0,12 min	24,47	0,56 ± 0,12
	V.T. = 2166,8			

V.E. = valor experimental ; V.T. = valor tabelado

Tabela V.8 - Amostra Ilha do Governador

ELEMENTO	W(gr)	VAZÃO x TEMPO	AREA DO FILTRO (cm ²)	BRANCO W _M (gr)	CONCENTRAÇÃO gr/m ³	W/W _M
Br-79	3,15 x 10 ⁻⁵	1995	56,64	-	embaixo do limite de deteção	-
CI-37	2,3 x 10 ⁻⁴	1995	56,64	-	> 1,1 x 10 ⁻⁷	-
Na-23	3,0 x 10 ⁻³	1995	56,64	1,98 x 10 ⁻³	7,4 x 10 ⁻⁷	2

Tabela V.9 - Amostra São Cristovão

ELEMENTO	W(gr)	VAZÃO x TEMPO	AREA DO FILTRO (cm ²)	BRANCO W _M (gr)	CONCENTRAÇÃO gr/m ³	W/W _M
Br-79	3,2 x 10 ⁻³	1760	60,12	-	1,8 x 10 ⁻⁶	-
CI-37	2,8 x 10 ⁻⁴	1760	60,12	-	> 1,6 x 10 ⁻⁷	-
Na-23	6,3 x 10 ⁻³	1760	60,12	2,1 x 10 ⁻³	2,4 x 10 ⁻⁶	3

Tabela V.10 - Amostra Centro

ELEMENTO	W (gr)	VAZÃO X TEMPO	ÁREA DO FILTRO (cm ²)	BRANCO W _M (gr)	CONCENTRAÇÃO gr/m ³	W/W _M
Br-79	9,7 x 10 ⁻⁴	1211	56,60	-	8,0 x 10 ⁻⁷	-
Cl-37	3,4 x 10 ⁻⁴	1211	56,60	-	2,8 x 10 ⁻⁷	-
Na-23	2,9 x 10 ⁻³	1211	56,60	1,97 x 10 ⁻³	8,3 x 10 ⁻⁷	1,5

Tabela V.11 - Amostra Meier

ELEMENTO	W (gr)	VAZÃO X TEMPO	ÁREA DO FILTRO (cm ²)	BRANCO W _M (gr)	CONCENTRAÇÃO gr/m ³	W/W _M
Br-79	3,0 x 10 ⁻⁴	1725	55,07	-	2,2 x 10 ⁻⁷	-
Cl-37	6,8 x 10 ⁻⁴	1725	55,07	-	3,9 x 10 ⁻⁷	-
Na-23	4,3 x 10 ⁻³	1725	55,07	1,92 x 10 ⁻³	1,4 x 10 ⁻⁶	2

Tabela V.12 - Amostra Bonsucesso

ELEMENTO	W (gr)	VAZAO x TEMPO	AREA DO FILTRO (cm ²)	BRANCO W _M (gr)	CONCENTRAÇÃO gr/m ³	W/W _M
Br-79	$1,5 \times 10^{-3}$	1374	56,51	-	$8,9 \times 10^{-7}$	-
CI-37	$6,3 \times 10^{-4}$	1374	56,51	-	$4,6 \times 10^{-7}$	-
Na-23	$4,9 \times 10^{-3}$	1374	56,51	$1,97 \times 10^{-3}$	$2,2 \times 10^{-6}$	3

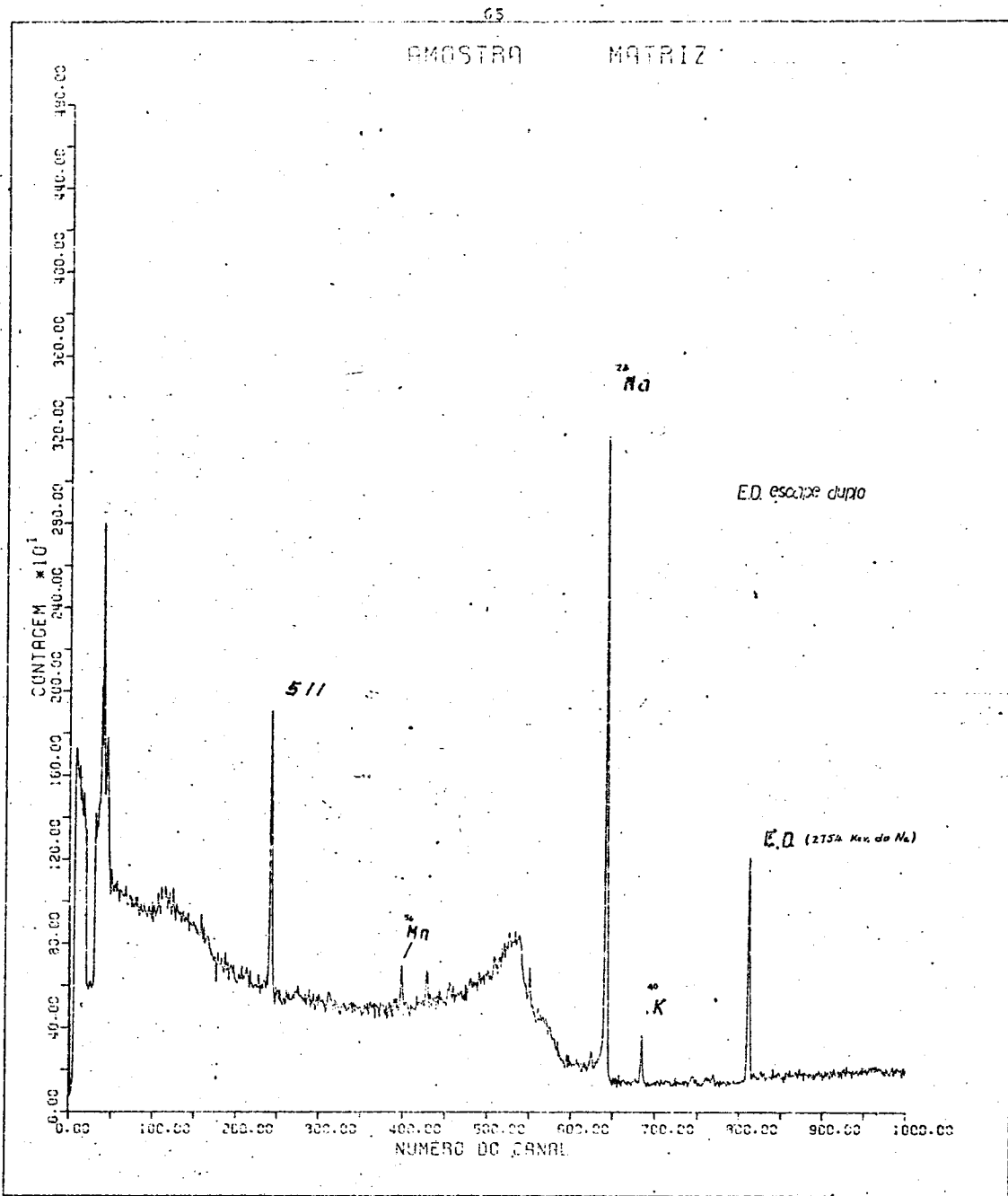


FIGURA V3 Espectro de Raios Gama de Amostra-Branco

AMOSTRA SÃO CRISTÓVAO

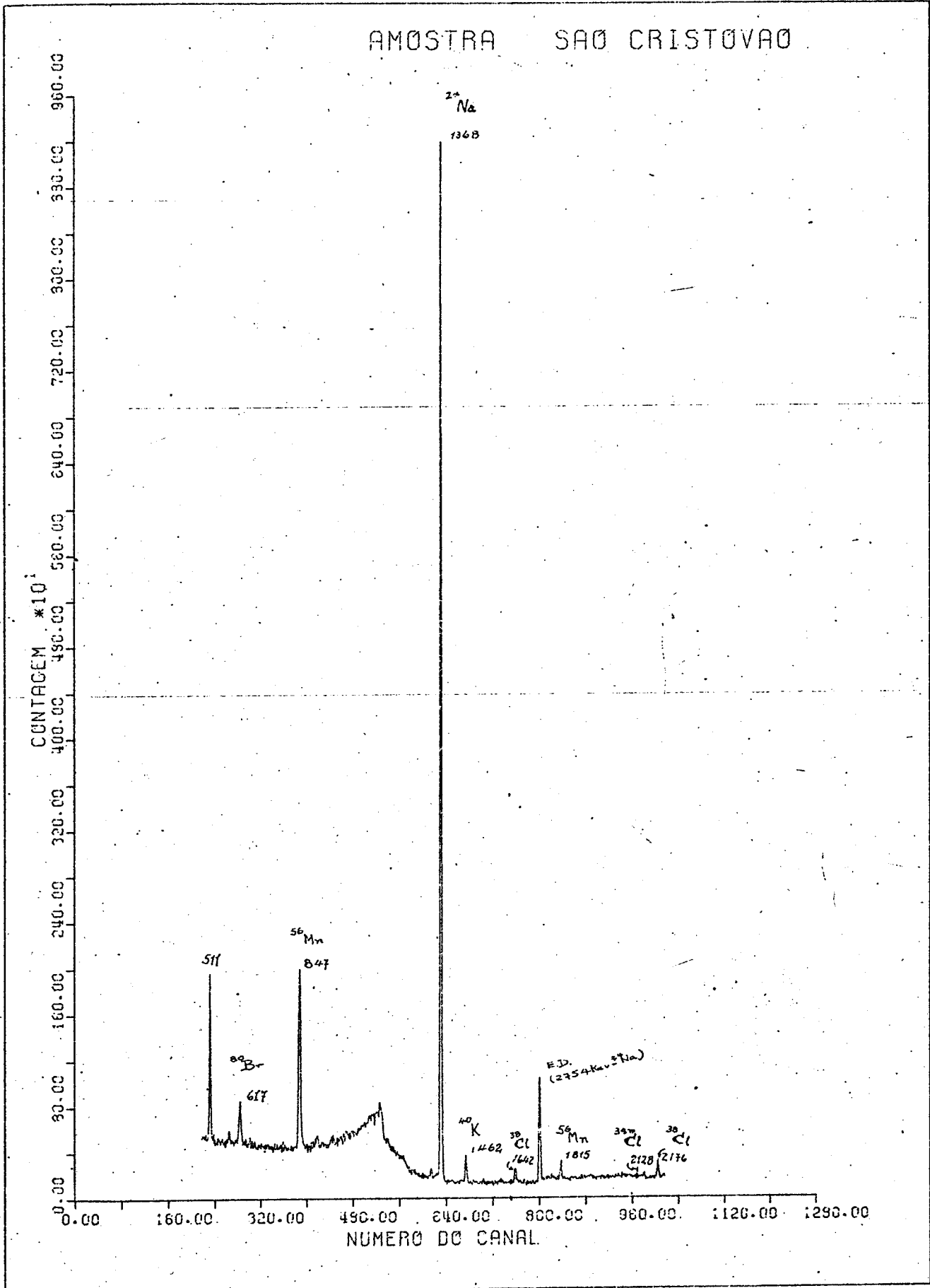


FIGURA V-4 Espectro Gama de Amostra Coletada em S. Cristóvão

V.6 - ERROSV.6.1 - Erros na Determinação do Fluxo

Não sendo possível estimar os erros nos parâmetros calculados teoricamente, faremos uma estimativa da propagação de erros que influenciam no cálculo do fluxo.

- Erro causado pela incerteza na determinação da atividade:

σ_A = erro no cálculo da área do fotopico, calculado segundo a expressão IV.5;

σ_{EF} = erro na determinação da eficiência, estimado levando em consideração o desvio entre o ajuste teórico e o ajuste dos pontos experimentais. Estimou-se em 1,7%;

$\sigma_{G/D}$ = erro na intensidade absoluta gama (95,53 ± 0,05)%;

σ_{cd} = erro pela omissão do fator de cádmio F_{cd} (que considera a fração de neutrons que são absorvidos pelo cádmio e que depende da espessura do mesmo). Esse fator está calculado na literatura⁽²⁸⁾, e é muito próximo de 1 para uma espessura do cádmio de 0,05 mm. Estimou-se um limite inferior igual a 0,1% para esse erro;

σ_T = erro na temperatura dos neutrons 7%⁽²⁶⁾;

σ_{ti} = erro causado pela incerteza no tempo de irradiação (1 ± 1/60) horas;

σ_{te} = erro causado pela incerteza no tempo de esfriamento. Estimou-se um erro igual a 0,06%;

σ_{hf} = erro causado pela incerteza na meia vida do monitor (ou ro) $2,697 \pm 0,005$ dias;

σ_s = erro causado pela incerteza nos valores da seção de cho que $(98,6 \pm 0,2)$ baras;

σ_M = erro causado pela incerteza na determinação da massa da folha $(81,1 \pm 0,1)$ mg.

Tabela V.13

σ_A (%)	σ_{EF} (%)	$\sigma_{G/D}$ (%)	σ_{Cd} (%)	σ_I (%)	σ_{t1} (%)	σ_{te} (%)	σ_{hf} (%)	σ_S (%)	σ_M (%)	σ_ϕ (%)
1,4	1,7	0,05	0,1	7	1,7	0,06	0,2	0,2	0,2	7,4

V.6.2 - Erros na Determinação das Massas Elementares do Na, Cl e Br

Depois da análise qualitativa das amostras, o passo seguinte é determinar a quantidade de massa "w" de cada elemento presente na amostra, o que nos leva a usar a fórmula (III 5). A propagação de erros em cada um dos parâmetros da fórmula (III.5) dá uma estimativa da grandeza do erro final na determinação das concentrações:

σ_ϕ = erro na determinação do fluxo de neutrons. É tomado como 7,4% na propagação de erros no cálculo do fluxo;

σ_A = erro na determinação da área do fotopico, que é calculado pelo programa do apêndice II;

σ_{EF} = erro na determinação da eficiência do detetor, estimado levando em consideração o desvio entre o ajuste teórico e os pontos experimentais;

$\sigma_{G/D}$ = erro nos valores do esquema de decaimento do radionuclídeo. Para as reações (n, γ) é importante o conhecimento dos valores da intensidade absoluta. Fazemos uma avaliação dos valores dados pela "Nuclear Data Sheets", e encontramos que esses erros não podem ser superiores a 2%;

σ_S = erro causado pela incerteza nos valores da seção de choque. Esse dado é tomado da tabela de Aliev⁽¹³⁾ para cada elemento analisado;

σ_{hf} = erro causado pela incerteza nos valores da meia vida do elemento. Usando como referência as publicações da "Nuclear Data Sheets" esses erros são determinados para cada elemento a analisar;

σ_{ti} = erro causado pela incerteza no tempo de irradiação ($1 \pm 1/60$) horas;

σ_{te} = erro devido a geometria amostra-detetor. Um exemplo de estimativa desse tipo de erro é dado por Cali⁽²⁹⁾, tomando em consideração processos de contagem na reprodutividade geométrica da amostra relativa ao detetor, esses erros foram calculados para diferentes geometrias da amostra. Erros com esse tipo de experiência estão na faixa de $\pm 1,5\%$. Mas também ele assegura que esses erros podem aumentar, no nosso caso podem ocorrer variações de até 9%, pelas correções feitas devido a geometria amostra-detetor.

Tabela V.14 - Erros considerados no Cálculo das Massas

ISÓTOPOS	σ_{ϕ} (%)	σ_A (%)	σ_{FF} (%)	$\sigma_{G/D}$ (%)	σ_S (%)	σ_{hf} (%)	σ_{ti} (%)	σ_{te} (%)	σ_p (%)	σ_W (%)
Na - 24	7,4	0,03	0,3	2	0,9	0,13	1,7	0,1	9	11,9
Cl - 38	7,4	0,3	0,1	2	21,4	0,3	1,7	0,1	9	24,5
Br - 80	7,4	0,05	1,7	2	16,5	0,4	1,7	0,1	9	20,4

CAPÍTULO VIMÉTODOS DE COMPARAÇÃOVI.1 - DESCRIÇÃO DO MÉTODO

O método consiste em irradiar uma amostra desconhecida junto a outra amostra (padrão) que contém o elemento ou elementos a determinar, mas em concentração conhecida.

A medida das atividades da amostra e o padrão são feitas no mesmo detetor e nas mesmas condições geométricas.

Mediante a aplicação da relação (III.5) na amostra e o padrão podemos encontrar uma fórmula para encontrar a massa do elemento (ou elementos) a determinar, assim tem-se:

$$\frac{A_a}{A_p} = \frac{W_a}{W_p} T(t_a, t_b) \quad (\text{VI.1})$$

onde:

A_a = atividade do elemento na amostra;

A_p = atividade do elemento no padrão;

W_a = massa do elemento na amostra;

W_p = massa do elemento no padrão;

t_a = tempo de esfriamento da amostra;

t_p = tempo de esfriamento do padrão.

A fórmula pode ficar mais simples se consideramos elementos de meia vida curta (relativamente) e tempos de es

friamento longos.

$$\frac{A_a}{A_p} = \frac{W_a}{W_p} \quad (\text{VI.2})$$

As concentrações podem ser determinadas da seguinte fórmula:

$$[W_a] = 2 \frac{A_a}{A_p} \frac{W_p}{V_m} \frac{1}{t_0} \quad [\mu \text{ g/m}^3] \quad (\text{VI.3a})$$

onde:

W_a = peso do elemento "x" na amostra;

W_p = peso do elemento "x" no padrão ;

t_0 = peso de amostragem [min] ;

V_m = vazão média [l /min] .

Outra fórmula muito útil para as concentrações em [ppm] , é a seguinte:

$$[C_x] = \frac{A_a}{A_p} \frac{W_p}{W_F} \times 10^6 \quad \text{ppm} \quad (\text{VI.3.b})$$

onde:

W_F = peso total da amostra.

VI.2 - EQUIPAMENTO DE IRRADIAÇÃO E CONTAGEM

As irradiações foram feitas no Reator Pulstar, da Universidade North Carolina dos Estados Unidos, com um fluxo médio de 5×10^{12} n/cm² seg, a 1 Mwatt de potencia. A figura VI.1 mostra o esquema do reator e os seus canais de irradiação.

Após irradiação, os elementos são identificados por seus fotopicos característicos por meio de um detetor Ge - Li do tipo coaxial modelo "ortec" Nº 8001-20 (20 cm³), aclopado a um cinalizador de pulsos de 1024 canais (ND 6603). Os dados são armazenados em fita magnética e/ou listados em papel, no formato de canal versus contagem.

VI. 3 - IDENTIFICAÇÃO DE FOTOPICOS

Uma reta de calibração, energia versus canal, permite determinar a energia dos fotopicos no espectro de raios gama (calibração em 1.877 Kev/canal).

Utilizou-se um catálogo de espectros de raios gama (23,24,13,25) para identificar os isótopos produzidos.

Foi necessária a correção dos desvio da linearidade do sistema, devido a que no sistema de deteção dos raios gama existem componentes eletrônicos que apresentam uma resposta não linear. A curva de desvio da linearidade é apresentada na fig. VI.2.

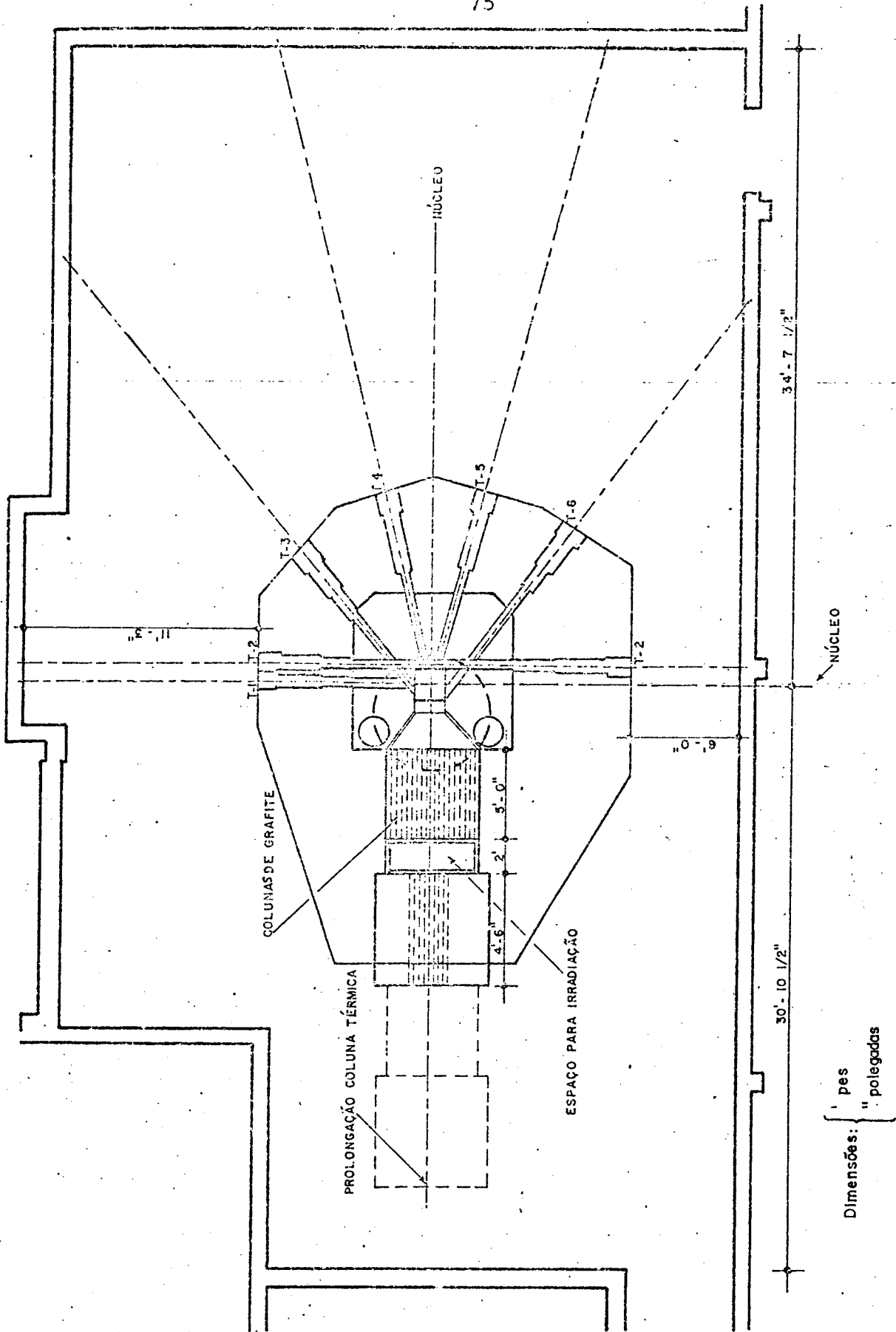


FIGURA VII-1 CORTE HORIZONTAL DO REATOR PULSTAR

76

28

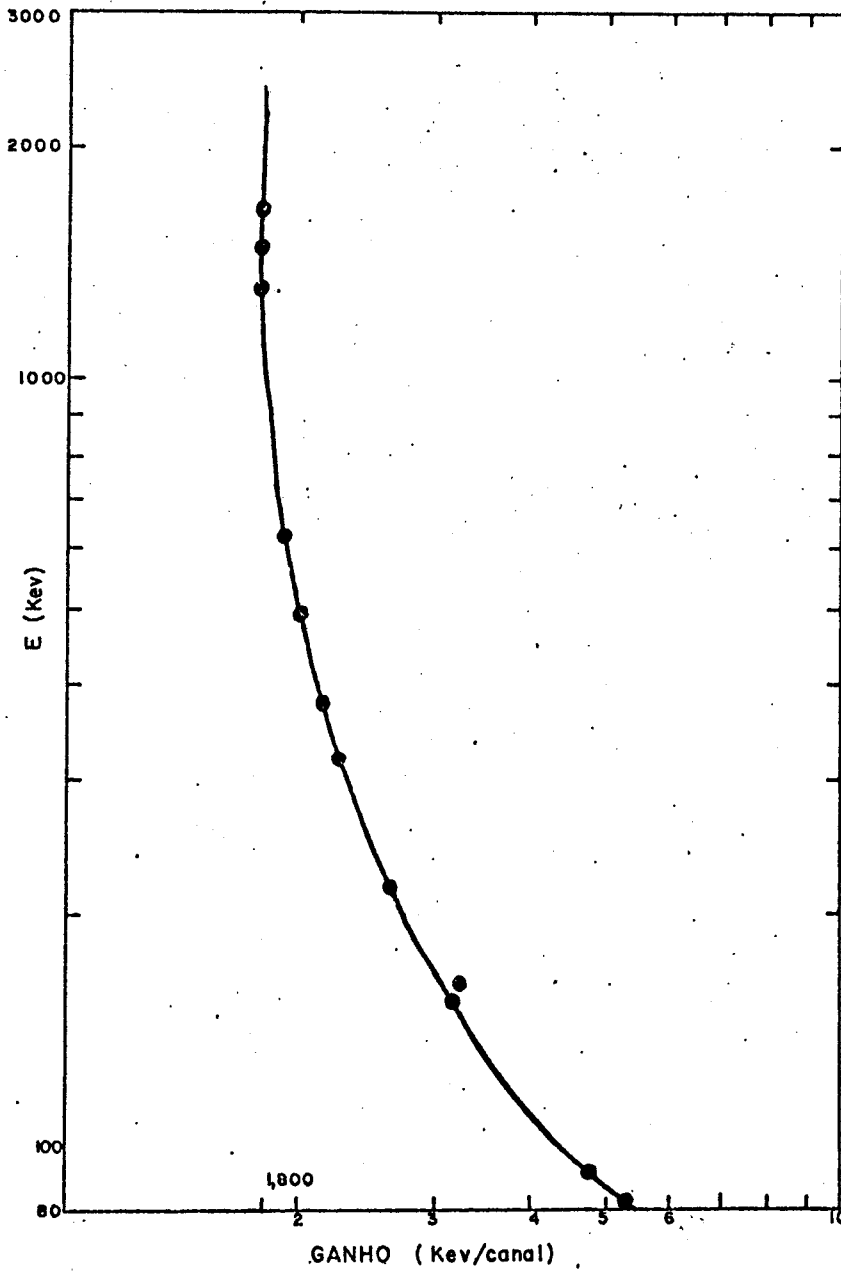


FIGURA VI-2 DESVIO DA LINEARIDADE DO SISTEMA Ge-Li

VI. 4 - ERROS

Para avaliar quantitativamente a incerteza que acompanha os resultados, foi necessário a estimativa dos erros pelo desvio padrão das medidas:

$$\sigma_x = \frac{Aa}{Ap} \frac{Wp}{Wf} \left\{ \left(\frac{\sigma_{Aa}}{A^2} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Ap}}{A^2} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Wp}}{Wp^2} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Wf}}{Wf^2} \right)^2 \right\}^{1/2} \cdot 10^6 \quad (\text{VI.4.a})$$

ou

$$\sigma_x = 2 \cdot \frac{Aa}{Ap} \cdot \frac{Wp}{Vm} \cdot \frac{1}{to} \left\{ \left(\frac{\sigma_{Aa}}{Aa} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Ap}}{Ap} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Wp}}{Wp} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Vm}}{Vm} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{to}}{to} \right)^2 \right\}^{1/2} \quad (\text{VI.4.b})$$

onde:

$$Aa = \frac{(Ap)a - (Ap)b}{ta} ; \quad (\text{VI.5.a})$$

$$Ap = \frac{(Ap)p - (Ap)b}{tp} \quad (\text{VI.5.b})$$

e

$$\sigma_{Aa} = \left\{ \left(\frac{\sigma_{(Np)a}}{ta^2} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{(Np)b}}{ta^2} \right)^2 \right\}^{1/2} \quad (\text{VI.5.6})$$

$$\sigma_{Ap} = \left\{ \left(\frac{\sigma_{(Np)a}}{tp} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{(Np)b}}{tp} \right)^2 \right\}^{1/2} \quad (\text{VI.5.d})$$

onde:

Ap = atividade final do padrão;
 Aa = atividade final da amostra;
 T = tempo de contagem;
 to = tempo de amostragem;
 Np = área do fotopico

os subscritos:

a = amostra;
 b = fundo;
 p = padrão.

VI.5 - TÉCNICA DE AMOSTRAGEM

VI.5.1 - Coleta de Amostras

A determinação de elementos, em nível de traços precisa de uma técnica de medida de boa sensibilidade. Nessas circunstâncias, contaminação e/ou perda de material são de extrema importância, e deve ter-se extremo cuidado para minimizar estes efeitos durante a amostragem, manuseio e análise.

Para uma coleta quantitativa de particulados, usa-se filtros do tipo "Nuclepore" com uma área de deposição de 9,6 cm². O material particulado foi coletado por meio de uma bomba de sucção marca Gelman N° 6602, operado numa vazão média de 4,0 l/min, medida pelo rotâmetro colocado no conjunto. Os filtros foram colocados num suporte de alumínio onde é segurado o filtro por uma malha protetora. Tudo isso pode ser visto nas figuras (VI.3.a.b.c).

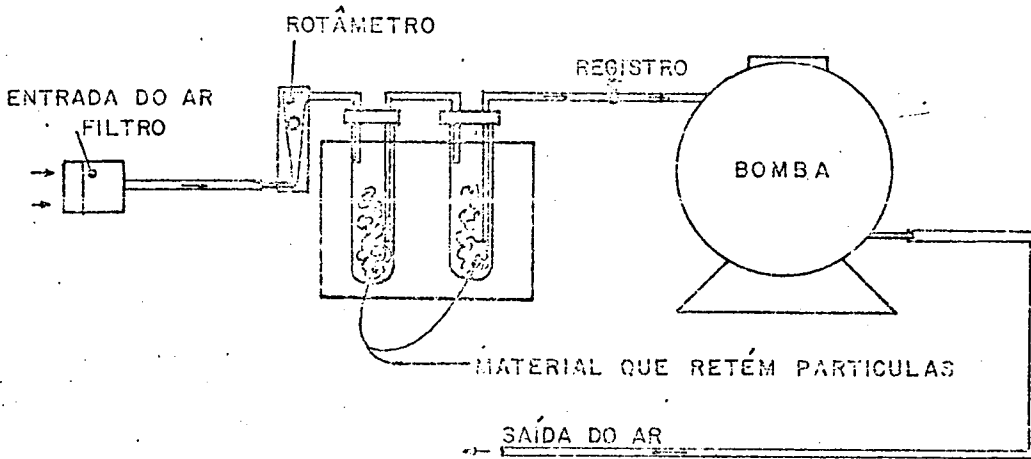


FIGURA VI-3-b DESENHO DE UMA BOMBA DE SUÇÃO DE AR

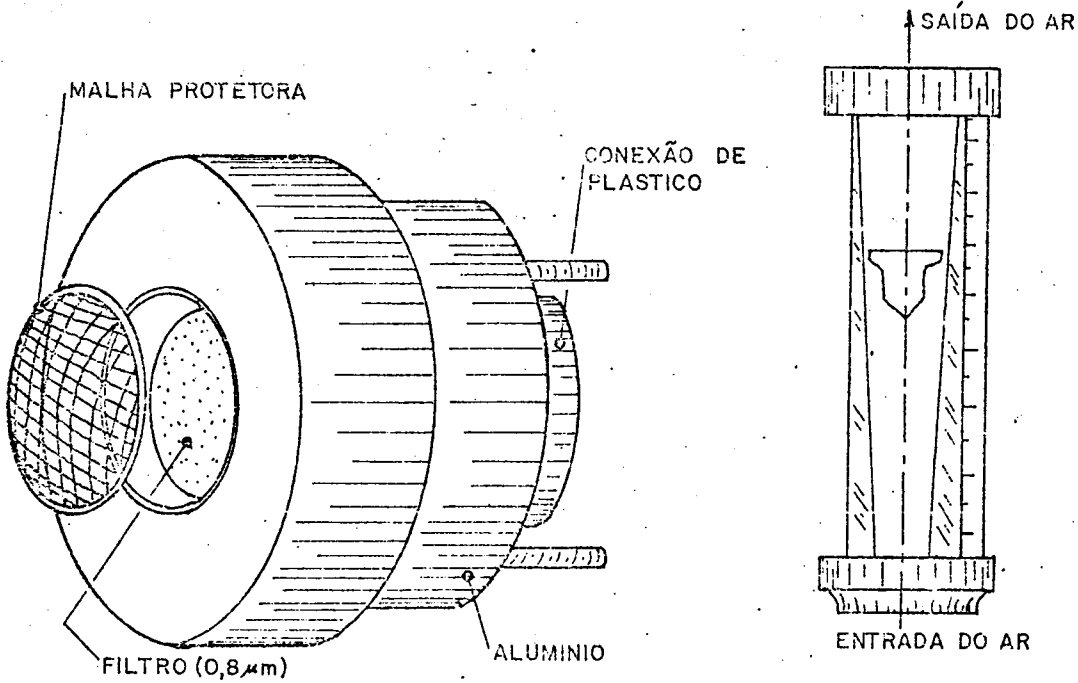


FIGURA VI-3-c SOPORTE DO FILTRO

FIGURA VI-3-d SEÇÃO TRANSVERSAL DO ROTÂMETRO

A porosidade do filtro é de 0,8 μ m, o que garante a melhor faixa de coleta de particulados na atmosfera⁽³⁰⁾, como pode-se apreciar na figura VI-4.

VI.5.2 - Área da Amostragem

Foram coletadas amostras nas zonas industriais, semi-industriais e urbanas da cidade do Rio de Janeiro.

Na figura VI.5 se mostram os pontos de amostragem. As prováveis fontes de contaminação na figura VI.6.

Os locais de amostragem são listados na tabela VI-1.

Tabela VI-1

AMOSTRA	TEMPO CONTAGEM	PESO AMOSTRA	LOCAL
Padrão I	400 seg	0,0623	-
169	"	0,0503	S.Cristovão I
161	"	0,0425	S.CristovãoII
77	"	0,0168	Maracanã I
73	"	0,0132	Copacabana I
1375	"	0,0363	Copacabana II
60	"	0,0200	CopacabanaIII
45	"	0,0157	Pal. JustiçaI
70	"	0,0168	Pal.JuстиçaII
Padrão II	100 seg	0,0574	-
166	"	0,0473	S.CristovãoIII
1205	"	0,0020	Maracanã II
56	"	0,0262	Maracanã III

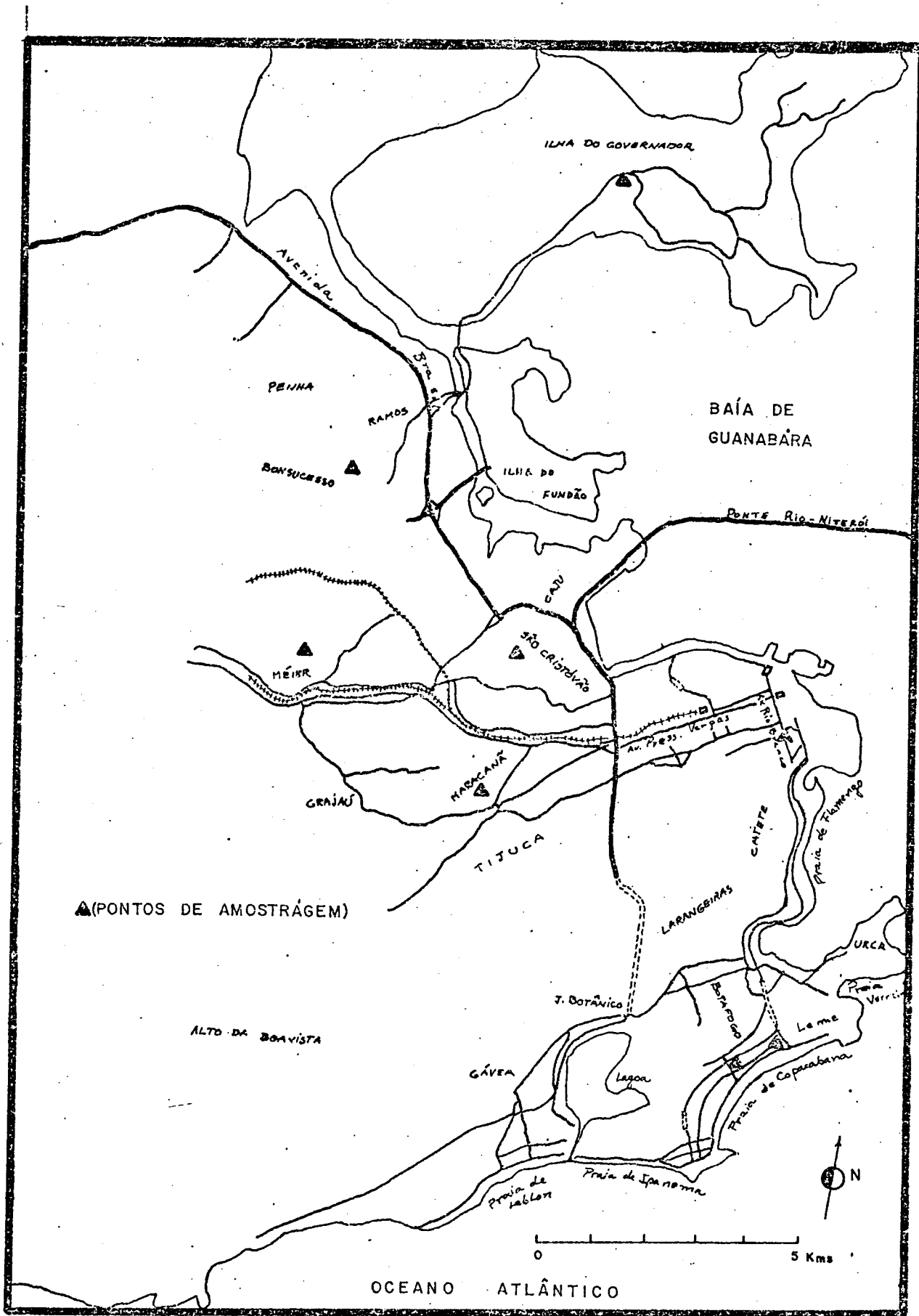


FIGURA VI-5 PONTOS DE AMOSTRAGEM

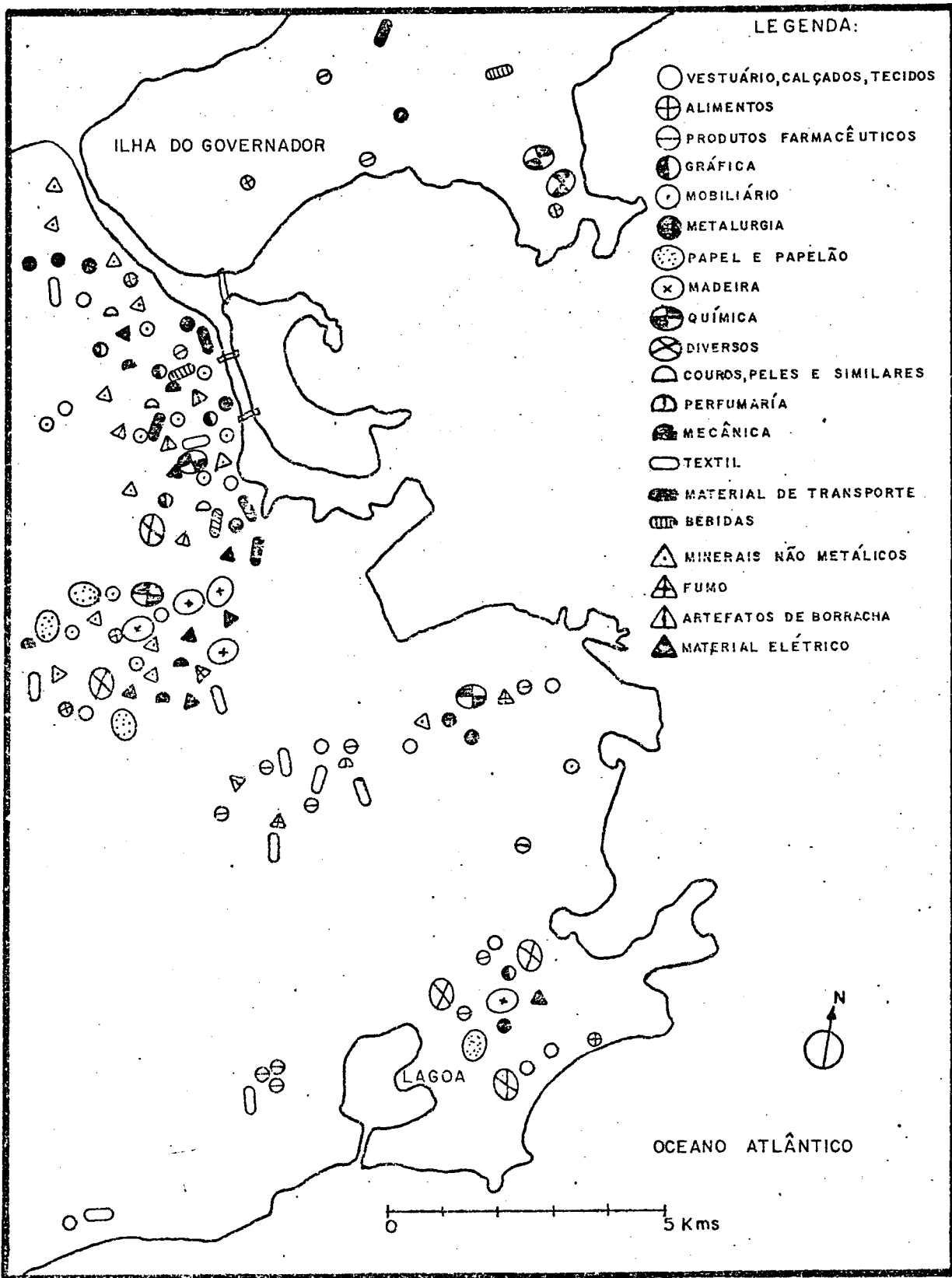


FIGURA VI-6 PRINCIPAIS FONTES DE CONTAMINAÇÃO

VI.6 - ANÁLISE QUALITATIVA

A análise qualitativa das amostras serve para nos orientar e mostrar posteriormente os elementos depositados nas amostras.

As tabelas VI.2 e VI.3 mostram os resultados, dessas análises. Na figura VI.7 é mostrado o espectro gama da amostra padrão I

VI.7 - RESULTADOS

Concentração de mais de quinze elementos foram determinados usando o método de comparação. Nas figuras VI.8 e VI.9, mostram-se os espectros gama típicos obtidos com amostras de partículas atmosféricas.

Resultados quantitativos são obtidos uma vez que são calculados as áreas dos fotopicos com ajuda do programa dado no apêndice II. Esses resultados estão descritos nas tabelas VI.4 à VI.14.

As concentrações dos elementos contidos nos padrões foram fornecidos pela "National Bureau of Standards", dado no apêndice V.

Tabela VI.2 - Análise Qualitativa da Amostra Padrão I

ISÓTOPO	ENERGIA (KeV)	MEIA VIDA	TEMPO IRRADIAÇÃO	TEMPO ESFRIAMENTO	TEMPO CONTAGEM
YB-169	94	32 dias	24 hs.	5 dias	400 seg.
Sm-153	104	47 hs.			
Eu-152	123, 343	12,5 anos			
Ba-131	124, 375, 497, 1047	12 dias			
Se-75	135	120 dias			
Hf-181	136, 481	42,5 dias			
Yb-169	130	32 dias			
Ce-141	146	32 dias			
Sc-47	159	3.43 dias			
Fe-59	192, 1101, 1294	45 dias			
Lu-177	208	6.7 dias			
Th-233	299, 312	22 min ^{233}Th			
		27 dias Pa-233			
Cr-51	320	27.8 dias			
La-140	328, 816, 1600	40,2 hs.			

continua...

Tabela VI.2 - Continuação

ISÓTOPO	ENERGIA (KeV)	MEIA VIDA	TEMPO IRRADIAÇÃO	TEMPO ESFRIAMENTO	TEMPO CONTAGEM
Yb-175	396	101,0 hs.			
Br-82	556, 619, 777, 890, 1078, 1321, 1478	35.3 hs.			
Sb-124	604, 1695	60 dias			
Cs-134	797	2.05 anos			
Sc-46	1122	84 dias			
Co-60	1175, 1335	5,26 anos			
K-40	146A	$1,2 \times 10^9$ anos			

Tabela VI.3 - Análise Qualitativa da Amostra Padrão II

ISÓTOPO	ENERGIA (KeV)	MEIA VIDA	TEMPO IRRADIAÇÃO	TEMPO ESFRIAMENTO	TEMPO CONTAGEM
Yb-169	94	32 dias	24 hs.	10 dias	1000 seg.
Lu-177	113	6.7 dias			
Yb-175	114	101 horas			
Se-75	136	120 dias			
Hf-181	133	425 dias			
Yb-169	130	32 dias			
Ce-141	146	33 dias			
Fe-59	192, 1100, 1293	45 dias			
Th-233	299, 311	27 dias			
Eu-152	343	12.5 anos			
Ba-131	495	12 dias			
Sb-124	603, 169A	60 dias			
Cs-134	796	2.05 anos			
Mn-54	836	291 dias			

continua...

Tabela VI.3 - Continuação

ISÓTOPO	ENERGIA (KeV)	MEIA VIDA	TEMPO IRRADIAÇÃO	TEMPO ESFRIAMENTO	TEMPO CONTAGEM
Sc-46	889, 1121	84 dias			
Co-60	1174, 1334	5,26 anos			
K-40	1463	$1,2 \times 10^9$ anos			

AMOSTRA PADRAO I

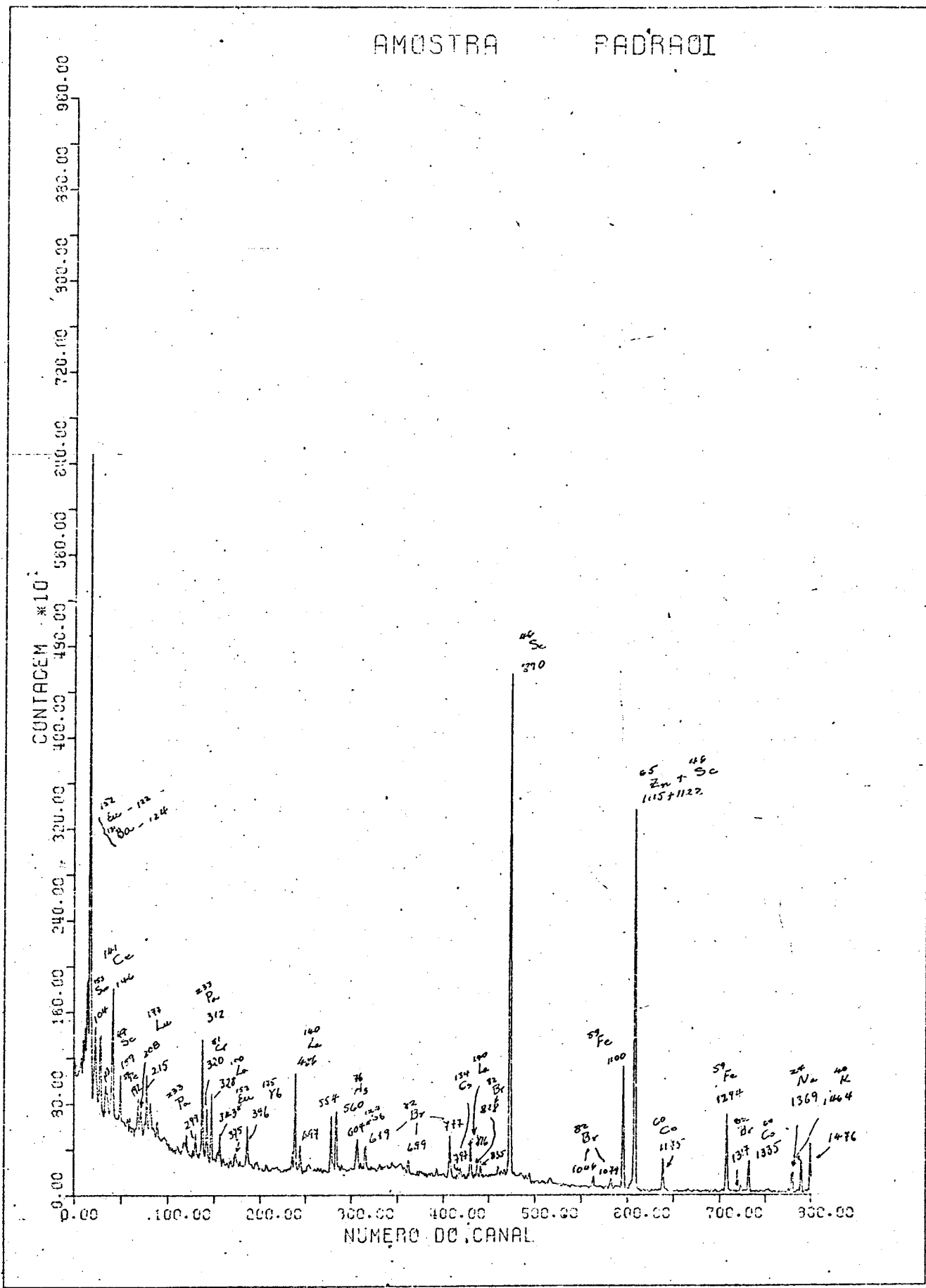


FIGURA VII Espectro Gama de Amostra Padrao I

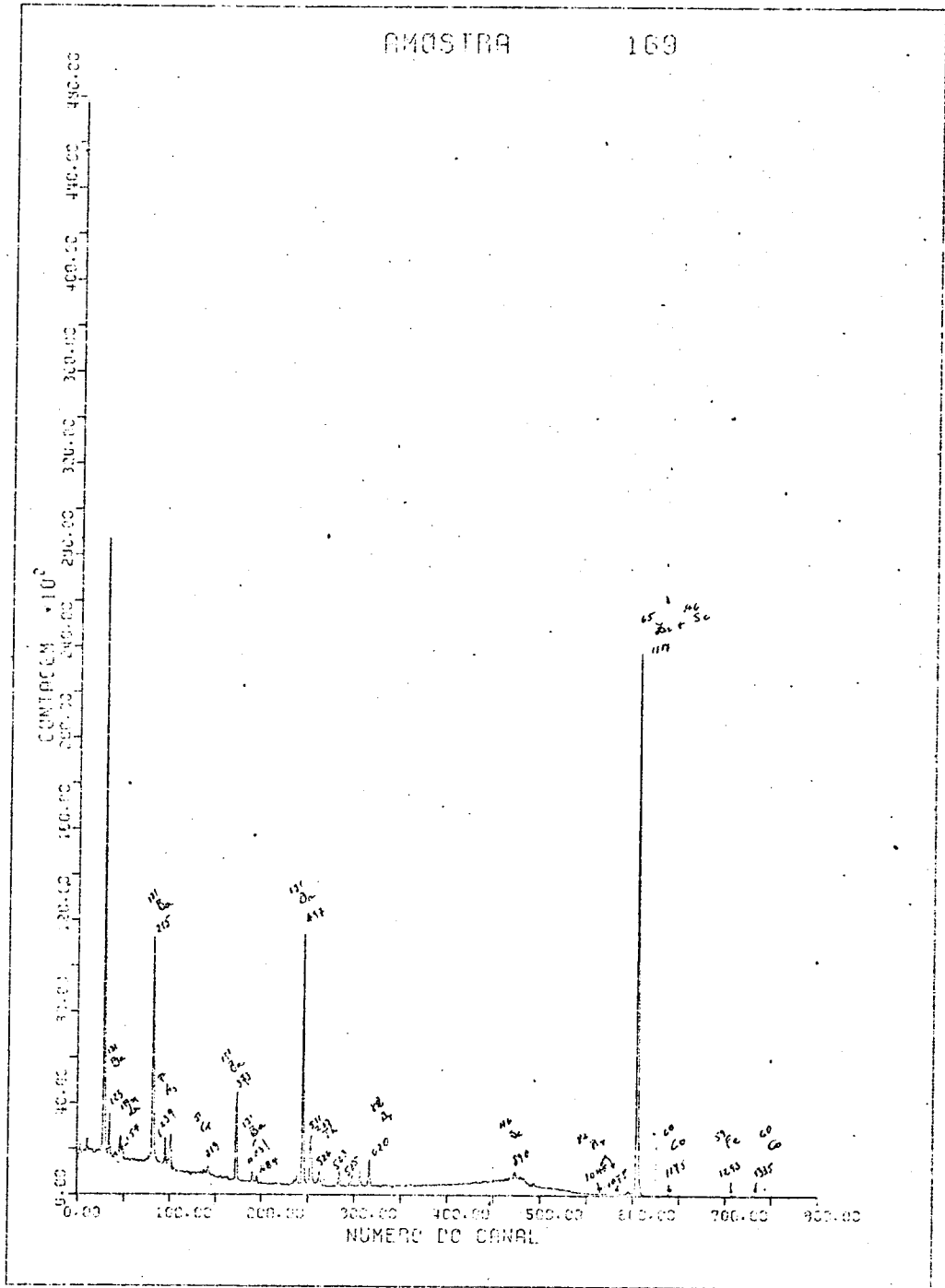


FIGURA VI-8 Espectro Gama de Amostra coletada em S. Cristóvão

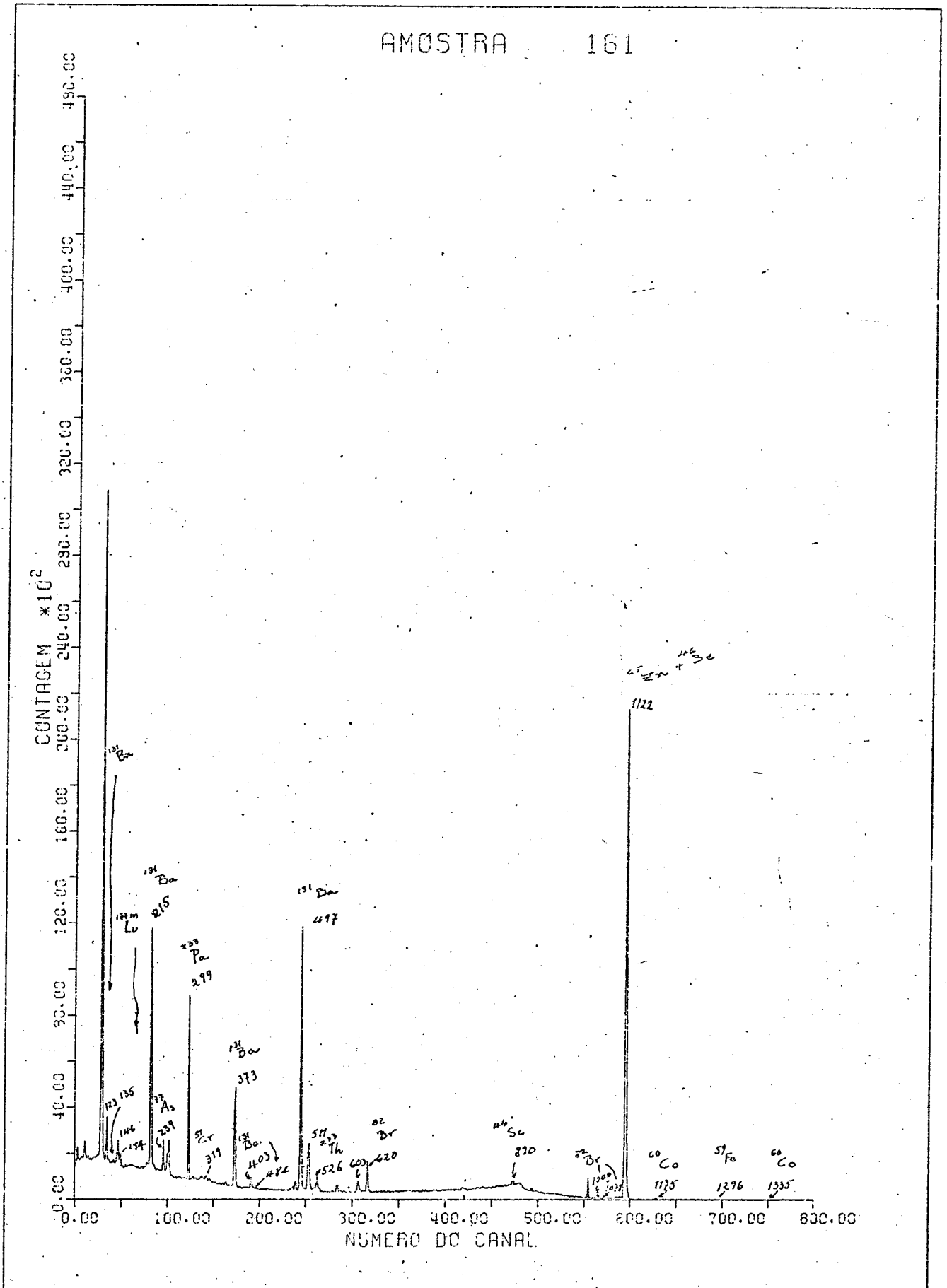


FIGURA VI-9 Espectro Gama de Amostra Coletada em S. Cristovão

Tabela VI.4 - Amostra 169

ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ngr/m ³	ERRO	ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ng/m ³	ERRO
Lu	-	-	Ba	0,8	0,06
Cr	10,2	1,3	Th	0,25	0,02
Eu	0,18	0,3	Sb	16,2	1,6
Br	215,0	6,4	Sc	0,9	0,009
Fe	1433,0	28,7	K	820	16,4

Data amostragem: 14/07/80 - Vazão = 3,95 l/min

Tabela VI.5 - Amostra 161

ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ng/m ³	ERRO	ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ng/m ³	ERRO
Lu	-	-	Ba	3,4	0,3
As	-	-	Hg	-	-
Cr	52	7,6	Th	0,5	0,04
Eu	0,2	0,004	Sb	87	5,2
Br	908	45,4	Sc	1,3	0,03
Fe	7847	627,7	K	1900	38

Data amostragem: 15/08/80 - Vazão = 4,1 l/min

Tabela VI.6 - Amostra 77

ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ng/m ³	ERRO	ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ng/m ³	ERRO
Yb	-	-	Ba	1,9	0,09
Sm	0,3	0,06	Br	504	25,2
Eu	0,5	0,05	-	-	-
Ce	7,5	0,7	Cs	1,2	0,1
Sc	2,2	0,09	K	580	17,4
Fe	2500	125	La	4,8	0,4
Lu	≈ 0,02	0,008	Sb	39	0,8
Th	1,8	0,2	Cr	26	4,4

Data de amostragem: 16/07/80 - Vazão = 4,05 l/min.

Tabela VI.7 - Amostra 73

ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ng/m ³	ERRO	ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ng/m ³	ERRO
Yb	-	-	Ba	2,5	0,35
Eu	0,04	0,004	Br	670	20,1
Ce	1,1	0,12	Cs	0,02	0,003
			K	330	19,8
Fe	955	9,5	La	1,2	0,05
Lu	-	-	Sb	19	1,7
Th	≈ 0,08	0,03	Cr	20	8

Data da amostragem: 16/07/80 - Vazão = 3,80 l/min.

Tabela VI.8 - Amostra 137S

ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ng/m ³	ERRO	ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ng/m ³	ERRO
Yb	-	-	Ba	3,0	0,2
Eu	0,05	0,02	Br	780	46,8
Cr	11	1,3			
Çe	0,72	0,09	Cs	-	
Fe	538	10,7	K	55	4,9
Lu	≈ 0,01	0,005	La	1,2	0,1
Th	-		Sb	27	2,7

Data de amostragem: 16/07/80 - Vazão = 3,90 l/min

Tabela VI.9 - Amostra 60

ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ngr/m ³	ERRO	ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ngr/m ³	ERRO
Yb	-	-	Ba	3,1	0,5
Eu	0,045	0,006	Br.	800	56
Cr	3,6	0,7	Cs	0,15	0,013
Ce	0,81	0,1	K	47,0	3,7
Fe	180	16,2	La	1,3	0,1
Lu	-	-	Sb	3,5	0,2
Th	-	-	-	-	-

Data da amostragem: 16/07/80 - Vazão = 3,85 l/min

Tabela VI.10 - Amostra 45

ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ngr/m ³	ERRO	ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ngr/m ³	ERRO
Ce	0,8	0,1	Eu	≈ 0,06	0,03
Fe	3800	114,0	Ba	3,2	0,44
Lu	-	-	Yb	-	-
Th	≈ 0,08	0,04	Hf	-	-
Cr	33	4,9	Br	844	8,4
La	1,7	0,2	Sb	5,5	0,3
			Cs	0,81	0,08
Sc	1,5	0,03	K	750	82,5

Data de amostragem: 17/07/80 - Vazão = 3,85 ℓ/min

Tabela VI.11 - Amostra 70

ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ngr/m ³	ERRO	ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ngr/m ³	ERRO
Yb	-	-	Th	1,4	0,21
			Ba	2,3	1,15
Sm	0,4	0,07	Br	612	67,3
Eu	0,1	0,02	Cs	1,62	0,5
Ce	8,5	2,5	K	1600	44,0
Sc	3,2	2,16	La	5,5	0,8
Fe	3228	193,7	Sb	88,4	3,5
Lu	-	-	Cr	36	21,6

Data de amostragem: 17/07/80 - Vazão = 4,10 ℓ/min

Tabela VI.12 - Amostra 166

ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ngr/m ³	ERRO	ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ngr/m ³	ERRO
Yb	-	-	Cs	1,7	0,2
Ce	3,2	0,6			
Th	0,32	0,09	Sc	1,1	0,02
Eu	0,08	0,04	K	1380	41,4
Ba	33	13,2	Fe	8700	78,3
Sb	74	8,2	Sm	1,6	0,29

Data de amostragem: 17/07/80 - Vazão = 4,05 l/min

Tabela VI.13 - Amostra 120S

ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ngr/m ³	ERRO	ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ngr/m ³	ERRO
Yb	0,04	0,014	Cs	1,1	0,12
Ce	0,85	0,18	Sc	0,81	0,02
Th	2,1	0,25	K	650	58,5
Eu	2,1	0,76	Fe	4820	159,1
Ba	92	34,9	Sm	5,1	0,63
Sb	62	5,6			

Data de amostragem: 17/07/80 - Vazão = 3,9 l/min

Tabela VI.14 - Amostra 56

ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ngr/m ³	ERRO	ELEMENTO	CONCENTRAÇÃO ngr/m ³	ERRO
Yb	-	-	Th	1,4	0,31
Sm	0,4	0,062	Ba	2,3	0,36
Eu	0,1	0,032			
Ce	8,5	0,93	Cs	0,66	0,09
Sc	3,2	0,0064	K	1600,0	52,8
Fe	3228,0	64,6	La	5,5	0,5

Data de amostragem: 18/07/80 - Vazão = 3,85 l/min

CAPÍTULO VIICOMENTÁRIOS

As tabelas V-8 à V-12 apresentam as concentrações de três elementos Br, Na e Cl encontrados na atmosfera, em cinco áreas diferentes. Dentro dos limites da precisão do método, os resultados não diferem dos medidos em outras cidades com características similares ⁽³¹⁾ as do Rio de Janeiro, exeto no caso do Cl que apresenta concentrações relativamente baixas. Condições meteorológicas como o vento (cuja velocidade e direção não foram observadas) e humidade, etc., podem ter grande influencia na coleta de particutados.

Tomando o Br, como elemento para comparar os dois métodos empregados, encontramos 180 mg/m^3 na amostra "São Cristovão" pelo método Absoluto, e 215 ng/m^3 na amostra "161" pelo método Comparativo.

É interessante observar que o quociente Cl/Na, para ambos elementos com influencia marina, permanecem mais ou menos constantes em várias áreas estudadas. Ver Tabela VII.2.

Num exame geral das Tabelas VI-4 à VI-14 encontram-se concentrações altas para Fe, Cr e Br em algumas das amostras analisadas pelo método comparativo. Este fato podemos explicar pela proximidade de industrias metalúrgicas (e outras industrias) que enriquecem as concentrações de Fe e Cr, por exemplo, na zona de São Cristovão. Elementos como Br, Sm e outros cujas fontes de poluição são os veículos movidos por combustíveis derivados de petróleo, são encontrados em maiores con

centrações na zonas de maior tráfego de veículos.

Uma maneira de avaliar a influência das zonas industriais é estudar a razão Cr/Fe, como pode ser visto na tabela VII-1. Segundo esses resultados poderíamos chamar de zonas de influência industrial às zonas das que procedem as amostras 45, 70, 1205 e 56; isto é, Palácio de Justiça e Maracanã.

É mostrada também a dependência Br/Fe na Tabela VII.1.

Tabela VII.1 - Valores comparativos para Fe

AMOSTRA	ZONA INDUSTRIAL			ZONA SEMI-INDUSTRIAL		ZONA URBANA		
	169	161	166	45	70	73	1375	60
Cr/Fe $\times 10^{-3}$	7,1	6,6	-	8,6	8,4	20,9	16,0	21,8
Br/Fe	0,15	0,12	-	0,22	0,18	0,70	1,4	0,60

Tabela VII.2 - Valores comparativos para Cl e Na

AMOSTRA	ILHA DO GOVERNADOR	SÃO CRISTOVÃO	CENTRO	MEIER	BONSUCESSO
Cl/Na	≈ 0,14	0,06	≈ 0,3	0,3	0,2

CAPÍTULO VIIICONCLUSÕES

Do método absoluto pode-se dizer:

A análise das amostras evidenciou que vários elementos podem ser medidos simultaneamente numa amostra complexa, sem necessidade de qualquer separação química.

Para a determinação quantitativa desses elementos (Na, Cl, Br) duas variáveis foram importante, a grande seção de choque do elemento e a abundante massa acumulada no filtro. O aumento do tempo de irradiação e o uso de fluxos mais altos a fim de melhorar a sensibilidade do método, determinará o incremento das atividades dos elementos no próprio filtro (branco), produzindo-se maior número de interferências.

Sempre que for possível é aconselhável a construção de curvas de calibração experimentais com fontes padrão que reproduzam a geometria amostra-detector.

A monitorização do fluxo de nêutrons é sempre necessária para evitar maior imprecisão do método.

Demos destacar que esforços tem sido feito por vãrios autores, na utilização deste método afim de melhorar a precisão dos resultados.

Do método de comparador pode-se afirmar:

O método provou ser rápido, simples e de precisão razoável boa para os elementos analisados; porém, precisa - se fluxos altos para conseguir boa sensibilidade.

A presença de Na nos espectros gama deve-se a existência desse elemento no filtro.

A utilização de comparadores (padrões) neste método, dá uma vantagem sobre os métodos absolutos no que respeita à precisão; mas, precisa-se levar em conta que os padrões devem ser confeccionados especialmente para poder ser submetidos a altos fluxos espectroscópicos.

No que respeita aos valores encontrados para alguns elementos (por exemplo amostras 1375 e 73), verificamos que as suas concentrações variam com o dia da coleta, apesar de serem coletados pelo mesmo processo e no mesmo local; no entanto, verifica-se também que a razão Cr/Fe permanece aproximadamente constante (≈ 18).

APÉNDICE I

FORMALISMO DE WESTCOTT

APENDICE IFORMALISMO DE WESTCOTT

O formalismo de Westcott considera o espectro de neutrons como a soma de duas componentes; uma distribuição maxwelliana na região t ermica, e uma distribui o 1/E na regi o intermedi ria. Estas duas componentes est o relacionadas entre si, por meio de uma fun o do tipo degrau, denominada Δ , definida por:

$$\Delta = \begin{cases} 1 & \text{para } E_c > \mu KT \\ 0 & \text{para } E_c < \mu KT \end{cases} \quad (1)$$

onde:

μ = e uma constante escolhida de modo a ajustar a fun o ao caso real,

E_c = fun o de corte.

Assim a densidade de neutrons pode-se escrever, como a soma de duas componentes ligadas pela fun o Δ .

$$n(V) = n_M \psi_M(V) + n_I \Delta \psi_I(V) \quad (2)$$

onde:

$n = \int_0^{\infty} n(V) dV$ densidade de neutrons total;

$n_M = n(1-f)$ densidade de neutrons maxwelliana;

n_I = densidade de neutrons epitêrmicos;

f = fração de neutrons intermediários;

ψ_n = função de distribuição da densidade de neutrons na região maxwelliana;

ψ_I = função de distribuição da densidade de neutrons na região intermediária.

onde ψ_n e ψ_I são funções normalizadas.

$$\int_0^{\infty} \psi_M(V) dV = \int_0^{\infty} \Delta\psi_I(V) dV$$

sendo que:

$$\psi_n = \frac{4}{\pi^{1/2}} \frac{V^2}{V_T^3} e^{-(V/V_T)^2}$$

$$\psi_I = V_T \mu^{1/2} V^{-2}$$

Portanto, a densidade de neutrons fica:

$$n(V) = n(1-f) \frac{4}{\pi^{1/2}} \frac{V^2}{V_T^3} e^{-(V/V_T)^2} + n f \Delta \frac{V_T}{V} \mu^{1/2} \quad (3)$$

Da equação III.1.a, a taxa de reação, pode ser expressada por:

$$R = N \left[n(1-f) \int_0^\infty \frac{4}{\pi^{1/2}} \frac{V^3}{V_T^3} e^{-(V/V_T)^2} \sigma(V) d(V) + \right. \\ \left. + n f V_T \mu^{1/2} \int_0^\infty \frac{\Delta}{V} \sigma(V) dV \right]$$

separando a parte intermediária tem-se:

$$R = N \left[n \int_0^\infty \frac{4}{\pi^{1/2}} \frac{V^3}{V_T^3} e^{-(V/V_T)^2} \sigma(V) dV + \right. \\ \left. + n f (V_T \mu^{1/2} \int_0^\infty \frac{\Delta}{V} \sigma(V) dV - \int_0^\infty \frac{4}{\pi^{1/2}} \frac{V^3}{V_T^3} e^{-(V/V_T)^2} \sigma(V) dV) \right] \quad (4)$$

Se o espectro \bar{e} puramente maxwelliano, a fração de neutrons intermediários f \bar{e} zero.

A relação (6) fica:

$$R = N n \int_0^\infty \frac{4}{\pi^{1/2}} \frac{V^3}{V_T^3} e^{-(V/V_T)^2} \sigma(V) dV$$

E para simplificar, colocamos da seguinte forma:

$$R = N n V_0 \bar{\sigma}_m$$

onde $\bar{\sigma}_m$ é chamada seção de choque efetiva de Maxwell.

Westcott define um fator de correção g chamado desvio da lei $1/V$ na região Maxwelliana, dado por

$$g = \frac{\bar{\sigma}_m}{\sigma_0} = \frac{1}{V_0 \sigma_0} \int_0^{\infty} \frac{4}{\pi^{1/2}} \frac{V^3}{V_T^3} e^{-(V/V_T)^2} \sigma(V) dV \quad (5)$$

Novamente voltamos a relação (4), mais utilizando do esses novos parâmetros

$$R = N \left[n V_0 \bar{\sigma}_m + n f \left\{ V_T \mu^{1/2} \int_0^{\infty} \frac{\Delta}{V} \sigma(V) dV - V_0 \bar{\sigma}_m \right\} \right]$$

Aqui definimos uma seção de choque efetiva $\bar{\sigma}$, dada por:

$$\bar{\sigma} = g \sigma_0 + \frac{f \mu^{1/2} V_T}{V_0} \int_0^{\infty} \left[\sigma(V) - \frac{V_0 \bar{\sigma}_m}{V} \right] \frac{\Delta dE}{E}$$

De tal maneira que a taxa de reação, pode ser escrita como:

$$R = N n V_0 \bar{\sigma}$$

Aplicando a função Δ temos, $\Delta = 1$ para $E_c > \mu KT$; se reduz a:

$$R = N n V_0 \bar{\sigma}_m$$

onde $\bar{\sigma}_m$ é chamada seção de choque efetiva de Maxwell.

Westcott define um fator de correção g chamado desvio da lei $1/V$ na região Maxwelliana, dado por

$$g = \frac{\bar{\sigma}_m}{\sigma_0} = \frac{1}{V_0 \sigma_0} \int_0^{\infty} \frac{4}{\pi^{1/2}} \frac{V^3}{V_T^3} e^{-(V/V_T)^2} \sigma(V) dV \quad (5)$$

Novamente voltamos a relação (4), mais utilizando do esses novos parâmetros

$$R = N \left[n V_0 \bar{\sigma}_m + n f \left\{ V_T \mu^{1/2} \int_0^{\infty} \frac{\Delta}{V} \sigma(V) dV - V_0 \bar{\sigma}_m \right\} \right]$$

Aqui definimos uma seção de choque efetiva $\bar{\sigma}$, dada por:

$$\bar{\sigma} = g \sigma_0 + \frac{f \mu^{1/2} V_T}{V_0} \int_0^{\infty} \left[\sigma(V) - \frac{V_0 \bar{\sigma}_m}{V} \right] \frac{\Delta dE}{E}$$

De tal maneira que a taxa de reação, pode ser escrita como:

$$R = N n V_0 \bar{\sigma}$$

Aplicando a função Δ temos, $\Delta = 1$ para $E_c > \mu KT$; se reduz a:

$$\bar{\sigma} = g\sigma_0 + \frac{f \mu^{1/2} v_T}{V_0} \int_0^\infty \left[\sigma(V) - \frac{V_0 \bar{\sigma}_m}{V} \right] \frac{dE}{E} \quad (6)$$

Definimos uma nova fração de neutrons intermediários r dado por

$$r = \frac{f(\mu\pi)^{1/2}}{\Delta} \quad (7)$$

Também define-se outro fator "s" chamado desvio da lei $1/V$ na região intermediária, e dado pela expressão:

$$s = \frac{1}{\sigma_0} \left(\frac{4T}{\pi T_0} \right)^{1/2} \int_{\mu KT}^\infty \left(\sigma(V) - \frac{V_0 \bar{\sigma}_m}{V} \right) \frac{dE}{E} \quad (8)$$

que também pode se escrever:

$$s = \sqrt{\frac{4T}{\pi T_0}} \cdot \frac{I'_0}{\sigma_0} \quad (9)$$

onde:

$$I'_0 = \int_{\mu KT}^{E_{cd}} \left(\sigma(E) - g\sigma_0 \sqrt{\frac{E_0}{E}} \right) \frac{dE}{E} + \int_{E_{cd}}^{E_{max}} \left(\sigma(E) - g\sigma_0 \sqrt{\frac{E_0}{E}} \right) \frac{dE}{E} \quad (10)$$

Colocando:

$$S_1 = \sqrt{\frac{4T}{\pi T_0}} \cdot \frac{1}{\sigma_0} \int_{KT}^{E_{cd}} (\sigma(E) - g \sigma_0 \sqrt{\frac{E_0}{E}}) \frac{dE}{E} \quad (11)$$

onde:

E_{cd} = energia de corte do cádmio

Resumindo, a seção de choque efetiva $\hat{\sigma}$ engloba duas partes a maxwelliana dada por $\sigma_0 g$ e contribuição do fluxo intermediário dado por $\sigma_0 rs$.

De maneira que a taxa de reação é expressada por

$$R = N n V_0 \sigma_0 (g + rs) \quad (12)$$

ou

$$R = N n V_0 \sigma_0 (g + r \sqrt{4T/\pi T_0} \cdot I_0' / \sigma_0) \quad (13)$$

b - Fórmulas envolvidas na Determinação do Fluxo Térmico

O espectro de nêutrons em um reator nuclear pode ser descrito aproximadamente por uma distribuição Maxwelliana (22)

$$n(v) = \frac{4nv^2}{v_T^3 (\pi)^{1/2}} e^{-(v/v_T)^2}$$

onde:

$n(v)$ = é a densidade de nêutrons;

v_T = velocidade do nêutron tendo energia KT .

Nota-se que v_0 (2200 m/s), é a velocidade do nêutron de energia kT_0 , onde $T_0 = 293,69K$.

O fluxo é definido pela quantidade:

$$\int_0^{\infty} n(v) \cdot v dv = n\bar{v} ;$$

que seria o fluxo na temperatura real do meio moderador, onde \bar{v} é a velocidade média dos nêutrons.

No caso de ter-se um material com uma seção de choque puramente "1/v", podemos ter:

$$\sigma = \frac{\sigma_0 v_0}{v} \quad (14)$$

A taxa de reação da equação (III.1.a), ficaria:

$$R_A = N \int_0^{\infty} \sigma_0 v_0 n(v) dv = N n v_0 \sigma_0$$

onde: $v_0 = 2200$ m/s e $(2200 \text{ m/s}) = \sigma_0$.

para um espectro maxwelliano, temos:

$$\bar{v} = 2v_T / \sqrt{\pi} = v_0 \left(\frac{4T}{\pi T_0} \right)^{1/2} \quad (15)$$

desde que:

$$v_T = v_0 \left(\frac{T}{T_0} \right)^{1/2}$$

Assim, o fluxo térmico, estaria dado por:

$$\phi_{th} = n v_0 \left(\frac{T}{T_0} \right)^{1/2} ;$$

$$\phi_{th} = \phi_0 \left(\frac{4T}{T_0} \right)^{1/2} \quad (16)$$

onde:

ϕ_0 = é chamado o "fluxo 2200 m/seg", ou fluxo " $n v_0$ ".

APÊNDICE II

PROGRAMA PARA CALCULAR AS
ÁREAS DOS FOTOPICOS

```

S RESET FREE
  DIMENSION Y(1000),YB(1000),YD(1000),YL(1000),T(1000)
  DIMENSION W(3),Z(2),IMAT(1000),JMAT(1000),SUMC(1000),SUMQ(1
000)
  DIMENSION VET(1000),IO(1000),YC(1000),YS(1000),X(1000)
  DIMENSION V(10),U(10),G(10),A(10),XX(10),YY(10),CMTRIX(10,1
0)
  DIMENSION LEFOT(1000),LAFOT(1000),EF(1000)
  DIMENSION BASE(1000),ARC(1000),AFOT(1000)
C
C---- ENTRADA COM "NPT" NUMERO DE PONTOS E "NBUFF" NUMERO DE TERM
OS
C
  READ(7,/) NPT,NBUFF
  WRITE(6,3)
  3 FORMAT(5X,'NO. PONTOS E NO. DE TERMOS')
  WRITE(6,4) NPT,NBUFF
  4 FORMAT(3X,2I10)
  READ(7,/) (V(I),I=1,NPT)
C
C--- "U" EFICIENCIA DO DETECTOR
C
  READ(7,/) (U(I),I=1,NPT)
C
C--- "G" DESVIO PADRAO CADA PONTO
C
  READ(7,/) (G(I),I=1,NPT)
  WRITE(6,8)
  8 FORMAT(/////7X,'ENERG.',4X,'LOG(EF)',3X,'D.PADRAO')
  WRITE(6,9) (V(I),U(I),G(I),I=1,NPT)
  9 FORMAT(3X,3F10.2)
  MCTL = 2
C
C-----"N" NUMERO DE CANAIS ---
C
  N=1000
  READ(5,11) (Y(I),I=1,N)
  WRITE(6,15) N
  11 FORMAT(10I6)
  15 FORMAT(/////10X,'?',33H *INTERVALO DE DADOS 0....PARA.. ,14
)
  READ(5,40) WZ,(W(J),J=1,2)
  READ(5,45) (Z(J),J=1,2)
  45 FORMAT(2F12.8)
  40 FORMAT(3F12.8)
C----"M" O NUMERO DE VEZES QUE SAO SUAVISADOS OS PONTOS--
  READ(5,50) M
  50 FORMAT(I3)
  X(1)=1
  DO 51 JJ=2,1000
  X(JJ)=X(JJ-1) +1
  51 CONTINUE
  DO 70 I=1,N
  70 IF(Y(I).LT.0.) Y(I)=-Y(I)

```

```

WRITE(6,55) M
55 FORMAT(///,26H NUMERO DE INTERACOES = ,I3)
DO 20 I=1,N
20 T(I)=Y(I)
DO 60 I=1,2
C-----OS DOIS PRIMEIROS CANAIS NAO SAO SUAVISADOS--
60 YB(I)=Y(I)
L=N-1
C-----OS DOIS ULTIMOS CANAIS NAO SAO SUAVISADOS--
DO 75 I=L,N
75 YB(I)=Y(I)
80 L=N-2
C----- INICIA O PROCESSO DE SUAVIZACAO
C----- YB(I)=YB(I) + W(J)*(Y(I-J) + Y(I+J))-----
C
DO 90 I=3,L
YB(I)=WZ*Y(I)
DO 90 J=1,2
IMJ=I-J
IPJ=I+J
90 YB(I)=YB(I)+W(J)*(Y(IMJ)+Y(IPJ))
IF(M.EQ.1) GO TO 132
DO 110 I=1,N
110 Y(I)=YB(I)
M=M-1
GO TO 80
DO 131 I=1,N
131 Y(I)=T(I)
C-----SAIDA DOS DADOS SUAVISADOS---
132 WRITE(6,111) YB
111 FORMAT(1H1/(1H ,10I6))
DO 114 I=1,N
114 IF(YB(I).LT.0.) YB(I)=-YB(I)
WRITE(6,120)
120 FORMAT('1',20X,30H IMPRESAO DOS DADOS SUAVISADOS)
JJ=1
DO 211 I=10,N,10
WRITE(6,121) X(JJ),(YB(K),K=JJ,I)
121 FORMAT(2X,I4,10(1X,I6))
JJ=I+1
211 CONTINUE
C
C-----A PRIMEIRA DERIVADA EM CADA PONTO (OS DOIS PRIMEIROS CANAIS
NEM
C----- OS DOIS ULTIMOS CANAIS ENTRAM NO PROCESSO)---
C
CALL DERY(YB,YD,Z,N)
WRITE(6,142)
142 FORMAT('1',20X,'PRIMEIRA DERIVADA SUAVIZADA')
JJ=1
DO 225 I=10,N,10
WRITE(6,150) X(JJ),(YD(K),K=JJ,I)
150 FORMAT(2X,I4,10(1X,I6))
JJ=I+1

```



```

225 CONTINUE
    IL=0
    NN=N-2
    DO 280 I=3,NN
    IF(YD(I).GE.0.) GO TO 280
    IF(YD(I+1).LT.0.0) GO TO 280
    IL=IL+1
    IMAT(IL) = I
280 CONTINUE
    IJ=0
    DO 801 J=1,IL
    L1=IMAT(J) -2
    L2=IMAT(J)+2
250 BASE(J)=2.0*(YB(L1) + YB(L2))
    SUMC(J)=0.0
    L3=IMAT(J) + 1
    DO 230 L=L1,L3
230 SUMC(J)=SUMC(J)+ YB(L)
    SUMQ(J) =0.0
    DO 240 L=L1,L2
240 SUMQ(J)=SUMQ(J)+YB(L)
    SUMR(J) =SQRT(SUMQ(J))
    ARC(J)=SUMC(J) - BASE(J)
    VET(J)=ARC(J)-SUMQ(J)
    IF(VET(J).LE.0.0)GO TO 801
    IJ=IJ+1
    JMAT(IJ)=J
801 CONTINUE
    DO 810 K=1,IJ
    IO(K) = IFIX(IMAT(JMAT(K))+YD(IMAT(JMAT(K))))
    1/(YD(IMAT(JMAT(K))) - YD(IMAT(JMAT(K))+1)))
810 CONTINUE
    READ(13,815) METODO,ECANAL
815 FORMAT(13,F10.4)
    IF(METODO)314,790,318
314 DO 315 K=1,IJ
315 LEFOT(K)=IFIX(ECANAL*IO(K))
    WRITE(6,233)
233 FORMAT('1',2X,'POSICAO DO FOTOPICO=',3X,
1'ENERG.FOTOPICO')
    WRITE(6,235) (IO(K),LEFOT(K),K=1,IJ)
235 FORMAT(10X,15,10X,15)
318 CALL AJT(V,U,NPT,NBUFF,MCTL,A,TSSB,G)
    WRITE(6,47)
47 FORMAT(//,3X,'TERMOS DO POLINOMIO AJUSTADO DE GRAU DOIS')
    WRITE(6,48) (A(L),L=1,NBUFF)
48 FORMAT(3E15.4)
    WRITE(6,52) TSSB
52 FORMAT(///20X,'CHI-QUADRADO=',1X,F10.4)
    DO 239 K=1,IJ
239 LAFOT(K)=IFIX(ECANAL*IO(K))
    DO 241 K=1,IJ
241 AFOT(K)=ECANAL*(FLOAT(IO(K)))
    DO 227 K=1,IJ

```

```

227 EF(K)= 1./(EXP(A(1)+A(2)*AFOT(K)
      +A(3)*(AFOT(K)**2))
      WRITE(6,222)
222 FORMAT('1',3X,'POSICAO-FOTOPICO',3X,'ENERG.(KEV) ',
      13X,'EFICIENCIA')
      WRITE(6,234)(IC(K),LAFOT(K),EF(K),K=1,IJ)
234 FORMAT(6X,15,16X,15,E10.2)
530 K=1
535 K=K+1
500 II=0
510 JJ=0
515 I=0
520 I=I+1
540 LO=JO(K)
550 IF(YB(I).NE.YB(LO)) GO TO 520
      II=II+1
560 I=I-1
C
C---- COMPARAR SE A DIFERENCIA ENTRE DOIS CANAIS ADJACENTES E MEN
UR
C---- QUE O DESVIO PADRAO DA MEDIDA
C
      IF(YB(I-1).LT.(YB(I)-SQRT(YB(I)))) GO TO 560
C-----CANTO INICIAL DO FOTOPICO "I1"
      I1=I
      R1=((FLOAT(I1))+0.5)
570 I=I+1
      IF(YB(I).LT.YB(I-1)) GO TO 570
      I=I+2
580 I=I+1
      IF(YB(I+1).LT.(YB(I)-SQRT(YB(I)))) GO TO 580
      JJ=JJ+1
C-----CANTO FINAL DO FOTOPICO "I2"
      I2=I
      BRC= YB(LO)/YB(I1)
      TS=FLOAT(I2-I1)/2.
      AW=2.*(TS-0.5)
C---- MINIMO VALOR PARA QUE O FOTOPICO EXCEDA AO BACKGROUND
C--- EM 30% (TEST PARA REJEITAR FOTOPICO ***SE BGRD*NEGATIVO
C--- O PICO NAU E CONSIDERADO)
      BRCH=BRC - 1.3
      WRITE(6,604)
604 FORMAT(///6X,'I1',7X,'I2',5X,'BGRD<..?',6X,'FHTI')
      WRITE(6,606) I1,I2,BRCH,AW
606 FORMAT(6X,15,3X,15,F11.2,F13.1)
610 SAP=0.
      DO 650 I=I1,I2
650 SAP=SAP+YB(I)
      BKBASE=YB(I1)+YB(I2)
      FTT=(I2-I1)/2.
      BGRD=BKBASE*FTT
      AREAT= SAP-BGRD
      SIGMAT=SQRT(SAP+BGRD)/AREAT
      WRITE(6,680)

```

```
680 FORMAT(52X,'AREA FINAL',7X,'ERRO')
WRITE(6,690) AREAT,SIGMAT
690 FORMAT(51X,F8.2,3X,F10.3)
KL=IJ-1
IF(K.NE.KL) GO TO 535
790 STOP
END
```

C-----CALCULA A PRIMEIRA DERIVADA SUAVIZADA EM CADA PONTO.

C

```
SUBROUTINE DERV(YB,YD,Z,N)
DIMENSION YB(1),YD(1),Z(2)
DO 2 I=1,2
2 YD(I) = YB(I)
L = N-1
DO 3 I= L,N
3 YD(I)=YB(I)
L = N-2
DO 4 I= 3,L
DO 4 J= 1,2
IMJ = I-J
IPJ = I+J
4 YD(I) = Z(J)*(YB(IPJ)-YB(IMJ))
RETURN
END
```

```

C
C-----AJUSTE DA CURVA DE EFICIENCIA DO DETETOR
C-----A UM POLINOMIO-(DE GRAU=NBUFF) PELO METODO DOS
C----- MINIMOS CUADRADOS
C
C-----"V" PONTOS DA VARIABEL INDEPENDENTE
C-----"U" PONTOS DA VARIABEL DEPENDENTE
C-----"G" ...DESVIO PADRAO DE CADA PONTO "U"
C-----"NPT" NUMERO DE PARES DE PONTOS
C-----"NBUFF" NUMERO DE COEFICIENTES
C-----"MCTL" DETERMINA O "PESO" NA VARIABEL DEPENDENTE
C          POSITIVO(ERRO INSTRUMENTAL)=1./G**2
C          ZERO..PESO=1.
C          NEGATIVO(ERRO ESTADISTICO)=1./U
C-----"TSSB" CHI-QUADRADO DO AJUSTE
C

```

```

SUBROUTINE AJT (V,U,NPT,NBUFF,MCTL,A,TSSB,G)
DIMENSION V(1),U(1),A(1),G(1)
DIMENSION XX(19),YY(10),CMTRIX(10,10)
30 CONTINUE
11 LONG = 2*NBUFF- 1
DO 13 N = 1, LONG
13 XX(N)=0.
DO 15 J =1,NBUFF
15 YY(J) = 0.
TSS = 0.
21 DO 50 I=1,NPT
VI=V(I)
UI=U(I)
31 IF(MCTL) 32,37,39
32 IF(UI) 35,37,33
33 PESO = 1./UI
GO TO 41
35 PESO= 1./(-UI)
GO TO 41
37 PESO = 1.
GO TO 41
39 PESO = 1./G(I)**2
41 XVAL = PESO
DO 44 N=1, LONG
XX(N) = XX(N) + XVAL
44 XVAL = XVAL*VI
45 YVAL = PESO*UI
DO 48 N=1,NBUFF
YY(N) = YY(N) + YVAL
48 YVAL = YVAL*VI
49 TSS = TSS + PESO*UI**2
50 CONTINUE
51 DO 54 J=1,NBUFF
DO 54 K=1,NBUFF
N = J + K -1
54 CMTRIX(J,K) = XX(N)
DELTA = DET(CMTRIX,NBUFF)
IF(DELTA) 61,57,61

```

```
57 TSSB = 0.  
DO 59 J = 1, NBUFF  
59 A(J) = 0.  
GO TO 80  
61 DO 70 L=1, NBUFF  
62 DO 66 J=1, NBUFF  
DO 65 K=1, NBUFF  
N = J + K - 1  
65 CMTRIX(J,K) = XX(N)  
66 CMTRIX(J,L) = YY(J)  
70 A(L) = DET(CMTRIX, NBUFF)/DELTA  
71 DO 75 J=1, NBUFF  
TSS = TSS - 2.*A(J)*YY(J)  
DO 75 K=1, NBUFF  
N = J + K - 1  
75 TSS = TSS + A(J)*A(K)*XX(N)  
76 GRADL = NPT - NBUFF  
77 TSSB = TSS/GRADL  
80 RETURN  
END
```

```

FUNCTION DET(CMTRIX,NBUFF)
DIMENSION CMTRIX(10,10)
10 DET = 1.
11 DO 50 K = 1,NBUFF
IF(CMTRIX(K,K)) 41,21,41
21 DO 23 J = K,NBUFF
IF(CMTRIX(K,J)) 31,23,31
23 CONTINUE
DET = 0.
GO TO 60
31 DO 34 I=K,NBUFF
SATE = CMTRIX(I,J)
CMTRIX(I,J) = CMTRIX(I,K)
34 CMTRIX(I,K) = SATE
DET = -DET
41 DET = DET*CMTRIX(K,K)
IF(K=NBUFF) 43,50,50
43 K1 = K + 1
DO 46 I=K1,NBUFF
DO 46 J=K1,NBUFF
46 CMTRIX(I,J) = CMTRIX(I,J) - CMTRIX(I,K)*CMTRIX(K,J)/CMTRIX(
K,K)
50 CONTINUE
60 RETURN
END

```

APÉNDICE III

PROGRAMAS PARA PLOTAR OS ESPECTROS GAMA


```

$ SET AUTOBIND
$ BIND = FROM PLOTTER
FILE 3(KIND = TAPE,BLOCKSIZE = 83)
$ INCLUDE "*PLOTTER/BLOCO"
  DIMENSION Y(11),X(11),Z(11),TITLE(6)
  READ(5,/)NTITLE
  WRITE(6,/)NTITLE
  READ(5,1) (TITLE(I),I=1,6)
  WRITE(6,/) (TITLE(I),I=1,6)
  INIS=38
  X(1)=INIS
  READ(5,2) (Y(I),I=1,9)
  WRITE(6,2) (Y(I),I=1,9)
  READ(5,7) (Z(I),I=1,9)
  WRITE(6,7) (Z(I),I=1,9)
  1 FORMAT(6A6)
  2 FORMAT(9I6)
  7 FORMAT(9I6)
  NPT = 9
  NPT1 = NPT + 1
  NPT2 = NPT + 2
  DO 30 J=2,NPT
  X(J) = X(J-1) + 1
30 CONTINUE
  CALL LIMITE (40,30)
  CALL PLOTS(3)
  CALL NOME (13,'CON31001','RUBEN')
  CALL FACTOR (1,7)
  COMPX =16.
  COMPY =24.
  WIDH = COMPX +4.
  SIMBA= 3.
  SIMBB=4.
  SIMRC=13.5
  SIMBD=13.5
  A = 7.
  B = 3.
  CALL PLOT (A,B,-3)
  C = -1.5
  D = -2.0
  CALL RECT(C,D,28,WIDH,0.,3)
  CALL SCALE(X,COMPX,NPT,1)
  CALL SCALE(Y,COMPY,NPT,1)
  CALL SCALE(Z,COMPY,NPT,1)
  CALL AXIS(0.,0.,'NUMERO DO CANAL',-15,COMPX,0.,X(NPT1),X(NP
T2),2)
  CALL AXIS(0.,0.,'CONTAGEM',8,COMPY,90.,Y(NPT1),Y(NPT2),2)
  CALL LINE(X,Y,NPT,1,-1,0)
  CALL LINE(X,Z,NPT,1,-1,11)
  CALL SYMBOL(SIMBA,25,0.4,TITLE,0,NTITLE)
  CALL SYMBOL(SIMBB,24.2,0.4,'PARA PICO COM BAXA ESTATISTICA'
,0,30)
  CALL SYMBOL(SIMRC,23,0.2,' DADOS ORIGINAIS',0,16)
  CALL SYMBOL(SIMBD,22.5,0.2,'*DADOS SUAVIZADOS',0,17)

```

CALL PLOT (0,0,999)
STOP
END

```

$ SET AUTOBIND
$ GIND = FROM PLOTTER
FILE 3(KIND = TAPE,BLOCKSIZE = 63)
$ INCLUDE "PLOTTER/BLOCO"
  DIMENSION Y(1002),X(1002),TITLE(3)
  READ(5,/) NTITLE
  WRITE(6,/) NTITLE
  READ(5,1) (TITLE(I),I=1,3)
  WRITE(6,1) (TITLE(I),I=1,3)
  READ(5,/) X(1)
  WRITE(6,/) X(1)
  READ(5,2) (Y(I),I=1,1000)
  WRITE(6,2) (Y(I),I=1,1000)
1  FORMAT(3A6)
2  FORMAT(10I6)
  NPT = 1000
  NPT1 = NPT + 1
  NPT2 = NPT + 2
  DO 30 J=2,1000
  X(J) = X(J-1) + 1
30 CONTINUE
  CALL LIMITE (40,30)
  CALL PLOTS(3)
  CALL NOME (13,'CON31001','RUBEN')
  CALL FACTOR (1.7)
  COMPX =NPT/50.
  COMPY =24.
  WIDH = COMPX + 4.
  SIMB = COMPX*(.4)
  A = 7.
  B = 3.
  CALL PLOT (A,B,-3)
  C = -1.5
  D = -2.0
  CALL RECT(C,D,28,WIDH,0.,3)
  CALL SCALE(X,COMPX,1000,1)
  CALL SCALE(Y,COMPY,1000,1)
  CALL AXIS(0.,0.,'NUMERO DO CANAL',-15,COMPX,0.,X(NPT1),X(NP
T2),2)
  CALL AXIS(0.,0.,'CONTAGEM',B,COMPY,90.,Y(NPT1),Y(NPT2),2)
  CALL LINE(X,Y,1000,1,0,4)
  CALL SYMBOL(SIMB,25,0.4,TITLE,0,NTITLE)
  CALL PLOT (0,0,999)
  STOP
  END

```

APÊNDICE IV

RESULTADOS DO PROGRAMA

AMOSTRA 77



I1 47	I2 53	BGRD<..? -0.03	FNTM 5.0	AREA FINAL 1377.83	ERRO 0.071
I1 66	I2 71	BGRD<..? -0.00	FNTM 4.0	AREA FINAL 1028.61	ERRO 0.085
I1 75	I2 80	BGRD<..? 0.22	FNTM 4.0	AREA FINAL 1209.27	ERRO 0.072
I1 97	I2 101	BGRD<..? -0.28	FNTM 3.0	AREA FINAL 545.81	ERRO 0.123
I1 123	I2 135	BGRD<..? -0.03	FNTM 6.0	AREA FINAL 211.42	ERRO 0.092
I1 135	I2 141	BGRD<..? 1.08	FNTM 5.0	AREA FINAL 1910.52	ERRO 0.081
I1 141	I2 145	BGRD<..? 0.17	FNTM 3.0	AREA FINAL 937.82	ERRO 0.065
I1 145	I2 151	BGRD<..? 0.72	FNTM 5.0	AREA FINAL 1909.72	ERRO 0.046
I1 155	I2 160	BGRD<..? -0.14	FNTM 4.0	AREA FINAL 552.93	ERRO 0.113
I1 178	I2 182	BGRD<..? -0.25	FNTM 3.0	AREA FINAL 350.10	ERRO 0.144
I1 184	I2 190	BGRD<..? 0.74	FNTM 5.0	AREA FINAL 912.32	ERRO 0.068

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO
NÚCLEO DE COMPUTAÇÃO ELETRÔNICA



11 237	12 243	BGRD<..? 1.65	FNTM 5.0	AREA FINAL 2006.71	ERRD 0.034
11 243	12 248	BGRD<..? 0.66	FNTM 4.0	AREA FINAL 709.45	ERRD 0.072
11 252	12 257	BGRD<..? -0.13	FNTM 4.0	AREA FINAL 345.53	ERRD 0.128
11 276	12 282	BGRD<..? 1.37	FNTM 5.0	AREA FINAL 1304.15	ERRD 0.050
11 282	12 288	BGRD<..? 1.82	FNTM 5.0	AREA FINAL 1701.53	ERRD 0.037
11 288	12 292	BGRD<..? -0.001	FNTM 5.0	AREA FINAL 312.15	ERRD 0.125
11 300	12 304	BGRD<..? -0.25	FNTM 5.0	AREA FINAL 295.53	ERRD 0.152
11 304	12 310	BGRD<..? 1.08	FNTM 5.0	AREA FINAL 959.31	ERRD 0.064
11 315	12 319	BGRD<..? 0.68	FNTM 5.0	AREA FINAL 863.41	ERRD 0.069
11 360	12 366	BGRD<..? -0.03	FNTM 5.0	AREA FINAL 454.79	ERRD 0.123
11 405	12 411	BGRD<..? 2.46	FNTM 5.0	AREA FINAL 1147.46	ERRD 0.047

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO
 NÚCLEO DE COMPUTAÇÃO ELETRÔNICA



11 411	12 415	BGRD<.?.? -0.16	FWTM 3.0	AREA FINAL 194.66	ERRO 0.193
11 415	12 421	BGRD<.?.? 0.27	FWTM 4.0	AREA FINAL 331.00	ERRO 0.133
11 428	12 434	BGRD<.?.? 1.20	FWTM 5.0	AREA FINAL 889.70	ERRO 0.058
11 435	12 440	BGRD<.?.? 0.35	FWTM 4.0	AREA FINAL 379.00	ERRO 0.121
11 440	12 452	BGRD<.?.? -0.10	FWTM 3.0	AREA FINAL 215.38	ERRO 0.121
11 459	12 464	BGRD<.?.? -0.03	FWTM 4.0	AREA FINAL 310.00	ERRO 0.125
11 470	12 477	BGRD<.?.? 29.28	FWTM 6.0	AREA FINAL 8059.20	ERRO 0.012
11 477	12 481	BGRD<.?.? 30.99	FWTM 3.0	AREA FINAL 331.43	ERRO 0.096
11 496	12 502	BGRD<.?.? -3.05	FWTM 3.0	AREA FINAL 153.13	ERRO 0.210
11 561	12 567	BGRD<.?.? 0.65	FWTM 5.0	AREA FINAL 320.48	ERRO 0.105
11 569	12 573	BGRD<.?.? -0.22	FWTM 3.0	AREA FINAL 90.01	ERRO 0.291

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO
NÚCLEO DE COMPUTAÇÃO ELETRÔNICA



I1 580	I2 585	BGRD<..? 0.10	FNTM 4.0	AREA FINAL 155.65	ERRO 0.186
I1 593	I2 599	BGRD<..? 19.85	FNTM 5.0	AREA FINAL 1991.43	ERRO 0.024
I1 605	I2 612	BGRD<..? 43.10	FNTM 8.0	AREA FINAL 6256.73	ERRO 0.013
I1 612	I2 618	BGRD<..? 4.87	FNTM 3.0	AREA FINAL 99.97	ERRO 0.179
I1 625	I2 629	BGRD<..? -0.18	FNTM 3.0	AREA FINAL 59.93	ERRO 0.367
I1 646	I2 648	BGRD<..? 1.22	FNTM 5.0	AREA FINAL 344.07	ERRO 0.046
I1 657	I2 661	BGRD<..? -1.21	FNTM 3.0	AREA FINAL 161.95	ERRO 0.626
I1 666	I2 675	BGRD<..? -0.30	FNTM 3.0	AREA FINAL 59.23	ERRO 0.327
I1 705	I2 711	BGRD<..? 17.16	FNTM 5.0	AREA FINAL 1253.93	ERRO 0.031
I1 711	I2 715	BGRD<..? 1.04	FNTM 3.0	AREA FINAL 50.79	ERRO 0.259
I1 720	I2 720	BGRD<..? 1.26	FNTM 5.0	AREA FINAL 203.10	ERRO 0.115

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO
NÚCLEO DE COMPUTAÇÃO ELETRÔNICA



I1 729	I2 735	UGRD<.?. 3.67	FWTM 5.0	AREA FINAL 477.84	ERRO 0.061
I1 750	I2 756	SGRD<.?. 0.95	FWTM 5.0	AREA FINAL 170.44	ERRO 0.133
I1 760	I2 773	BGRD<.?. 0.30	FWTM 4.0	AREA FINAL 55.58	ERRO 0.279
I1 773	I2 779	HGRD<.?. 1.07	FWTM 5.0	AREA FINAL 90.11	ERRO 0.151

AMOSTRA MEIER

NO. PONTOS E NO. DE TERMOS
9 3

ENERG.	LOG(EF)	D. PADRAD
121.78	3.27	0.14
244.70	4.02	0.22
344.27	4.51	0.14
411.13	4.62	0.45
443.89	4.62	0.46
778.85	5.39	0.15
964.00	5.66	0.14
1112.05	5.82	0.22
1407.92	5.99	0.14

? *INTERVALO DE DADOS 0....PARA.. 1000

NUMERO DE INTERACOES = 2

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO
NÚCLEO DE COMPUTAÇÃO ELETRÔNICA



UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO
 INSTITUTO DE CIÊNCIAS EXATAS
 DEPARTAMENTO DE CIÊNCIAS FÍSICAS

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO
 INSTITUTO DE CIÊNCIAS EXATAS
 DEPARTAMENTO DE CIÊNCIAS FÍSICAS

POSICAO DO FOTOPICU=	ENERG.FOTOPICU
17	30
22	39
28	50
34	61
41	73
49	88
69	124
78	140
98	176
130	234
137	246
142	255
147	264
156	280
179	322
187	336
229	430
245	441
254	457
278	500
284	511
290	522
301	541
307	552
316	563
362	651
408	734
413	743
419	754
430	774
432	786
456	810
461	829
473	851
479	862
500	900
563	1013
570	1026
582	1037
595	1071
608	1094
614	1105
626	1126
638	1143
658	1174
668	1202
707	1272
713	1283
722	1299
731	1315
752	1353
770	1386
775	1395
798	1436

TERMOS DO POLINOMIO AJUSTADO DE GRAU DOIS
 .2893E+01 .4670E-02 -.1731E-05

CHI-QUADRADO= 0.7993

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO
NÚCLEO DE COMPUTAÇÃO ELETRÔNICA

POSICAO-FOTOPICO	ENERG.(KEY)	EFICIENCIA
9	19	.51E-01
29	62	.42E-01
115	249	.19E-01
178	386	.12E-01
203	440	.10E-01
232	503	.93E-02
266	577	.68E-02
284	519	.61E-02
303	657	.55E-02
356	772	.43E-02
375	814	.40E-02
389	844	.38E-02
419	909	.35E-02
471	1022	.30E-02
499	1083	.28E-02
551	1196	.27E-02
615	1335	.26E-02
632	1372	.26E-02
639	1387	.26E-02
675	1465	.27E-02
683	1482	.27E-02
714	1552	.29E-02
759	1647	.30E-02
765	1660	.32E-02
801	1733	.35E-02
806	1754	.37E-02
830	1819	.41E-02
863	1873	.46E-02
916	1968	.53E-02
974	2114	.62E-02

I1 12 BGRD<..? FCTR
25 29 -0.22 3.0

AREA FINAL ERRO
1597.55 0.029

I1 12 BGRD<..? FCTR
114 118 -0.25 3.0

AREA FINAL ERRO
1072.02 0.027

I1 12 BGRD<..? FCTR
177 181 -0.28 3.0

AREA FINAL ERRO
723.83 0.109

I1 12 BGRD<..? FCTR
201 206 -0.12 4.0

AREA FINAL ERRO
990.83 0.086

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO
NÚCLEO DE COMPUTAÇÃO ELETRÔNICA



I1 229	I2 237	BGRD<..? 1.51	FATM 7.0	AREA FINAL 5298.48	ERRO 0.023
I1 265	I2 269	BGRD<..? -0.24	FATM 3.0	AREA FINAL 697.94	ERRO 0.104
I1 281	I2 289	BGRD<..? 0.54	FATM 7.0	AREA FINAL 2575.22	ERRO 0.041
I1 300	I2 306	BGRD<..? -0.10	FATM 5.0	AREA FINAL 800.63	ERRO 0.104
I1 354	I2 359	BGRD<..? 0.00	FATM 4.0	AREA FINAL 936.20	ERRO 0.084
I1 373	I2 377	BGRD<..? -0.22	FATM 5.0	AREA FINAL 556.34	ERRO 0.119
I1 386	I2 392	BGRD<..? 0.48	FATM 5.0	AREA FINAL 1558.83	ERRO 0.055
I1 416	I2 422	BGRD<..? -0.00	FATM 5.0	AREA FINAL 960.04	ERRO 0.088

APÊNDICE V

PADRÕES NBS

DADOS FORNECIDOS PELO "NATIONAL BUREAU OF STANDARDS" PARA AS
AMOSTRAS PADRÃO I E II

(Certificados - NBS Coal Standard nº 868 e nº 899)

<u>ELEMENTOS</u>	<u>PADRÃO I [ppm]</u>	<u>PADRÃO II [ppm]</u>
Sb	6,21	3,9
Ba	0,23	11,3
Br	18,3	1,2
Ce	0,33	0,42
Cs	0,18	0,15
Cr	18,8	-
Co	6,9	5,7
Eu	0,08	0,22
Hf	0,31	0,23
Fe	5800,00	8400,0
La	1,5	-
Lu	2,4	13,5
K	117,5	168,0
Sm	1,7	-
Sc	14,7	111,2
Se	0,78	2,5
Na	11,5	18,1
Yb	2,5	3,8
Th	0,35	0,51

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 . Winchester, J.W., Zoller, W.H., Duce, R.A., and Benson, C. S. - Instrumental Neutron Activation Analysis of Pollutants, Atmos. Environment, 1, 105 (1967).
- 2 . BACH, W. - Atmospheric Pollution, McGraw-Hill Book Company, 1972.
- 3 . STERN, A.C. - Air Pollution, Vol I, II, III, Academic Press, New York, London, 1968.
- 4 . Painter, D.E. - Air Pollution Technology, Prentice - Hall Company, 1974.
- 5 . Guzzi, G., Pauly, J., Girardi, F. and DORPEMA, B - EURATON-3469 e, 1967.
- 6.. SAVITZKI, A. e GOLAY. J.E. - Smothing and Differentiation of Data by Simplified Least Squares Procedures, 36, Nº 8, 1627 - 1637, 1964.
- 7 . BOTHE, W - Zur Methodik der Neutronensonden. Zeit, F. Phys, 129 (1943) 437.
- 8 . AXTON, E. J. - Absolute Measurements of The Neutron Flux Density in the A.E.R.R. Reactor "Gleep", Reactor Science Thechnology, 17, 125-135 (1963).
- 9 . WESTCOTT, C.H., WALKER, W.H., ALEXANDER, T.K. - Effective

Cross Section and Cadmium Ratios for the Neutron Spectra of Thermal Reactors., Proceeding Geneve, 16 , 1958.

- 10 . GOULD, F.T. - The Neutron Spectrometer for Subthermal Neutrons and the Cross Section of Gold and Metallic Hydrides in the 4-11,5A Range, New York, N.Y., Columbia University, 1958.
- 11 . BAUMANN, N.P., STROUND, M.B. - Self Shielding Factors for Detectors Fbils in Reactor Fluxes, Nucleonics, 23, N° 8 , 98 - 100 (1965).
- 12 . ROE, G.M. - The Absortion of Neutron in Doppler Broadened Resonances - New York, K.A.P.L., 1954.
- 13 . ALIEV, A.I., DRYNKIN, V.I. - Handbook of Nuclear Data Neutron Activation Analyssis, New York, N.Y., Halstead Press, 1969.
- 14 . PROFIO, A.E. - Experimental Reactor Physis - John Wiley & Sons-, N.Y., 1976.
- 15 . CURRIE, L.A. - Limits for Qualitatives Detection and Quantitative Determination Analytical chemestry, 40, 586-593 (1968).
- 16 . MAENHAUT, W., ADAMS F. e HOSTE, J. - Interferences in the Determination of Trace Elements in High-Purity Tin, J. of Rad Chem., 16, 39-55 (1973).

- 17 . LEGRAND, J. - Calibration of Gamma-Spectrometers, N.I. and Meth., 112, 229-238 (1973).
- 18 . Nuclear Data Shets B, 6 , Nº 4, Academic Press, N.Y., 1971.
- 19 . WESCOTT, C.H., EKBERG, K., HANNA, G.C. - A Survey of Values of the 2200 m/s Constants for Four Fissile Nuclides, I.A.E.A., Vienna.
- 20 . MARTIN, D.N. - Correction Factor for Cd, Covered Foil Measurements, Nucleonics, 13, Nº 3, 52 (1955).
- 21 . SLAVIC, I.A. - Automatic Analysis fo Gamma - Ray Spectra , Nucl. I. and Meth 112, 253 - 260 (1973).
- 22 . DONNELLY, D.P., BAER. H.W., REIDY, J.J. e WIEDENBECK - The Calibration of a GE(Li) Gamma-Ray Spectrometer for Energy and Relative Intensity Measurements, N. I. and Meth., 112 229-238 (1973).
- 23 . TRAVESI, ANTONIO - Analisis por Activación Neutrónica, Madri, JAEN - Ed. Blume, 1975.
- 24 . KOCH, R.C. - Activation Analysis Handbook, New York, N.Y., Academic Press, 1967.
- 25 . LECRE, J. C., CORNU, A. - Neutron Activation Analyssis Tables, Ed. Heyden, 1974.
- 26 . VILAR, G. J. - Medidas de Espectro do Reator Argonauta com Shopper para Nêutrons Lentos, Tese de M.Sc., CORPE - UFRJ,

- 27 . WESTCOTT, C.H. - Effective Cross Section Values for well Moderated Thermal Reactor Spectra. Atomic Energy of Canada Limited, 1960.
- 28 . DALTON, R.G. - Correction Factor for Foil - Activation Measurements, Nucl. Sc. Eng. 13, 190 (1962).
- 29 . CALI, J.P., WEINER, J.R. - The Accuracy of Radioactivation Analysis, Modern Trends in Activation Analysis. 253 (1964).
- 30 . SPURNY, K.R., LODGE, J.P. - Aerosol Filtration by Means of Nuclepore Filters: Aerosol Sampling and Measurements, Environ-Sci, Tech., 3, 464-468 (1969).
- 31 . ÖLMEZ, I., ARAS, N.K. - Trace Elements in The Atmosphere Determined by Nuclear Activation Analysis and their Interpretation, H.J. Radioanal Chemistry, 37, 671-677 (1977).