

**Otimização da Técnica de Análise Por
Ativação Neutrônica Instrumental e
Adequação do Software “k₀Labsue”
Método Paramétrico k₀.**

Autor: Ronaldo Araújo Miguel
Orientador: Dra. Maria Adelaide R. Vasconcelos Veado
Co-Orientador: Dra. Cláudia de V. Schayer Sabino

Fevereiro – 2003

Ao meu pai, a minha mãe, a
minha mulher e minhas
filhas.

AGRADECIMENTO

Primeiramente a Deus por mais esta oportunidade de realização profissional.

De uma maneira muito especial a minha orientadora Dra. Maria Adelaide Rabelo Vasconcelos Veado, pelo trabalho oferecido, pela confiança em mim depositada, pela dedicação e acompanhamento sem os quais não teria conseguido concluir esta dissertação.

Da mesma forma a minha Co-orientadora Dra. Cláudia Sabino Vilhena Schayer que também me acompanhou, me deu segurança, incentivou e muito colaborou para que pudesse obter sucesso no meu trabalho.

Ao Pesquisador Denis Picot que desenvolveu o software K₀Labsue, principal ferramenta para os resultados do meu trabalho.

Ao grande amigo Getúlio de Azevedo Ramos Júnior que foi o principal colaborador na diagramação e apresentação deste meu trabalho.

Aos amigos Luiz Fontoura Lorenzoni e Aimoré Dutra Neto pelas sugestões e ajuda através de seus conhecimentos na área técnica de eletrônica.

A Ângela Maria Amaral e Geraldo Frederico Kastner pela colaboração durante todo o meu trabalho experimental.

Ao CDTN/CNEN, órgão em que trabalho e onde foi realizado o meu trabalho.

Finalmente a minha mulher Rosângela Bernardi Miguel pela paciência e companheirismo.

RESUMO

Este trabalho foi realizado visando a otimização da técnica de análise por ativação neutrônica instrumental e adequação do software k_0 LABSUE desenvolvido por Denis Piccot, no laboratório Pierre Sue-França. Esta técnica é uma importante ferramenta analítica na determinação de elementos traços em diferentes tipos de matrizes.

O método paramétrico do k_0 permite determinar as concentrações dos diversos elementos presentes nas amostras, utilizando-se de um elemento comparativo, o padrão, de massa e características nucleares bem definidas, para se determinar os teores daqueles elementos passíveis de serem ativáveis das amostras a serem analisadas.

Foram realizadas diferentes rotinas utilizando programas para adaptar os dados gerados pelo sistema de aquisição da Canberra ao software k_0 LABSUE

Os resultados obtidos através dos softwares Intergamma e k_0 LABSUE, calibrações em energia e eficiência, fluxo do reator TRIGA MARK I IPR-R1 foram comparados aos encontrados nos procedimentos de rotina de cálculo do CDTN/CNEN, com uso de planilhas Excel®. Nas amostras de referência de solos (IAEA – GBW08303 – Polluted Farmland Soil, IAEA – Soil 3) e leite (IAEA – Milk Powder A-11) analisadas foram obtidos resultados de acordo com os valores certificados. Com estes resultados as foi possível analisar alguns isótopos de difícil determinação, tais como o Nd, Sm e Yb.

ABSTRACT

This work was accomplished seeking the optimization of the analysis technique by instrumental neutronic activation and adequacy of the k_0 Labsue software, develop by Denis Picot, in the laboratory Pierre-Sue-France.

This technique is an important analytic tool to determine trace elements in different types of matrixes.

The parametric method of the k_0 allows determine the concentrations of several elements existing in the samples using a comparative element, the standard one, with nuclear mass and characteristics well defined, in order to determine the tenors of those elements passable of being activated from the samples to be analyzed.

Different routines were accomplished using programs to adequate the data generated by the Canberra acquisition system to the K_0 Labsue software.

The results obtained through the software Intergamma and K_0 Labsue, calibrations in energy and efficiency and the flux of Triga Mark I IPR-R1, were compared to these found in the calculus routine procedures of CDTN/CNEN, using Excel.

In the analyzed reference samples polluted farmland (IAEA - GBW08303), soil (IAEA - Soil3) and milk (IAEA – Milk Powder A-11) results were obtained according to the given amount. With these results it was possible to analyze some isotopes of difficult determination such as Nd, Sm and Yb.

ÍNDICE

1	INTRODUÇÃO	12
2	MÉTODO DE ANÁLISE POR ATIVAÇÃO NEUTRÔNICA CONVENCIONAL.....	14
	2.1.1 Cálculo da Atividade Produzida Pela Reação (n, γ):.....	16
	2.1.2 Aspectos Positivos do Uso da Análise por Ativação Neutrônica Instrumental	19
	2.1.3 Aspectos Negativos da Análise por Ativação Neutrônica Instrumental:.....	20
	2.1.4 Interferências na Análise por Ativação Neutrônica Instrumental.....	20
	2.1.5 O Uso de Materiais de Referência nas Determinações Analíticas	21
2.2	A Análise por Ativação Neutrônica no Reator TRIGA-IPR-R1 do CDTN/CNEN.....	21
2.3	Método Paramétrico k_0 de Análise por Ativação Neutrônica.....	25
	2.3.1 Utilização do Método Paramétrico k_0	29
3	MATERIAIS E MÉTODOS.....	31
3.1	Características do Reator do CDTN/CNEN	31
3.2	Configuração do Detetor de Ge Ultra Puro (HPGe) Utilizado e Eletrônica Associada.....	32
3.3	Espectrometria Gama.....	34
	3.3.1 Procedimentos de Calibração do Detetor HPGe.....	34
	3.3.2 Software INTERGAMMA	37
	3.3.3 Calibração em Canal/Energia com o Software INTERGAMMA	40
	3.3.4 Calibração em Eficiência com o software INTERGAMMA.....	42
4	SOFTWARE K_0 LABSUE	44
5	RESULTADOS	47
5.1	Cálculo para Determinação da Curva de Calibração em Energia/Canal	47
5.2	Cálculo para Calibração da Curva em Eficiência na Geometria 5 cm.....	48
5.3	Cálculo dos Fluxos Térmicos e Epitérmicos do Reator TRIGA utilizando o software k_0 LABSUE:.....	51
5.4	Cálculo do Fluxo do Reator com Método Tradicional – Planilha Excel®.....	55
5.5	Comparação de Amostras de Referência	56
6	DISCUSSÃO	59
7	CONCLUSÃO	61
8	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	62

Anexo 1 – Especificações do Detetor de Ge Ultrapuro - HPGe

Anexo 2 - Modelo de Detetores de Germânio Ultra Puro (HPGe) e Eletrônica Associada

Anexo 3 – Certificado de Calibração da Fonte Padrão de Európio.

Anexo 4 – Manual de operação do Software k₀LabSue

Anexo 5 - Relatório de dados espectrais

ÍNDICE DE TABELAS

Tabela 2-1 - Alguns Exemplos de Análises por ativação neutrônica instrumental e por ativação com separação radioquímica junto ao CDTN/CNEN	23
Tabela 2-2 -Parâmetros Relacionados às Análises por Ativação Neutrônica.....	24
Tabela 2-3 - Características nucleares dos elementos que permitem o calculo de f e α : ..	30
Tabela 3-1- Energias utilizadas na determinação da eficiência de um detetor de Ge	36
Tabela 5-1 - Planilha Excel® do cálculo da calibração em eficiência na geometria 5cm..	48
Tabela 5-2 Comparação de resultados obtidos entre o software KOLabSue e amostra certificada da AIEA	56
Tabela 5-3 - Comparação de resultados obtidos entre o software KOLabSue e amostra certificada da AIEA	57
Tabela 5-4 - Comparação de resultados obtidos entre o software KOLabSue e amostra certificada.....	58
Tabela 6-1 -Comparação dos resultados encontrados pelo software K ₀ Labsue e a Planilha Excel	59

ÍNDICE DE FIGURAS

Figura 2-1 - Fluxograma do principio da AAN (Revel, 1999).	15
Figura 3-1 - Núcleo do reator nuclear TRIGA MARK	31
Figura 3-2 Foto da Placa AccuSpec A.....	33
Figura 3-3 – Diagrama de bloco do sistema AccuSpec.	33
Figura 3-4 Curva de calibração em energia	34
Figura 3-5 - Arranjos de geometria para contagem em um detetor de Ge.....	35
Figura 3-6 Curva de Calibração em Eficiência.....	36
Figura 3-7 - Espectros gerados no programa Genie 2000	37
Figura 3-8 – Indicação do espectro.RPT a ser transformado em .SPE.	38
Figura 3-9 –Indicação dos parâmetros relativos a eficiência na geometria medida.	39
Figura 3-10 – Entrada de dados, data e hora de saída das amostras do reator.....	39
Figura 3-11 – Tela inicial do programa INTERGAMMA.....	40
Figura 3-12 – Tratamento dos espectros.....	40
Figura 3-13 – Intervalo dos picos escolhidos	41
Figura 3-14 - Edição dos picos de energia.....	41
Figura 3-15 – Parâmetros calculados pelo software INTERGAMMA.....	42
Figura 3-16 – Subrotinas para tratamento da curva de eficiência.....	43
Figura 3-17 – Subrotina para edição de energias, eficiências e incertezas.....	43
Figura 4-1 Subrotina parâmetros do espectro a ser analisado.	44
Figura 4-2 – Tela inicial do Software k ₀ LabSue.....	45
Figura 4-3 – Dados isotópicos do ¹⁵⁴ Eu.....	46
Figura 4-4 – Dados.	46
Figura 5-1 – Tabela com os picos de energias escolhidos.....	47
Figura 5-2 – Parâmetros de calibração em energia encontrados.	47
Figura 5-3 – Curva de eficiência obtida através da planilha Excel®	49
Figura 5-4 – Entrada de dados para a calibração em eficiência no INTERGAMMA.	50
Figura 5-5 – Curva de calibração em eficiência gerada pelo INTERGAMMA.	50
Figura 5-6 - Equação da curva de eficiência a 5cm encontrada pelo INTERGAMMA.	50

GLOSSÁRIO

$\overline{E_r}$ - energia de ressonância efetiva.

ϕ - fluxo de nêutrons

γ - rendimento de desintegração do raio

v - velocidade da amostra

α - parâmetro que descreve a distribuição do fluxo neutrônico epitérmico

σ_0 - seção de choque para nêutrons térmicos

ϕ_e - fluxo de nêutrons epitérmicos ou intermediários

ϵ_p - eficiência absoluta do detetor no raio

A_p = número de pulsos por unidade de tempo no pico medido

D - fator de decaimento

E_a - energia arbitrária

f –relação de fluxos térmicos e epitérmicos do reator

FET – transistor de efeito de campo

HPGe - Detetor de Ge Ultra Puro

LED – diodo emissor de luz

LN2 – Nitrogênio Líquido

M - massa atômica

m - massa do elemento irradiado

N – atividade da amostra

n – nêutrons

N_{Avogadro} - número de Avogadro

NIST - National Institute for Standards and Technology

PO - pulso ótico

S - fator de saturação

T - meia-vida do elemento

t - tempo de irradiação

t_d - tempo de decaimento

TRP - transistor de reinício do pré-amplificador

W - peso do elemento

θ – abundância isotópica

λ - constante de decaimento

σ_{AB} - seção de choque do elemento

INAA - Ativação Neutrônica Instrumental
ADC - conversor analógico digital
AIEA - International Atomic Energy Agency
AQAN - Análise Química por Ativação Neutrônica
RNAA - Análise Radioquímica por Ativação Neutrônica
CDTN - Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear
CEA - Comissariado de Energia Atômica
CNEN - Comissão Nacional de Energia Nuclear
EUA - Gulf General Atomic
LGC - Laboratory of The Government Chemist
LRMM - Institute for Reference Materials and Measurements
USEPA - Environmental Protection Agency of United States
USGS - United States Geological Survey

1 INTRODUÇÃO

Frederic Joliot e Irene Curie descobriram em 1934, que os elementos químicos que estão normalmente inativos ou estáveis, podem se tornar radioativos se forem bombardeados com partículas subatômicas (Curie, 1968). Fermi e Col descobriram, nesta mesma época que alguns elementos quando bombardeados com nêutrons se tornavam radioativos e que a radioatividade emitida tinha característica própria do novo núclídeo formado (Arild e Eiliv, 1971).

A primeira análise por ativação foi realizada por Hevesy e Levi em 1936, onde foi determinado o disprósio (Dy) contido em uma amostra de Ítrio (Y). Desde então foram utilizados aceleradores de partículas e reatores nucleares para se produzir radionuclídeos (Arild e Eiliv, 1971).

Após a segunda guerra mundial, a rápida construção e distribuição mundial de reatores nucleares somada a revolução eletrônica dos últimos 20 anos que contribuiu com o desenvolvimento de detetores mais sensíveis e eficientes e sistemas computacionais avançados tiveram um real impacto para o desenvolvimento desta técnica de análise (Arild e Eiliv, 1971).

A Análise por Ativação Neutrônica tem sido predominantemente usada como um método ultra-sensível para análises em teores de elementos traços em diversas amostras.

Utilizando-se do método paramétrico k_0 em análise por ativação neutrônica, pode-se determinar diretamente a concentração dos diversos elementos presentes em uma amostra a partir de um espectro gama. O método paramétrico do k_0 está baseado na irradiação conjunta de um elemento conhecido, o padrão, e as amostras a serem analisadas. O método do k_0 requer um bom conhecimento das condições de irradiação, constantes nucleares dos elementos a serem analisados e das condições de medida (De Corte, 1986) (Piccot, 1987; 1996).

A Análise por Ativação Neutrônica Instrumental (INAA) realizada neste trabalho utilizou-se do reator TRIGA IPR-R1 do Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear da Comissão Nacional de Energia Nuclear, CDTN/CNEN, que possui uma mesa giratória especialmente apropriada para esta técnica analítica que consiste de 40 posições de irradiação. Numa mesma irradiação pode-se, portanto, irradiar 40 tubos simultaneamente, sendo que cada um pode conter um recipiente plástico com uma ou duas

amostras. Durante a irradiação a mesa gira em torno do núcleo do reator a uma velocidade constante, de modo a garantir um fluxo de nêutrons uniforme no total das amostras.

Outros recursos utilizados na prática desta técnica de análise foram os Softwares GENIE 2000 (CANBERRA), k_0 LABSUE(Piccot,1987,1996), INTERGAMMA, RPTTOSPE. Os softwares k_0 LABSUE, INTERGAMMA (Interthechnique) e RPTTOSPE Piccot (Piccot, 1987; 1996).

Visando a otimização desta técnica de análise foi necessário adaptar os dados espectrais às condições de medidas de calibração de canais/energias e eficiências absolutas do detetor para as diferentes geometrias de contagens e adequar os programas gerados pelo sistema de aquisição de dados espectrais da CANBERRA àqueles necessários para a leitura do software k_0 LABSUE.

Após a adequação dos softwares, foram realizados os testes experimentais para obtenção dos fluxos térmicos e epitérmicos do reator TRIGA IPR-R1, parâmetros do método do k_0 (f e α) e realizadas análises de amostras de referência para certificação dos resultados obtidos com o software k_0 LABSUE.

2 METODO DE ANALISE POR ATIVAÇÃO NEUTRONICA CONVENCIONAL.

A Análise por Ativação Neutrônica (AAN) é um método nuclear que determina parte da composição elementar da matriz estudada. A maioria dos elementos com $Z > 8$ são passíveis de serem dosados com esta técnica, que se baseia na identificação e medida da radiação dos radioisótopos produzidos após uma irradiação neutrônica (Newton,1999) (Alfass,1990).

AAN é geralmente classificada em três categorias:

- I) Análise por Ativação Neutrônica Instrumental (AANI), na qual não há nenhum tipo de processamento químico da amostra, antes ou depois da irradiação. As outras duas categorias apresentam necessidade de processamento químico;
- II) Análise Radioquímica por Ativação Neutrônica (ARAN) se a separação dos elementos interferentes ocorre depois da irradiação;
- III) Análise Química por Ativação Neutrônica (AQAN) quando a separação se dá antes da irradiação (Elhmann & Vance, 1991).

Na AANI, a amostra é bombardeada por uma fonte de nêutrons, produzindo uma reação do tipo (n,γ) em muitos dos elementos presentes. A fonte de nêutrons utilizada é um reator de pesquisa, com fluxo da ordem de $[10^{11} \text{ n.cm}^2.\text{s}^{-1}]$ a $[10^{14} \text{ n.cm}^2.\text{s}^{-1}]$ (De Corte, 1987). Os espectros de radiação γ dos isótopos radioativos produzidos são medidos com auxílio de detector semiconductor e eletrônica associada. Uma placa multicanal acoplada a um software específico é capaz de separar os diferentes níveis de energia de radiação (100 a 2000 KeV) bem como quantificar para cada energia sua atividade específica (Ehmann & Vance, 1991). A Figura 2-1 apresenta o fluxograma do principio da AANI de acordo com Revel (1999).

A AANI tem como aplicação a determinação dos teores dos elementos presentes em uma amostra a partir da atividade dos radioisótopos produzidos. São usados métodos de análise, que segundo De Corte (1996) podem ser divididos em duas classes: convencionais (comparação de picos) e semi-absolutos.

Os métodos convencionais de AANI fundamentam-se na proporcionalidade existente entre a taxa de contagem e a massa do elemento presente, na amostra e em um padrão com o mesmo elemento, o que torna necessário o preparo de um padrão para cada elemento a ser analisado ou de um padrão múltiplo quando se deseja analisar dois ou mais

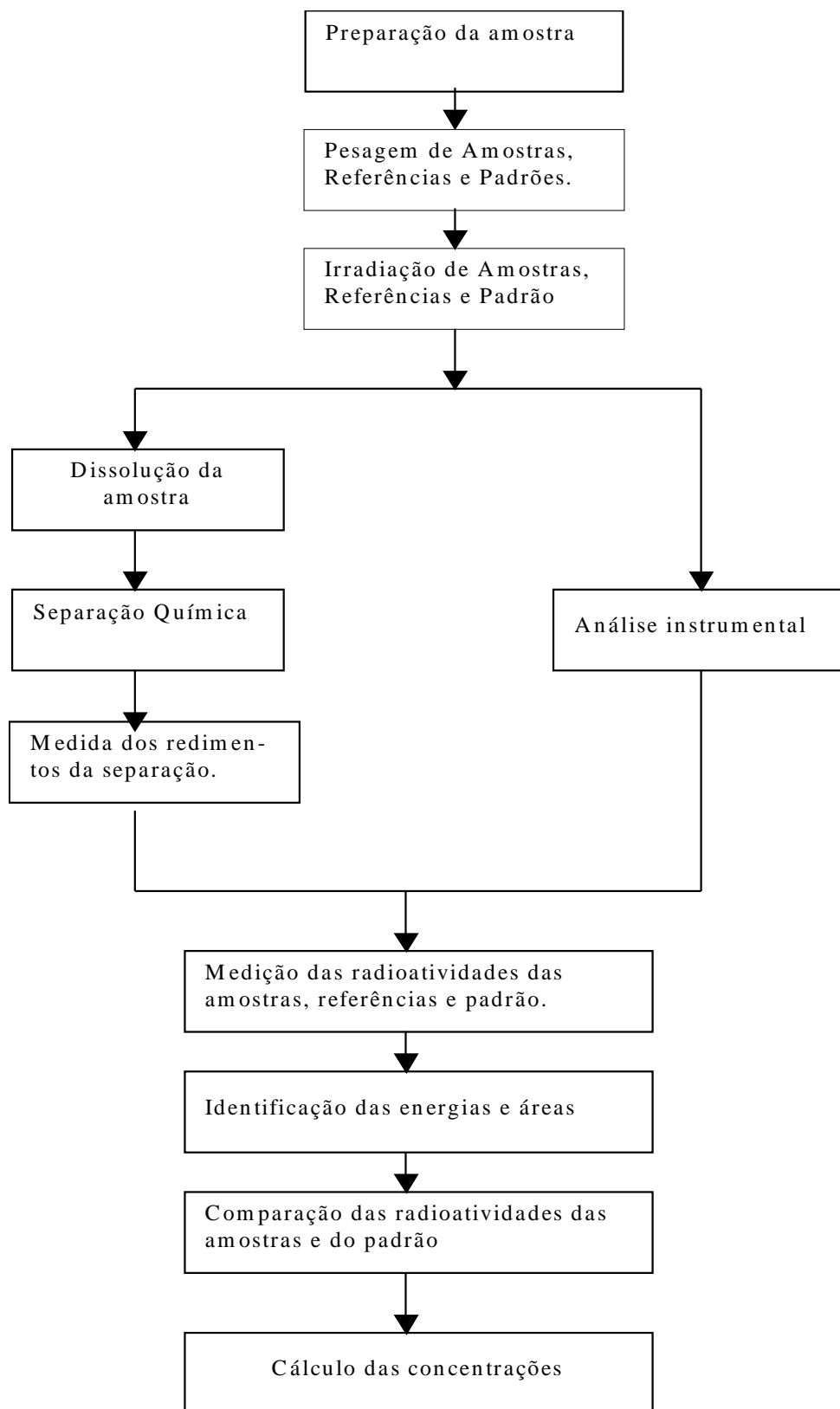


Figura 2-1 - Fluxograma do princípio da AAN (Revel, 1999).

elementos presentes em uma única amostra. Os custos e o tempo de preparação dos padrões são elevados.

Os métodos semi-absolutos baseiam-se em conjuntos de características nucleares de cada elemento e dados nucleares experimentais. São vários os métodos semi-absolutos, destacando-se o chamado Método Paramétrico k_0 . Este método emprega como padrão um elemento com características nucleares bem definidas, como por exemplo, Au, Na e Fe. O método se baseia na irradiação simultânea do elemento de referência (padrão) e das amostras a serem irradiadas. São necessária a determinação da posição das amostras no momento da irradiação para a determinação da relação entre o fluxo nêutrons térmicos e epitérmicos. Os valores das constantes do Método do k_0 são determinados com 2% ou menos de incerteza para 91 isótopos, em laboratórios em todo mundo, outros 20 isótopos possuem suas constantes estabelecidas com incerteza de até 5% (De Corte, 1986c, 1987), (De Corte at all, 1980,1982a, 1982b,1986a, 1986b,1989,1992,1994,1995)

2.1.1 Cálculo da Atividade Produzida Pela Reação (n, γ):

Em uma transição isomérica o núcleo passa de um estado energético para outro, emitindo um fóton γ com uma energia igual a diferença entre as energias dos estados energéticos final e inicial. A emissão é monoenergética e específica para cada radionuclídeo (De Corte, 1987).

A reação do tipo (n, γ) possui duas características que permitem a padronização e determinação da precisão da análise por ativação neutrônica a alta penetrabilidade dos nêutrons na matéria e a existência de um sinal característico da radiação emitida no decaimento de cada elemento a ser analisado (De Corte, 1987).

Os principais fatores que determinam qual será o radioisótopo são:
características nucleares;
estado de energia do núcleo.

Os fatores que determinam a atividade produzida e o cálculo teórico da atividade de um radioisótopo B, formado a partir do bombardeamento de um átomo A por um fluxo de nêutrons é dependente das seguintes características:

ϕ =fluxo de nêutrons [$n \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$]

t= tempo de irradiação [s],

λ = constante de decaimento, dada por

σ = seção de choque

$$I = (\ln 2) / T \quad (1)$$

T=meia-vida do elemento [s],

D = fator de decaimento, dado por

$$D = e^{-I.t_d} \quad (2)$$

t_d = tempo de decaimento [s], contado a partir da saída do reator,

m = massa do elemento irradiado [g],

θ = abundância isotópica (fração),

N_{Avogrado} = número de Avogadro = $6,0221 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$

A velocidade de desintegração de uma amostra com N átomos radiativos é dada por

$$v = - \frac{dN}{dt} = IN \quad (3)$$

$$\text{ou } \frac{dN}{N} = -I dt \quad (4)$$

onde

$$\text{Log}N = -It + cte \quad (5),$$

para as condições iniciais, $t=0$ e $N=N_0$ (5) temos:

$$\text{Log}N_0 = cte \quad (6)$$

$$\text{Log}N = -It + \text{Log}N_0 \quad (7)$$

$$\text{Log} \frac{N}{N_0} = -It \quad (8)$$

$$\frac{N}{N_0} = e^{-It} \quad (9)$$

$$N = N_0 e^{-It} \quad (10)$$

N_0 é a atividade inicial. Para $t=T$ (tempo necessário para a atividade do elemento caia à metade, ou seja, uma meia vida):

$$N = \frac{N_0}{2} \quad (11) \quad \text{então: } e^{-\lambda T} = \frac{1}{2} \quad (12), \quad \text{e } \lambda = \frac{\ln 2}{T} \quad (13)$$

Assim (10) pode ser reescrito como

$$N = N_0 e^{-\frac{0,6931}{T} t} \quad (14)$$

Para um decaimento do tipo $A(x,y)B^*$, o número de átomos por unidade de tempo (B^*) após um intervalo dt tempo de irradiação, é dado por

$$\Delta_B^F = N_A f \sigma_{AB} dt \quad (15)$$

F=fim de irradiação

D= início de irradiação

N_A = átomos estáveis,

σ_{AB} = seção de choque do elemento A para x,

Como:

$$\Delta_B^D = N_B I dt \quad (16)$$

é o numero de átomos que sofreram desintegração depois de um tempo t de irradiação tem-se,

$$dN_B = \Delta_B^F - \Delta_B^D = N_A f \sigma_{AB} dt - N_B I dt \quad (17)$$

$$\frac{dN_B}{dt} + N_B I = N_A f \sigma_{AB} \quad (18)$$

$$\frac{dN_B}{dt} e^{+I t} + N_B I e^{+I t} = N_A f \sigma_{AB} e^{+I t} \quad (19)$$

$$e \frac{d(N_B e^{+I t})}{dt} = N_A f \sigma_{AB} e^{+I t} \quad (20) \text{ ou,}$$

$$N_B e^{+1t} = \frac{N_A f s_{AB}}{I} e^{+1t} + cte \quad (21)e$$

$$N_B = \frac{N_A f s_{AB}}{I} + cte .e^{-1t} \quad (22)$$

Para as condições $t=0$ e $N_B=0$ tem-se

$$\frac{N_A f s_{AB}}{I} + cte = 0 \quad (23)$$

$$cte = - \frac{N_A f s_{AB}}{I} \quad (24)$$

Aplicando-se o valor na equação (23)

$$N_B = \frac{N_A f s_{AB}}{I} (1 - e^{-1t}) \quad (25)$$

De acordo com (3) $A_B = N_B \lambda$

$$A_{B^*} = N_A f s_{AB} (1 - e^{-1t}) \quad (26)$$

$$A_{B^*} = \frac{MA .f .s_{AB} .6,023 .10^{23} .q}{M_A} \quad (27)$$

A atividade de B após a irradiação é dada por

$$A_{B(t)^*} = \frac{MA .q .0,6023 .s .f}{M_A} (1 - e^{-1t}) \quad (28)$$

2.1.2 Aspectos Positivos do Uso da Análise por Ativação Neutrônica Instrumental

Entre as principais características positivas da análise por ativação neutrônica instrumental, destacam-se (De Corte, 1987):

- grande número de elementos analisáveis: aproximadamente 70% dos elementos químicos naturais;
- capacidade de análise multi-elementar;

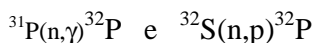
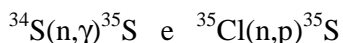
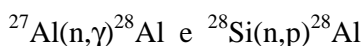
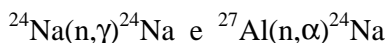
- baixa ocorrência de interferências. Por ser possíveis diversas combinações de tempo de irradiação, espera e contagem, bem como seleção de diferentes energias gama para contagem, a técnica é pouco susceptível a interferências;
- impossibilidade de contaminação após a irradiação: uma vez irradiada a amostra, os seus componentes estão nuclearmente marcados, sendo improvável posterior contaminação por isótopos estáveis,
- sensibilidade : apresenta excelente sensibilidade para inúmeros elementos, sendo este um dos motivos de sua grande aplicabilidade;
- seletividade: capacidade de identificação e quantificação de elementos insensíveis a outros métodos de análise;
- quantidade de amostra devido a sensibilidade: pequena quantidade de amostra é requerida, algumas vezes alguns miligramas são suficientes Isto é de grande vantagem no caso de amostras preciosas ou de difícil obtenção.

2.1.3 Aspectos Negativos da Análise por Ativação Neutrônica Instrumental:

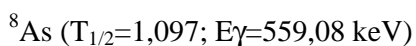
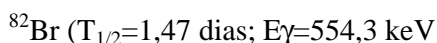
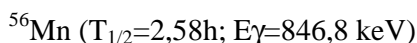
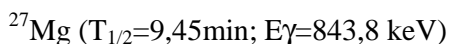
O uso da Análise por Ativação Neutrônica Instrumental apresenta como maior imposição, a necessidade de um reator nuclear de pesquisa, e todas os regulamentos legais do uso de suas instalações e da manipulação de materiais radioativos, tornando necessário, assim, mão de obra extremamente especializada. O método apresenta também o inconveniente de não apresentar resultados imediatos, podendo necessitar de prazos superiores a um mês, para o decaimento de radioisótopos de meia-vida longa e/ou alta atividade (De Corte, 1987).

2.1.4 Interferências na Análise por Ativação Neutrônica Instrumental

Interferências devido as reações nucleares



Interferências espectrais:



2.1.5 O Uso de Materiais de Referência nas Determinações Analíticas

Para as determinações analíticas de materiais de referência se aplicam métodos, instrumentos e diferentes técnicas a fim de se obter informações sobre a composição e a natureza do material. (IUPAC, 2001; Newton, 1998)

Mundialmente, tem sido enfatizada a qualidade dos dados empíricos, e a padronização dos métodos analíticos onde os materiais de referência formam um importante componente no controle de qualidade dos dados produzidos (Ihnat. 2000). Assim, na Análise por Ativação Neutrônica Instrumental, a adoção de material de referência para coirradiação introduz um indicador da qualidade dos resultados. Permite-se também, obter uma intercomparação dos resultados, em diversos laboratórios e em épocas diferentes.

Em praticamente todas as áreas de pesquisa utilizam-se os materiais de referência, entre outras funções, para:

- calibração e aferição de sistemas de medidas,
- teste de instrumentos,
- definição de escala de medidas,
- comparação entre laboratórios,
- análise da qualidade dos resultados.

Os materiais de referência são produzidos por alguns centros internacionais, como: Institute for Reference Materials and Measurements (LRMM), National Institute for Standards and Technology (NIST) e Laboratory of The Government Chemist (LGC); International Atomic Energy Agency (AIEA); (United States Geological Survey, USGS).

2.2 A Análise por Ativação Neutrônica no Reator TRIGA-IPR-R1 do CDTN/CNEN.

Alguns exemplos de procedimentos rotineiros utilizados no CDTN/CNEN estão apresentados na Tabela 2-1, e os radioisótopos normalmente analisados estão apresentados na Tabela 2-2. Nesta Tabela, $A\psi$, atividade de saturação, é uma constante proporcional a secção de choque (15), abundância isotópica, fluxo de nêutrons térmicos e inversamente proporcionais à massa atômica do elemento de interesse.

Os programas de intercomparação internos no CDTN/CNEN utilizam as técnicas de ativação neutrônica, espectrofotometria de absorção atômica, fluorescência de Raios-X, colorimetria e volumetria. Os externos incluem participação em Programas

coordenados pela Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA), Environmental
Protectory Agency of United States (USEPA), Instituto de Radioproteção e Dosimetria
(IRD), United States Geological Survey (USGS) e Casa da Moeda do Brasil.

Tabela 2-1 - Alguns Exemplos de Análises por ativação neutrônica instrumental e por ativação com separação radioquímica junto ao CDTN/CNEN

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

* INAA - análise por ativação instrumental
RNAA - análise por ativação com separação radioquímica

Tabela 2-2 -Parâmetros Relacionados às Análises por Ativação Neutrônica

Isótopos	Saturação (A_Y) (Bq/g)	Meia vida	Tempo de irradiação	Tempo de decaimento	Tempo de Contagem	Energia gama (keV)
Na-24	$9,1 \times 10^9$	15 h	30 min	12 h	5 min	1368,4
Al-28	$3,4 \times 10^9$	2,31 min	1 min	1 min	2 min	1779,0
K-42	$9,7 \times 10^8$	12,4 h	30 min	12 h	10 min	1524,7
Sc-46	$2,3 \times 10^{11}$	83,9 d	4 h	30 d	60 min	889,4
Cr-51	$5,4 \times 10^9$	27,8 d	16 h	30 d	60 min	320,0
Mn-56	$9,6 \times 10^{10}$	2,6 h	30 min	3 h	10 min	846,9
Fe-59	$9,6 \times 10^8$	2,6 a	16 h	30 d	60 min	1098,6
Co-60	$2,5 \times 10^{11}$	5,3 a	8 h	30 d	60 min	1332,4
Zn-65	$2,4 \times 10^9$	245 d	8 h	30 d	60 min	1115,4
As-76	$2,3 \times 10^{10}$	26,5 h	4 h	48 h	30 min	559,2
Br-82	$6,4 \times 10^9$	35,3 h	30 min	24 h	15 min	776,6
Sb-122	$1,2 \times 10^{10}$	2,8 d	4 h	24 h	30 min	564,0
Ba-139	$7,2 \times 10^8$	82,9 min	60 min	120 m	15 min	165,8
La-140	$2,3 \times 10^{10}$	40,2 h	30 min	24 h	15 min	486,8
Ce-139	$1,04 \times 10^7$	140 d	4 h	30 d	60 min	165,8
Ta-182	$4,6 \times 10^{10}$	115 d	30 min	15 d	30 min	1121,1

2.3 Método Paramétrico k_0 de Análise por Ativação Neutrônica

A partir de um espectro gama, este método permite determinar diretamente a concentração dos diversos elementos presentes em uma amostra. O método do k_0 requer um bom conhecimento de:

- condições de irradiação: fluxo neutrônico e posição de irradiação;
- constantes nucleares dos elementos a serem analisados,
- condições de medida: detetores utilizados, calibração em energia e em eficiência para as diferentes geometrias;

O método paramétrico do k_0 está baseado na irradiação em conjunta de um elemento conhecido, o padrão, e as amostras a serem analisadas. (Piccot 1987, 1996).

Quando um elemento qualquer e um padrão são irradiados em conjunto dentro de um reator nuclear, a relação do número de pulsos específicos para cada energia gama pode ser escrita como:

$$K_{anal} = \frac{A_{sp}}{A_{sp}^*} = \frac{M^* q g s_0}{M q^* g^* s_0^*} \frac{\frac{f_s}{f_e} + \frac{I_0}{s_0}}{\frac{f_s}{f_e} + \left(\frac{I_0}{s_0}\right)^*} \frac{e_p}{e_p^*} \quad (29)$$

com

$$A_{sp} = \frac{A_p}{S.D.C.w} \quad (30)$$

onde o asterisco corresponde ao elemento conhecido, o padrão.

M= massa atômica ;

θ = abundância isotópica ;

γ = rendimento de desintegração do raio γ medido ;

ϵ_p : eficiência absoluta do detetor no raio γ medido;

fluxo de nêutrons anteriormente ao corte pelo elemento cádmio;

$$f_s = v_0 \int_0^{E_{cd}} n(v).dv \quad (31)$$

$E_{cd} = 0,55$ eV, energia de corte para um container cilíndrico em cádmio de 1 mm de espessura.

σ_0 = seção de choque para nêutrons térmicos ;

ϕ = fluxo de nêutrons epitérmicos ou intermediários. A distribuição deste fluxo é supostamente considerada seguir uma lei $1/E$.

$$I_0 = \int_{E_{cd}}^{\infty} S(E) \frac{dE}{E}, \text{ integral de ressonância (32).}$$

A_p = número de pulsos por unidade de tempo no pico medido (em cps).

$S=1-e(-\lambda t_i)$, fator de saturação dependente da meia vida do radioisótopo e do tempo de irradiação t_i

$$D=\exp(-\lambda t_d), \text{ (33)}$$

fator de decaimento onde t_d é o tempo de decaimento.

$$C=[1-\exp(-\lambda t_m)]/\lambda t_m, \text{ (34)}$$

fator de decaimento de dependente tempo de medida t_m .

w = peso do elemento (habitualmente em microgramas para os elementos padrões e em gramas para as amostras a serem analisadas).

Para a determinação de K_{anal} é necessário que:

a distribuição dos nêutrons epitérmicos sigam a lei $1/E$;

os isótopos tenham uma seção de choque variando ou proporcional em $1/v$ para energia de nêutrons de 1,0 a 2,0 eV ;

a absorção de nêutrons e dos fótons assim como a combustão dos isótopos considerados, sejam negligenciáveis ou corrigidos ;

as amostras e os elementos padrões se apresentem como fontes pontuais em face ao detector utilizado.

A concentração de um elemento dado i pode ser calculada segundo a equação :

$$C_i = \frac{A_{sp_i}}{k_{anal} \cdot A_{sp}^*} \text{ (35)}$$

$$k_0 = \frac{M^*}{M} \frac{q}{q^*} \frac{g}{g^*} \frac{S_0}{S_0^*} \quad (36)$$

$$Q_0 = \frac{I_0}{S_0} \quad (37)$$

$$f = \frac{f_s}{f_e} \quad (38)$$

a equação 35 pode ser escrita como :

$$C_i = \frac{Asp_i}{Asp^*} \frac{1}{k_0} \frac{f + Q_0^*}{f + Q_0} \frac{e_p^*}{e_p} \quad (39)$$

A equação 35 não pode ser diretamente aplicada. Dentro dos canais de irradiação de um reator, o espectro de nêutrons epitérmicos segue aproximadamente a lei $1/E$. Na maioria das vezes pode-se considerar o fluxo epitérmico como:

$$f_e'(E) = \frac{f_e}{E^{1+\alpha}} E_a^\alpha \quad (40)$$

onde α , independentemente da energia, pode ser positivo ou negativo. Este coeficiente depende da configuração do reator (material utilizado como moderador, geometria de irradiação, etc.). Então a integral de ressonância pode ser rescrita da seguinte forma :

$$I_0(a) = \int_{E_{cd}}^{\infty} S(E) \frac{E_a^a}{E^{1+a}} dE \quad (41)$$

Para os elementos de $\sigma(v) \approx 1/v$ em uma faixa de energia de 1,0 a 2,0 eV:

$$I_0(a) = \left[\frac{I_0 - 0,429s_0}{\bar{E}_r^{-a}} + \frac{0,429s_0}{(2a+1)E_{Cd}^a} \right] E_a^a \quad (42)$$

onde :

E_a = energia arbitraria (normalmente = eV)

σ_0 = seção de choque para nêutrons térmicos

$\overline{E_r}$ = energia de ressonância efetiva.

A determinação experimental de α pode ser efetuada utilizando elementos ativáveis apresentando ressonância na região de nêutrons epitérmicos em suas funções de excitação e efetuando as irradiações utilizando uma barreira de cádmio.

Um método baseado na irradiação conjunta de três elementos ativáveis e de amostras a serem analisadas foi desenvolvido (De Corte, 1986).

O fato de poder escrever a relação de fluxos $\phi/s/\phi_e$ utilizando elementos padrões, dois a dois, conduz a seguinte equação :

$$(a-b) \left[\frac{I'_0(a)}{s_0} \right]_1 - (a+1) \left[\frac{I'_0(a)}{s_0} \right]_2 + (b+1) \left[\frac{I'_0(a)}{s_0} \right]_3 = 0 \quad (43)$$

onde

$$\frac{I'_0(a)}{s_0} = \left(\frac{I_0}{s_0} - 0,429 \right) (\overline{E_r})^{-a} \cdot E_a^a \quad (44)$$

e

$$a = \frac{1}{\frac{Asp_1}{Asp_2} \cdot \frac{k_{0,Au(2)} e_{p2}}{k_{0,Au(1)} e_{p1}} - 1} \quad (45)$$

$$b = \frac{1}{\frac{Asp_1}{Asp_3} \cdot \frac{k_{0,Au(3)} e_{p.3}}{k_{0,Au(1)} e_{p.1}} - 1} \quad (46)$$

Os índices 1, 2 e 3 simbolizam os diferentes elementos padrões.

O valor α da equação (41) resultará nos seguintes fatores :

- cálculos dos coeficientes a e b com os dados experimentais e o fator « k_0 » de cada elemento de referencia;
- conhecimento preciso de I_0/σ_0 e $\overline{E_r}$;
- extração da raiz de $f(\alpha) = 0$ supondo que $f(\alpha)$ é contínuo no domínio das energias de nêutrons consideradas.

A determinação de α permite reescrever a equação 3 como :

$$Ci = \frac{Asp_i}{Asp^* k_0} \frac{1}{f + Q_0^*(a)} \frac{e_p^*}{e_p} \quad (47)$$

A relação entre $Q_0(\alpha)$ e $Q_0(\alpha=0)$ será dada por :

$$Q_0(a) = \left(\frac{I_0}{S_0} \right)_a = E_a^a \left[\frac{Q_0(a=0) - 0,429}{\overline{E_r}^a} + \frac{0,429}{(2a+1)(0,55)^a} \right] \quad (48)$$

com $\overline{E_r}$ e E_{cd} em eV, o termo $E_a^a = 1$ pode ser omitido.

2.3.1 Utilização do Método Paramétrico k_0

As constantes básicas do método paramétrico k_0 podem ser encontradas na literatura.

A utilização do elemento ouro (Au) como padrão não é imperativo apesar de os valores de k_0 serem habitualmente dados na literatura científica em relação a este elemento.

A determinação de f e α pode ser obtida diretamente irradiando uma folha de zircônio (Zr) e uma liga de Alumínio e Ouro (Al-Au) à 0,1% em Au, juntamente com as amostras a serem analisadas.

A escolha destes elementos deve-se às suas características nucleares: Q_0 e $\overline{E_r}$ relacionadas na Tabela 2-3.

Tabela 2-3 - Características nucleares dos elementos que permitem o cálculo de f e α :

Isótopos	Q_0	\overline{E}_r em eV
^{94}Zr	5,05	6220
^{96}Zr	248	338
^{197}Au	15,71	5,65

A diferença em energia das duas raias mais favoráveis à determinação de f (724,2 keV para o ^{95}Zr e 743,3 keV para o ^{97}Nb) é somente 20 keV, o que permite minimizar os erros relativos à geometria de medida e à eficiência, ϵ_p sendo praticamente as mesmas para estas energias.

3 MATERIAIS E MÉTODOS

3.1 Características do Reator do CDTN/CNEN

Foi utilizado o reator IPR-R1 é um reator TRIGA MARK I fabricado pela Gulf General Atomic (EUA), e foi projetado para operar a potência de até 30 kW em regime contínuo e até 100 kW em regime intermitente. Reformas na instalação permitiram a operação contínua a 100 kW. A Figura 3-1 mostra o núcleo do Reator Nuclear Triga MarkI.

O sistema de refrigeração atual do Reator TRIGA IPR-R1 permite operações em níveis de potência até 250 kW em regime contínuo. Está em fase de execução um projeto que permitirá elevar a potência de operação para 250 kW.

O Reator utiliza como combustível o Urânio enriquecido a 20% e como moderador principal o hidreto de Zircônio.

O núcleo possui refletor de grafita e é refrigerado a água leve desmineralizada. A água serve ainda como moderador adicional e como blindagem biológica.

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

Quatro detetores de nêutrons, localizados na periferia do refletor são utilizados para acompanhar a evolução do fluxo neutrônico e controlar o nível de potência no reator.

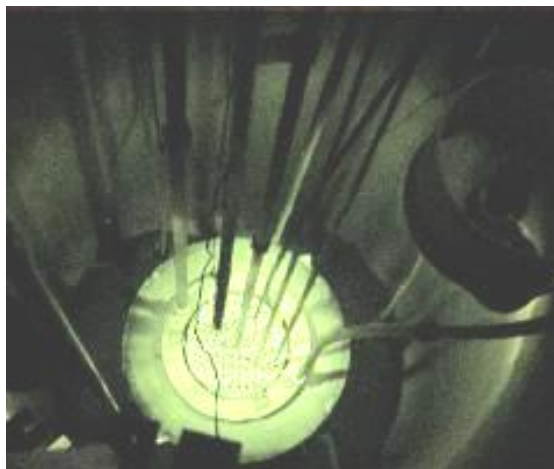


Figura 3-1 - Núcleo do reator nuclear TRIGA MARK

A operação do reator é efetuada através da mesa de controle onde se localizam os indicadores de todas as variáveis do processo e o painel de controle. O sistema de processamento dos dados primários se encontra no bastidor dos módulos.

A configuração atual do núcleo compreende 5 anéis concêntricos contendo 59 elementos combustíveis e 27 elementos falsos de grafita.

O reator TRIGA IPR-R1 é principalmente utilizado para a produção de radionuclídeos e para análise por ativação neutrônica. Para isso ele possui 3 dispositivos especiais de irradiação de amostras a saber:

Mesa giratória: Está alojada numa cavidade anular do refletor de grafita, comporta 40 receptáculos para amostras montadas num suporte giratórias. As amostras, colocadas em frascos cilíndricos de plásticos ou de alumínio, são introduzidas na mesa giratória através de um cabo elétrico que desce por um tubo de acesso.

A mesa giratória possui um mecanismo de rotação automático para permitir irradiação de amostras sob um fluxo de nêutrons uniforme.

Tubo central: Tubo de alumínio que penetra na região central do núcleo permitindo a irradiação de amostras sob fluxo neutrônicos mais intensos.

Pneumático: Um sistema de sucção de ar, constituído de uma ventoinha e válvulas, permite a introdução e retirada de amostras, para ativação e análise de elementos de meias vidas curtas. O terminal de irradiação se encontra na periferia do refletor.

3.2 Configuração do Detetor de Ge Ultra Puro (HPGe) Utilizado e Eletrônica Associada.

No presente trabalho o detetor utilizado é um semicondutor de Ge Ultra Puro (HPGe), modelo GC 1020 da CANBERRA, com 14,1% em eficiência para o pico de energia de 1332 keV do ^{60}Co . As especificações deste detetor são mostradas no Anexo 1.

A descrição detalhada dos modelos de detetores disponíveis e eletrônica associada é mostrada no Anexo 2.

A placa de multicanal usada foi a AccuSpec A compatível com computadores pessoais (PC)(Figura 3-2). Ela contem 8K de canais de dados para memorizar espectros e 8K de (on-board) para o conversor analógico digital (ADC).Neste trabalho foram utilizados 4096 canais para aquisição de energias de γ de até 2000 keV.

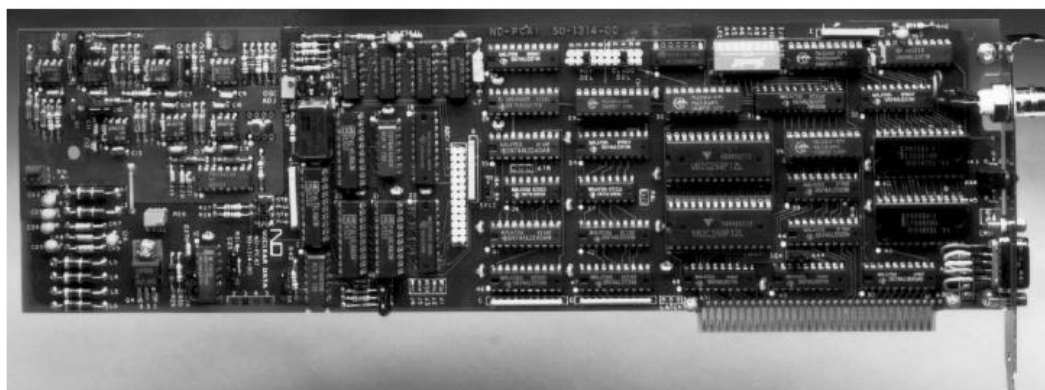


Figura 3-2 Foto da Placa AccuSpec A

O “software” para o funcionamento da placa multicanal consiste de módulos de programas executáveis e arquivos de dados. Os principais programas de controle são a interface de aquisição residente em memória (AICTRL.EXE), o programa principal de aquisição de multicanal (MCA.EXE), e um compilador para programas de autoseqüência (AC.EXE) (CANBERRA, 1990).

A Figura 3-3 mostra o esquema de ligação do sistema do detetor e eletrônica associada.

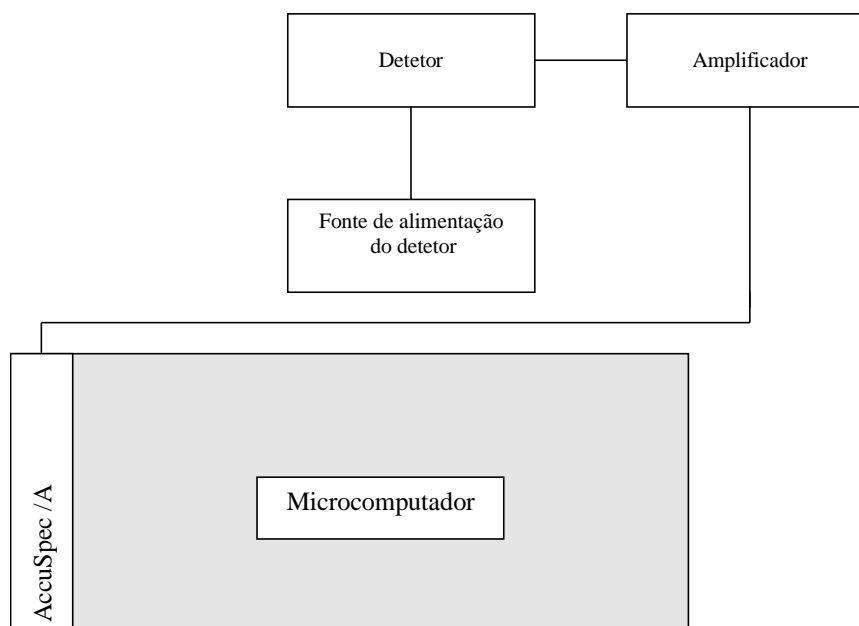


Figura 3-3 – Diagrama de bloco do sistema AccuSpec.

3.3 Espectrometria Gama

3.3.1 Procedimentos de Calibração do Detetor HPGC

Antes de iniciar a aquisição de dados de uma amostra irradiada, é necessário fazer a calibração do sistema de contagem. Deve-se fazer, inicialmente, a calibração Energia x Canal e a calibração de eficiência do detetor para as diferentes geometrias de contagem.

Para se obter o ajuste inicial de canal x energia utilizou-se das fontes de ^{137}Cs de energia 662 keV e de ^{60}Co de 1332 keV para a calibração dos picos de baixa e alta energia.

Geralmente trabalha-se com uma energia de 2000 keV no máximo em 4096 canais, o que gera uma relação ideal de energia de 2,048 keV/canal. É ideal que a reta $y = ax + b$, resultante da calibração tenha o coeficiente linear igual a zero. Este coeficiente deve ser no máximo de ± 2 canais. Para se obter esta relação ideal é necessário ajustar o ganho fino do amplificador de sinal.

Para a determinação de uma curva de calibração em diferentes níveis de energias utilizou-se uma fonte multielementar de ^{152}Eu , ^{154}Eu e ^{155}Eu – “Multi-Gama Ray Standard”

No Anexo 3, estão relacionadas todas as energias desta fonte, data de calibração e atividade específicas dos diferentes isótopos.

A curva de eficiência adquirida para as diferentes energias pelo software Gamma Analysis (Canberra) é mostrada na Figura 3-4.

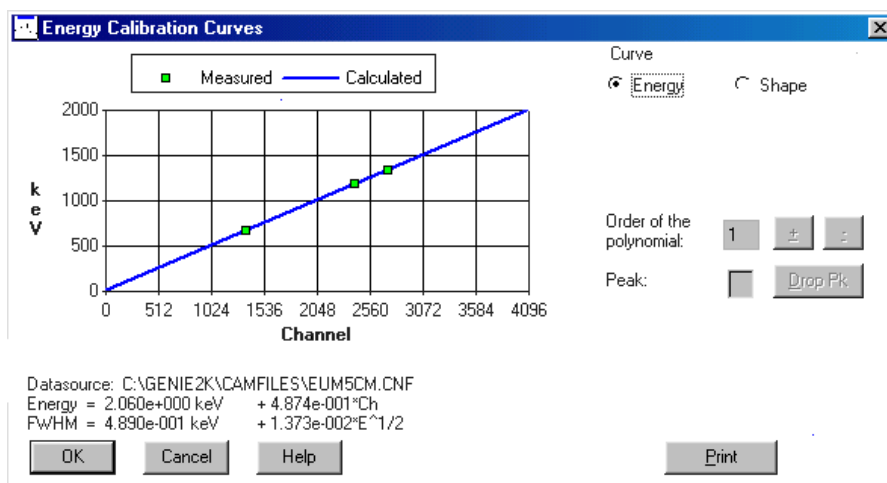


Figura 3-4 Curva de calibração em energia

Uma vez feita a calibração em energia, faz-se necessário efetuar a calibração em eficiência do detetor.

A calibração em eficiência é a relação entre os pulsos emitidos pela fonte radioativa e os pulsos detetados nas diferentes geometrias de contagens.

A Figura 3-5 ilustra os diferentes arranjos de geometrias de contagens possíveis de serem realizadas no laboratório de Radioquímica do CDTN

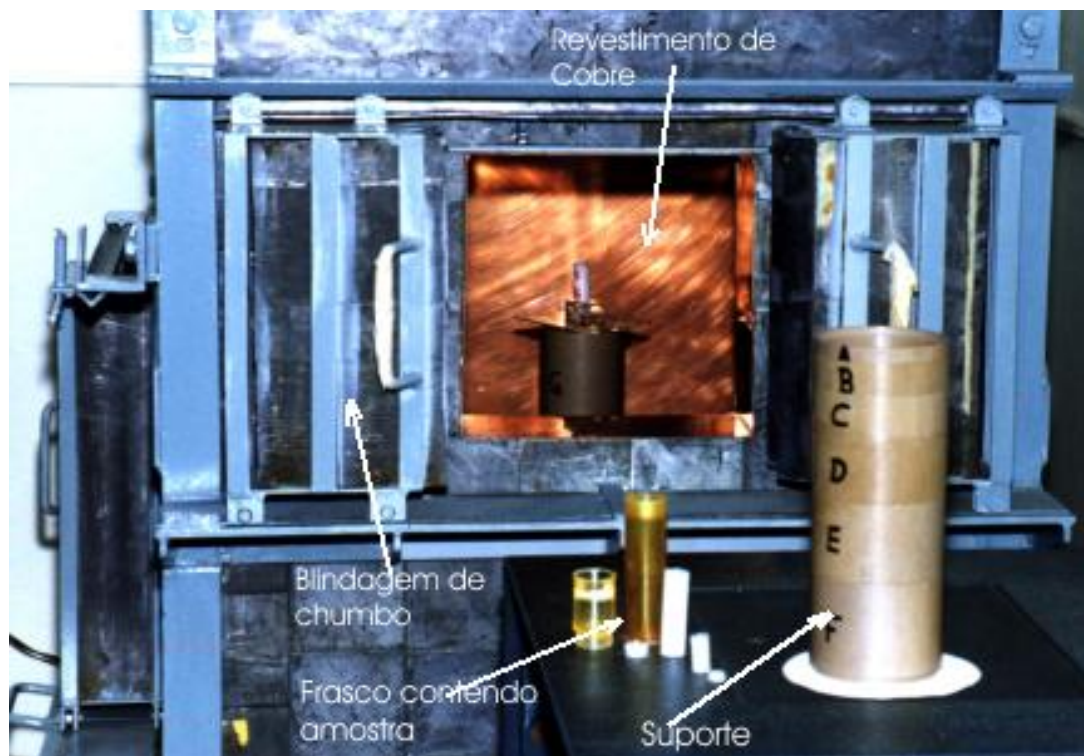


Figura 3-5 - Arranjos de geometria para contagem em um detetor de Ge

- 1 - blindagem de chumbo
- 2 - revestimento interno de cobre
- 3 - suporte
- 4 - frasco contendo a amostra

A Tabela 3-1, apresenta alguns exemplos de fontes padrões mais usuais para o cálculo da eficiência de um detetor de germânio.

Tabela 3-1- Energias utilizadas na determinação da eficiência de um detector de Ge

Energia (keV)	% de decaimento	Nuclídeo
60,40	35,9	²⁴¹ Am
121,78	28,3	¹⁵² Eu
244,69	7,5	¹⁵² Eu
302,85	18,4	¹³³ Ba
344,29	26,0	¹⁵² Eu
356,00	62,1	¹³³ Ba
383,84	8,9	¹³³ Ba
411,12	2,2	¹⁵² Eu
661,85	85,1	¹³⁷ Cs
778,92	13,0	¹⁵² Eu
867,38	4,2	¹⁵² Eu
964,11	14,5	¹⁵² Eu
1112,07	13,6	¹⁵² Eu
1173,24	99,9	⁶⁰ Co
1332,50	100,0	⁶⁰ Co
1408,00	20,8	¹⁵² Eu

A Figura 3-6 ilustra a curva de calibração em eficiência gerada no programa Genie 2000-Gamma Analysis(Canberra)

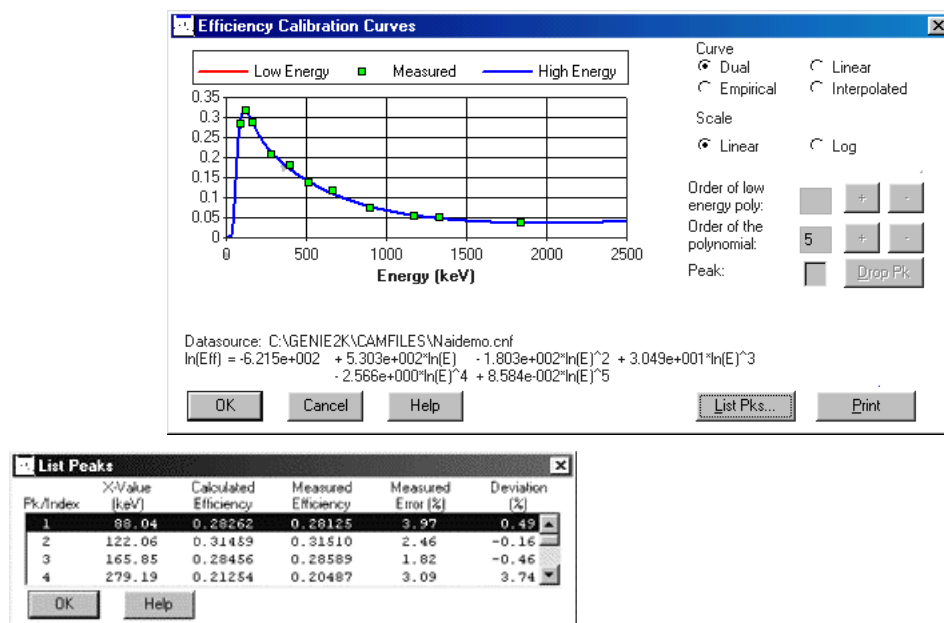


Figura 3-6 Curva de Calibração em Eficiência

3.3.2 Software INTERGAMMA

O software INTERGAMMA é um programa que gera e lê espectros no formato de arquivo “.SPE”. Para a adequação do INTERGAMMA ao sistema de contagens CANBERRA do laboratório de Radioquímica do CDTN/CNEN, faz-se necessário a transformação dos espectros com formato “.CNF”, gerado no programa GENIE 2000 (CANBERRA), para o formato “.SPE”.

Para ilustrar a seqüência dos passos a serem seguidos, será mostrado o espectro obtido de uma fonte padrão multielementar “Multi-gamma Ray Standard” de Eu (certificado no Anexo 3).

Para efetuar esta transformação Denis Piccot, criou o programa **RptToSpe**, onde é necessário cumprir as seguintes etapas:

Efetuar a aquisição dos espectros no programa Genie 2000, que gera espectros no formato “.CNF”. (Figura 3-7)

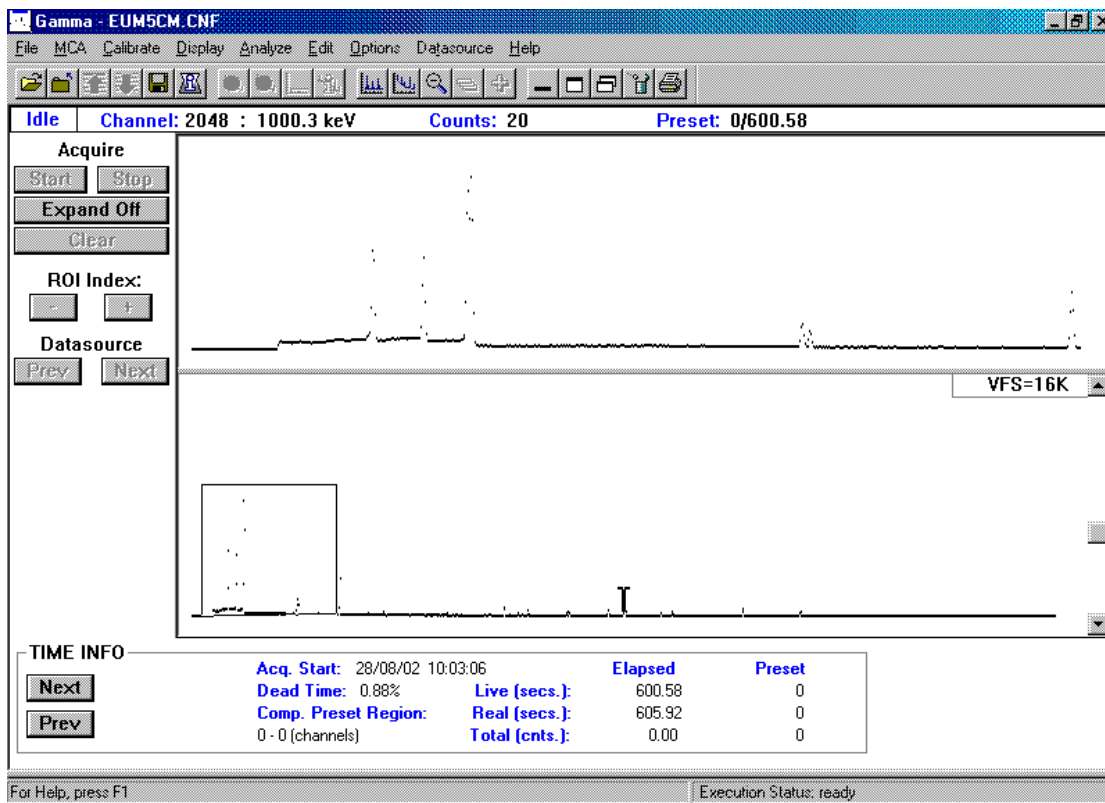


Figura 3-7 - Espectros gerados no programa Genie 2000

Gerar o relatório de dados espectrais na opção *Analyse/ Sequence de Analyse/ Spectral Data Report*. O relatório de dados espectrais no formato “.RPT” é salvo automaticamente

dentro do diretório REPPFILE do programa Genie 2000. O relatório gerado para o espectro de Eu acima ilustrado é mostrado no Anexo 5.

Com os arquivos “.RPT”; calibração em eficiência da geometria de medida “.AUS” e calibração em energia “.CAL”, e utilizando-se do programa de transformação de espectros **RptToSpe**, será gerado o mesmo espectro com terminação .SPE. As Figura 3-8, Figura 3-9 e Figura 3-10 ilustram alguns passos do programa de transformação do programa RptToSpe.

O primeiro passo (Figura 3-8) é escolher o espectro adquirido através do programa Genie 2000-Gamma Analysis que será tratado.

A Figura 3-9 nos permite editar os parâmetros relacionados a eficiência na geometria medida.

E a Figura 3-10 mostra a tela de edição dos dados relativos a data e hora de saída da amostra em estudo do reator.

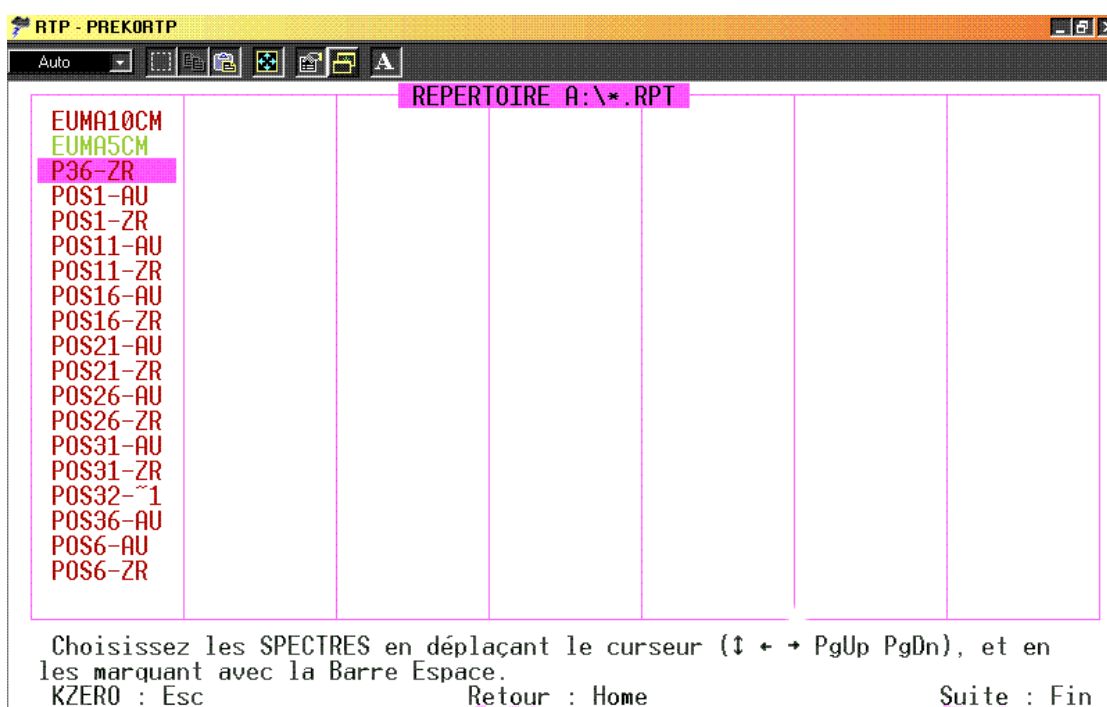


Figura 3-8 – Indicação do espectro.RPT a ser transformado em .SPE.



Figura 3-9 –Indicação dos parâmetros relativos a eficiência na geometria medida.

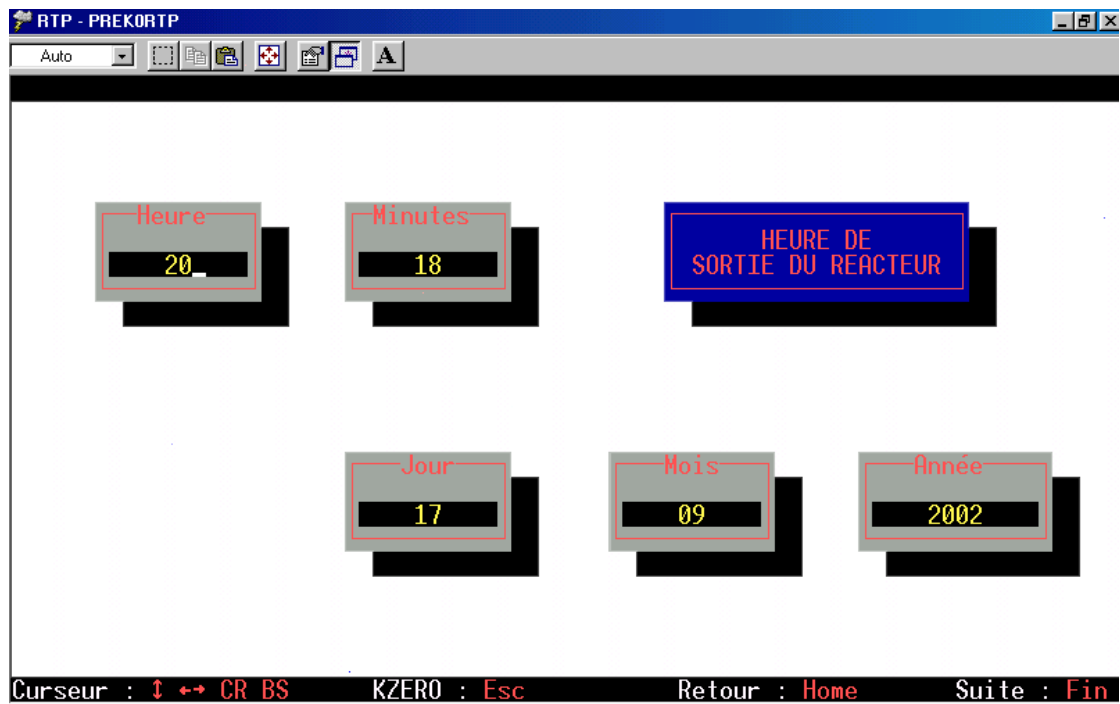


Figura 3-10 – Entrada de dados, data e hora de saída das amostras do reator.

3.3.3 Calibração em Canal/Energia com o Software INTERGAMMA

Para a calibração em energia de espectros “.SPE” utilizando-se o programa INTERGAMMA, faz-se necessário ativar a subrotina, *traitement de spectros* (F2) (Figura 3-11), para visualizar o novo espectro do Eu .SPE (Figura 3-12).

A tela inicial do software Intergamma é ilustrada na Figura 3-11. A função F2 (tratamento de espectros) lê e mostra os espectros “.SPE”

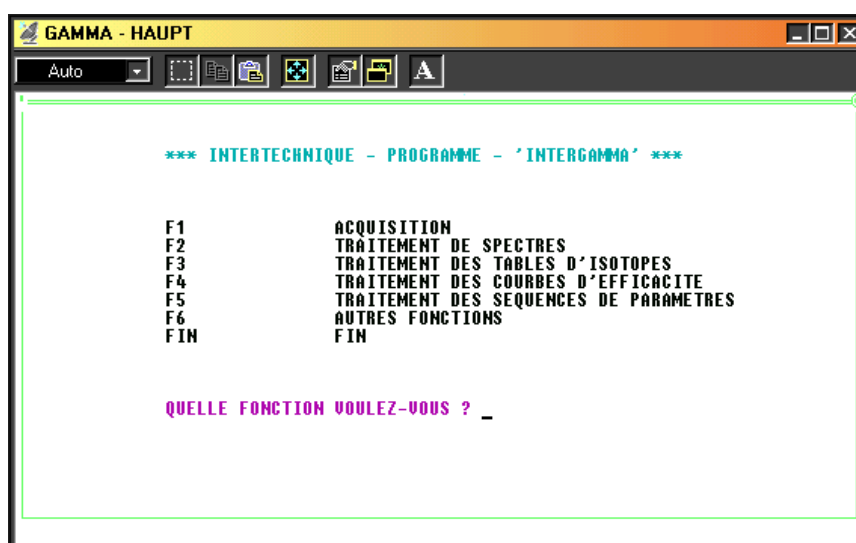


Figura 3-11 – Tela inicial do programa INTERGAMMA.

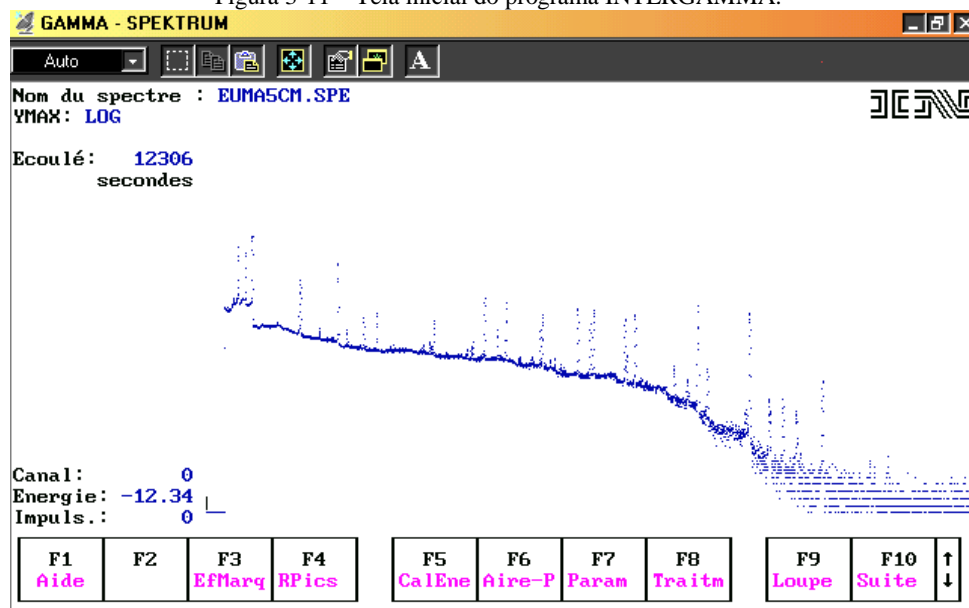


Figura 3-12 – Tratamento dos espectros.

Para que sejam selecionados os picos de interesse do espectro “.SPE” faz-se necessário ativar a função ‘EfMarq’ (F3), para indicar o canal de início e fim de seleção (Figura 3-13.)

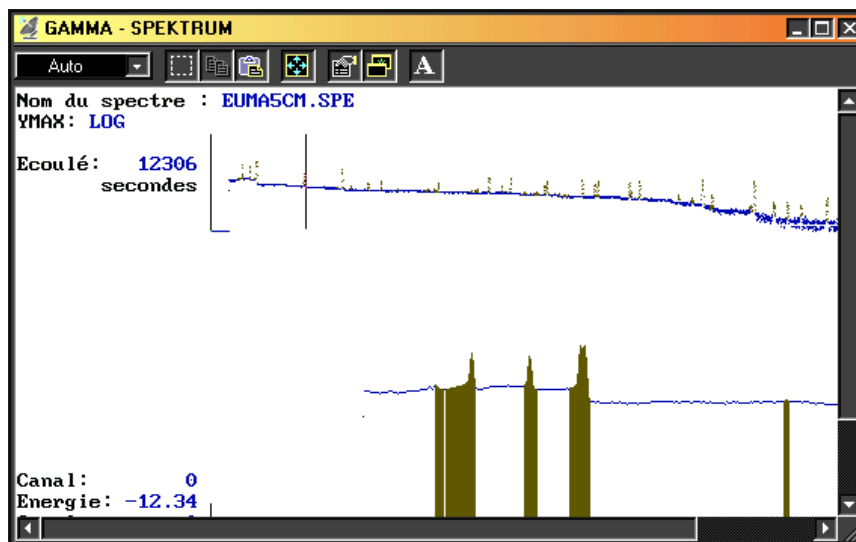


Figura 3-13 – Intervalo dos picos escolhidos

São necessários no mínimo 3 picos de energias para calibração canal/energia por exemplo: para o ^{152}Eu : 121,8 keV; 778,9 keV e 1408,01 keV. Para isto usa-se a função zoom (F9) e (F4), Em seguida efetuar a calibração em energia (F5). É necessário indicar a energia exata dos picos na coluna *Nouvelle Energie* em keV (Figura 3-14). Quando todos os picos estiverem anotados finalizar.

Pic	canal	Aire nette	Anc. énergie en keV	Nouv. énergie en keV
1	172.278	243459	74.493	
2	211.353	183881	94.151	
3	246.445	748840	111.793	
4	497.254	60682	237.568	
5	503.871	40640	240.879	
6	701.571	147528	339.618	
7	838.811	10063	407.958	
8	906.348	14219	441.527	
9	1209.778	10987	591.851	
10	1479.832	36369	724.956	
11	1548.612	7887	758.754	
12	1593.994	29474	781.031	
13	1775.663	8612	870.027	
14	1787.568	18381	875.848	
15	1974.138	26972	966.922	
16	2051.466	39170	1004.580	
17	2224.190	17245	1088.502	
18	2277.992	22121	1114.590	
19	2611.422	36772	1275.691	
20	2885.620	26910	1407.438	

Figura 3-14 - Edição dos picos de energia

Com isto os parâmetros a , b e c (usados na equação da curva de calibração em energia do programa K₀Labsue, $E=ax^2+bx+c$) são calculados Figura 3-15.

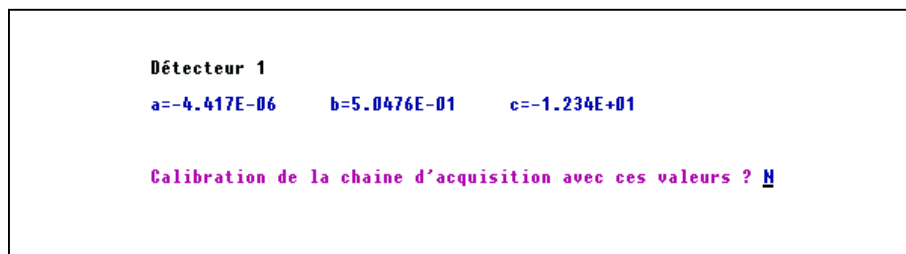


Figura 3-15 – Parâmetros calculados pelo software INTERGAMMA

Dentro do diretório “c:\KZERO\calib”, criar um arquivo texto com os valores a , b e c encontrados acima. No nosso procedimento este arquivo tem o formato “.CAE”.

Quando se utilizar o programa **RptToSpe**, o nome do arquivo de formato “.CAE”, aparecerá na lista de calibração em energia, então seleciona-se este, e todos os espectros serão automaticamente calibrados nestas energias/canais.

3.3.4 Calibração em Eficiência com o software INTERGAMMA

Para se obter a curva de eficiência a uma distância de 5 cm do detetor foram utilizadas as fontes padrões de ²⁴¹Am, ¹³³Ba, ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co e a fonte multielementar de Eu, com os respectivos dados de certificação de data e hora de origem e atividades iniciais.

Para criar o arquivo de curva de calibração em eficiência no software INTERGAMMA, é necessário cumprir duas etapas:

A primeira etapa é o cálculo da eficiência absoluta sobre todos os domínios de energia, utilizando fontes padronizadas, de preferência monoenergéticas, para serem evitados os efeitos de coincidências de picos. Para este cálculo utiliza-se de uma planilha modelo no programa EXCEL®.

A segunda etapa é a introdução dos valores acima obtidos no programa INTERGAMMA. Ativar a subrotina “*Traitment Des Courbes D' Efficacite*”(F4), (Figura 3-16). Indique as *energias, eficiências e incertezas* associadas (figura), em todos os domínios de energias pré-determinadas.

```

*** INTERGAMMA - PROGRAMME - COURBES - D'EFFICACITE ***

TRAITEMENT DE LA COURBE SCM.AUS

F1          Edition
F2          Modifier les valeurs
F3          Voir la courbe
F4          Supprimer la courbe
F5          Changer le nom de la courbe (=copier)
F6          Changer en mode parabole
F7          Liste des valeurs
Fin         Fin

Quelle fonction voulez-vous ?

```

Figura 3-16 – Subrotinas para tratamento da curva de eficiência.

Nom de la courbe: <u>SCM</u> .AUS Degré de la fonction: <u>3</u>			Type de fonction:		
Energie [keU]	Efficac. [%]	Erreur [%]	Energie [keU]	Efficac. [%]	Erreur [%]
59.590	0.2852	10.01	964.000	0.1808	5.22
80.990	0.7031	10.01	996.350	0.1631	5.50
86.540	0.8610	5.04	1004.790	0.1667	5.25
105.310	1.0995	5.05	1112.000	0.1552	5.25
121.780	1.1970	5.02	1173.080	0.1396	10.13
123.070	1.1347	5.02	1212.940	0.1412	9.26
244.690	0.7539	5.10	1274.420	0.1283	5.12
248.040	0.6918	5.19	1332.330	0.1242	10.13
276.390	0.5940	10.06	1408.030	0.1252	5.14
302.850	0.5443	10.02	2754.000	0.0706	6.00
344.280	0.5289	5.04	4000.000	0.0407	10.00
356.020	0.4531	10.01			
383.850	0.4194	10.05			
591.750	0.2595	6.16			
661.646	0.2338	10.00			
723.310	0.2223	5.31			
756.880	0.2116	6.73			
778.900	0.2216	5.25			
873.210	0.1839	5.39			

F1 pour aide

Figura 3-17 – Subrotina para edição de energias, eficiências e incertezas.

4 SOFTWARE K₀ LABSUE

O software k₀ LABSUE criado e cedido pelo pesquisador Denis Piccot é utilizado em rotina no laboratório francês Pierre Süe do Centro de Estudos Nucleares de Saclay – Commissariado de Energia Atômica – CEA/Fr. Para a adequação do software às análises realizadas no laboratório de radioquímica do CDTN/CNEN é necessário cumprir as seguintes etapas de trabalho:

Transformação dos espectros .RPT (Genie 2000) em .SPE (Intergamma) : Uma vez feita a aquisição dos espectros no programa Genie 2000, este gera espectros de terminação .CNF. Em seguida é necessário gerar o relatório de dados espectrais na opção Analyse, Sequence de Analyse, Spectral Data Report. O relatório de dados espectrais .RPT é salvo automaticamente dentro da opção Genie 2000 Repfaile. Dispondo-se do programa de transformação de espectros RPT TO SPE, indicar o caminho onde estão localizados os arquivos: espectro .RPT, calibração em eficiência da geometria de medida .AUS, e calibração em energia .CAL.

Software INTERGAMA (item 3.3.2, p. 37): este programa faz a leitura do espectro .SPE gerado na opção 1. Com a subrotina “Parâmetros” (F7) indicar a data e hora de aquisição do espectro e a massa em g da amostra (Figura 4-1).

```

Détecteur 1
Nom du spectre : C:\ANALISES EUMASCM .SPE
Temps d'acquisition : 12306 s (actif) 12412 s (réel)
Date d'origine : 17.09.02
Date de la mesure : 20:18:00
Date de la mesure : 26.12.02
Date de la mesure : 10:04:43
Poids/volume : 1.000
Unité de poids/volume : g
Unité de l'activité : Bq
Calibration en énergie A : -4.417E-06
(E=A*x^2+B*x+C) B : 5.0476E-01
C : -1.234E+01
Commentaire :
-----
Courbe d'efficacité : 5CM .AUS
Table d'isotopes : .NUL
Fichier résiduel (choix) : .NUL
Facteur sigma (1..3) : 2 *SIGMA
F1 pour aide F2 pour choisir

```

Figura 4-1 Subrotina parâmetros do espectro a ser analisado.

Software k₀LABSUE: dentro deste programa é necessário indicar a data e hora de início de irradiação usando a subrotina “Irradiação Normal” (F7) (Figura 4-2) e indicar os passos seguintes do programa:

os espectros de Au, Zr e Fe quando existentes e os arquivos .SPE correspondentes;
os espectros .SPE das amostras a serem tratadas;
e os elementos a serem determinados.

Ko-LABSUE

F1	F2	F3	F4	F5	F6	F7	F8
Aide	Quitter	DEF	Déroul. des tâches	Résultats	Editeur table isotopes	Irradia- tion normale	Irradia- tion sous Cadmium

Figura 4-2 – Tela inicial do Software k_0 LabSue

O software k_0 LABSUE dispõe de outras subrotinas que podem ser utilizadas como ferramentas úteis na análise por ativação neutrônica:

Subrotina “*Editeur Table Isotopes*” (F6). Fornece todos os elementos possíveis de serem calculados pelo método do k_0 , seus isótopos e suas características nucleares: meia vida, energias de decaimento gama, constante k_0 para cada energia. É também possível editar estes valores (Figura 4-4).

O exemplo escolhido na Figura 4-3 é o isótopo do ^{154}Eu .

Isotope	Eu152	Isotopes	
Element	Europium	Eu152m	Editer
Période	13.51 Y	Eu152	Insérer
Q0	1.25	Eu154	Supprimer
E_r(eV)	0.45	Gd159	Sauver
F_Cd	1.0000	Gd161	Energies
Code_Des.	1	Tb160	
Commentaire		Dy165m	
	Attention! Isotope sensible à la température	Dy165	
	Suite	Ho166	
	Sauver	Er171	
	Fermer		
Alt-X	Quitte		

Figura 4-3 – Dados isotópicos do ^{154}Eu .

Isotope	Eu154	Isotopes	
Element	Europium	Eu152m	Editer
Période	8.56 Y	Eu152	Insérer
Q0	5.66	Eu154	Supprimer
E_r(eV)	5.80	Gd159	Sauver
F_Cd	1.0000	Gd161	Energies
Code_Des.	4B	Tb160	
Commentaire		Dy165m	
	"g" de Westcott légèrement différent de "1"	Dy165	
	Suite	Ho166	
	Sauver	Er171	
	Fermer		
Alt-X	Quitte	244.70	
		344.30	Insérer
		443.90	Supprimer
		778.90	Sauver
		867.40	
		964.10	

Figura 4-4 – Dados.

5 RESULTADOS

Os resultados das calibrações em energia e eficiência, serão apresentados seguindo a seqüência de passos mostrados no capítulo 3.3.1.

5.1 Cálculo para Determinação da Curva de Calibração em Energia/Canal

Para a correção das energias obtidas no espectro, pela contagem da fonte padrão de Eu, deve-se editar na coluna nova energia, os valores reais.(Figura 5-1)

Pic	canal	Aire nette	Anc. énergie en keU	Nouv. énergie en keU
1	141.770	16260	59.136	
2	150.294	15477	63.428	
3	171.722	258976	74.213	
4	211.353	183881	94.151	86.500
5	246.445	748840	111.793	
6	497.254	60682	237.568	244.700
7	503.871	40640	240.879	
8	701.571	147528	339.618	
9	838.811	10063	407.958	
10	906.348	14219	441.527	591.700
11	1209.778	10987	591.851	
12	1479.832	36369	724.956	
13	1593.994	29474	781.031	873.700
14	1787.568	18381	875.848	
15	1974.138	26972	966.922	
16	2051.466	39170	1004.580	
17	2224.190	17245	1088.502	
18	2277.992	22121	1114.590	
19	2611.422	36772	1275.691	1274.500
20	2885.620	26910	1407.438	1408.000

Entrez au moins deux énergies ! F1 pour aide

Figura 5-1 – Tabela com os picos de energias escolhidos.

Após a inserção destes valores o programa Intergamma, fornece os parâmetros da curva de calibração canal/energia: a, b e c da equação do tipo $ax^2 + bx + c$ (Figura 5-2).

Détecteur 1		
a=-7.836E-05	b=7.2757E-01	c=-6.364E+01
Calibration de la chaine d'acquisition avec ces valeurs ? N		

Figura 5-2 – Parâmetros de calibração em energia encontrados.

A planilha Excel (Tabela 5-1) é utilizada para o cálculo das eficiências nas diferentes energias. Neste trabalho utilizou-se das fontes de ^{241}Am , ^{133}Ba , ^{60}Co , ^{154}Eu , ^{155}Eu e ^{157}Eu para o cálculo de eficiência a 5cm. Os resultados encontrados são

posteriormente inseridos no programa Intergamma, através da subrotina F4(tratamento de curva de eficiência) seguido da função F2(modificar os valores) como mostrado na (Figura 5-4).

A curva de calibração em eficiência obtida neste trabalho é mostrada na (Figura 5-5) e o polinômio de 6º grau correspondente é mostrado na Figura 5-6.

5.2 Cálculo para Calibração da Curva em Eficiência na Geometria 5 cm

Tabela 5-1 - Planilha Excel® do cálculo da calibração em eficiência na geometria 5cm.

Isótopo	Data de origem	Hora de origem	Data de medida	Hora de medida	Δt em dias	Meia Vida em dias	Lambda	Energia	CPS
²⁴¹ Am	1/1/1982	12:00:00	23/8/2002	15:25:37	7539,14279	158007,15	1,0336	59,59	324,757
¹³³ Ba	1/1/1982	12:00:00	23/8/2002	14:12:18	7539,09188	3835,13	3,9063	80,99	251,323
¹³³ Ba	1/1/1982	12:00:00	23/8/2002	14:12:18	7539,09188	3835,13	3,9063	276,39	44,212
¹³³ Ba	1/1/1982	12:00:00	23/8/2002	14:12:18	7539,09188	3835,13	3,9063	302,85	104,424
¹³³ Ba	1/1/1982	12:00:00	23/8/2002	14:12:18	7539,09188	3835,13	3,9063	356,02	294,475
¹³³ Ba	1/1/1982	12:00:00	23/8/2002	14:12:18	7539,09188	3835,13	3,9063	383,85	39,126
¹³⁷ Cs	1/1/1982	12:00:00	23/8/2002	15:54:41	7539,16297	11023,25	1,6065	661,646	487,882
⁶⁰ Co	1/1/1982	12:00:00	23/8/2002	13:47:53	7539,07492	1924,87	15,1020	1173,08	34,892
⁶⁰ Co	1/1/1982	12:00:00	23/8/2002	13:47:53	7539,07492	1924,87	15,1020	1332,33	31,063
¹⁵⁵ Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	1727,63	1,3669	86,54	17,15
¹⁵⁵ Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	1727,63	1,3669	105,31	14,648
¹⁵⁴ Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	3137,50	1,1878	123,07	30,644
¹⁵⁴ Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	3137,50	1,1878	248,04	3,183
¹⁵⁴ Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	3137,50	1,1878	591,75	0,865
¹⁵⁴ Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	3137,50	1,1878	723,31	2,964
¹⁵⁴ Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	3137,50	1,1878	756,88	0,635
¹⁵⁴ Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	3137,50	1,1878	873,21	1,496
¹⁵⁴ Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	3137,50	1,1878	996,35	1,142
¹⁵⁴ Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	3137,50	1,1878	1004,79	2,023
¹⁵⁴ Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	3137,50	1,1878	1274,42	2,995
¹⁵² Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	4784,775	1,1195	121,78	28,485
¹⁵² Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	4784,775	1,1195	244,69	4,763
¹⁵² Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	4784,775	1,1195	344,28	11,753
¹⁵² Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	4784,775	1,1195	444	1,16
¹⁵² Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	4784,775	1,1195	778,9	2,403
¹⁵² Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	4784,775	1,1195	964	2,191
¹⁵² Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	4784,775	1,1195	1112	1,763
¹⁵² Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	4784,775	1,1195	1212,94	0,168
¹⁵² Eu	5/7/2000	12:00:00	23/8/2002	10:04:43	778,91994	4784,775	1,1195	1408,03	2,182

(continua)

CPS à t ₀	Erro estatístico %	Atividade x fator de emissão do gama	Incerteza relativa da fonte %	Incert-tot %	Eficiência		log ener	log rend
335,6772	0,4	1,18E+05	10	10,01	0,2852		4,08748777	-1,25440588
981,7416	0,5	1,40E+05	10	10,01	0,7031		4,39432569	-0,35232109
172,7051	1,1	2,91E+04	10	10,06	0,5940		5,62181291	-0,52086121
407,9109	0,7	7,49E+04	10	10,02	0,5443		5,71323763	-0,6082042
1150,3060	0,4	2,54E+05	10	10,01	0,4531		5,87498691	-0,79170295
152,8377	1	3,64E+04	10	10,05	0,4194		5,95025185	-0,86902674
783,7890	0,2	3,35E+05	10	10,00	0,2338		6,49473067	-1,45335754
526,9404	1,6	3,78E+05	10	10,13	0,1396		7,06738805	-1,96929117
469,1147	1,6	3,78E+05	10	10,13	0,1242		7,19468457	-2,08553134
23,4416	0,6	2,72E+03	5	5,04	0,8610		4,46060673	-0,14970573
20,0217	0,7	1,82E+03	5	5,05	1,0995		4,65690838	0,09482352
36,3982	0,4	3,21E+03	5	5,02	1,1347		4,8127533	0,12641042
3,7807	1,4	5,46E+02	5	5,19	0,6918		5,51359002	-0,36842175
1,0274	3,6	3,96E+02	5	6,16	0,2595		6,38308425	-1,34918817
3,5206	1,8	1,58E+03	5	5,31	0,2223		6,5838379	-1,50391705
0,7542	4,5	3,56E+02	5	6,73	0,2116		6,62920472	-1,55293216
1,7769	2	9,66E+02	5	5,39	0,1839		6,77217608	-1,69336556
1,3564	2,3	8,32E+02	5	5,50	0,1631		6,9040986	-1,81331863
2,4029	1,6	1,44E+03	5	5,25	0,1667		6,91253384	-1,79156452
3,5574	1,1	2,77E+03	5	5,12	0,1283		7,15024645	-2,05312832
31,8876	0,4	2,66E+03	5	5,02	1,1970		4,80221614	0,17983216
5,3319	1,0	7,07E+02	5	5,10	0,7539		5,4999921	-0,28250078
13,1569	0,6	2,49E+03	5	5,04	0,5289		5,84145528	-0,63694696
1,2986	2,9	2,91E+02	5	5,78	0,4466		6,09582456	-0,80613843
2,6900	1,6	1,21E+03	5	5,25	0,2216		6,65788267	-1,50676166
2,4527	1,5	1,36E+03	5	5,22	0,1808		6,87109129	-1,71018448
1,9736	1,6	1,27E+03	5	5,25	0,1552		7,01391547	-1,8632637
0,1881	7,8	1,33E+02	5	9,26	0,1412		7,10080244	-1,95760449
2,4426	1,2	1,95E+03	5	5,14	0,1252		7,24994684	-2,07786742

(continuação)

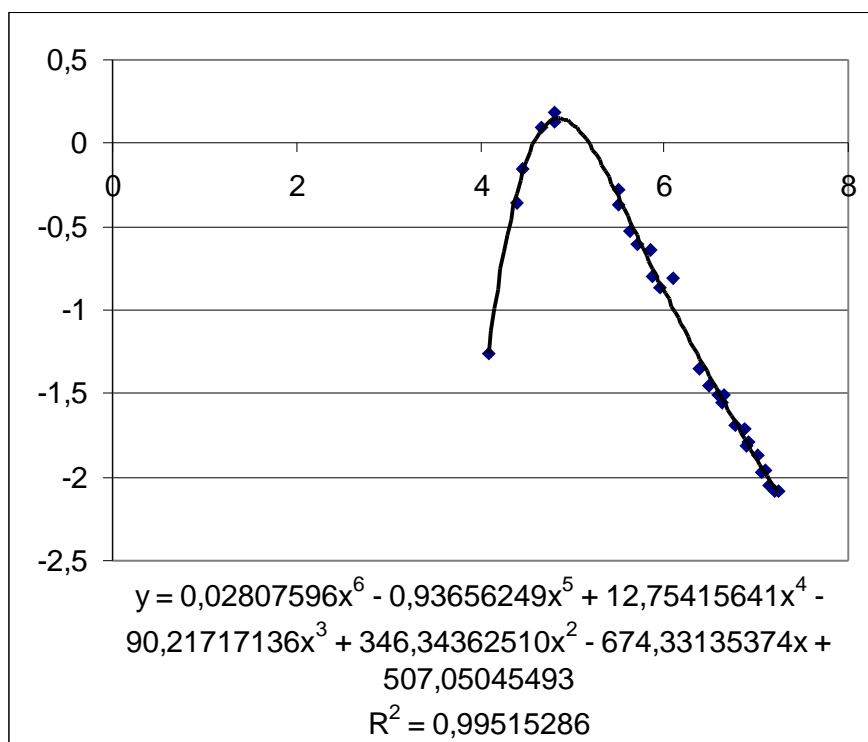


Figura 5-3 – Curva de eficiência obtida através da planilha Excel®

Nom de la courbe: 5CM .AUS Degré de la fonction: 3			Type de fonction:		
Energie [keU]	Efficac. [%]	Erreur [%]	Energie [keU]	Efficac. [%]	Erreur [%]
59.590	0.2852	10.01	964.000	0.1808	5.22
80.990	0.7031	10.01	996.350	0.1631	5.50
86.540	0.8610	5.04	1004.790	0.1667	5.25
105.310	1.0995	5.05	1112.000	0.1552	5.25
121.780	1.1970	5.02	1173.080	0.1396	10.13
123.070	1.1347	5.02	1212.940	0.1412	9.26
244.690	0.7539	5.10	1274.420	0.1283	5.12
248.040	0.6918	5.19	1332.330	0.1242	10.13
276.390	0.5940	10.06	1408.030	0.1252	5.14
302.850	0.5443	10.02	2754.000	0.0706	6.00
344.280	0.5289	5.04	4000.000	0.0407	10.00
356.020	0.4531	10.01			
383.850	0.4194	10.05			
591.750	0.2595	6.16			
661.646	0.2338	10.00			
723.310	0.2223	5.31			
756.880	0.2116	6.73			
778.900	0.2216	5.25			
873.210	0.1839	5.39			

F1 pour aide

Figura 5-4 – Entrada de dados para a calibração em eficiência no INTERGAMMA.

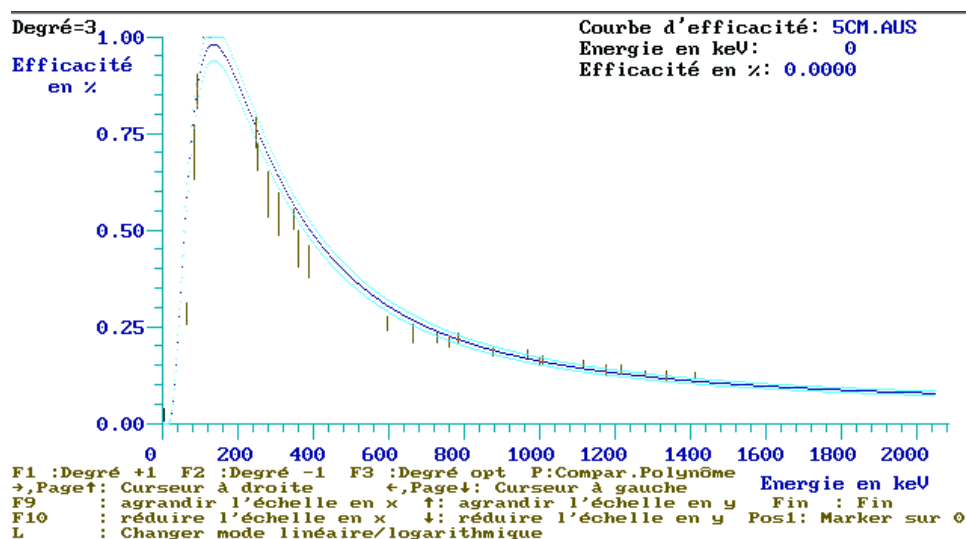


Figura 5-5 – Curva de calibração em eficiência gerada pelo INTERGAMMA.

EDITION DE LA COURBE D'EFFICACITE 5CM.AUS du 27.02.2003 10:46:26						
Fonction 3-�me degr�						
Efficacite=exp(+ 1.439E-01*LOG(E)^3 - 2.834E+00*LOG(E)^2 + 1.737E+01*LOG(E)^1 - 3.404E+01*LOG(E)^0)						
Erreur =exp(- 4.555E-02*LOG(E)^3 + 9.175E-01*LOG(E)^2 - 5.882E+00*LOG(E)^1 + 1.361E+01*LOG(E)^0)						
N�	Energie[keU]	Effi. [%]	Eff. calc. [%]	Delta [%]	Sigma [%]	Sig. calc. [%]
1	59.59	0.2852	0.5812	103.8	10.01	5.95
2	80.99	0.7031	0.8155	16.0	10.01	5.01
3	86.54	0.8610	0.8566	-0.5	5.04	4.87
4	105.31	1.0995	0.9464	-13.9	5.05	4.54
5	121.78	1.1970	0.9777	-18.3	5.02	4.37
6	123.07	1.1347	0.9788	-13.7	5.02	4.36
7	244.69	0.7539	0.7655	1.5	5.10	4.19
8	248.04	0.6918	0.7578	9.5	5.19	4.19
9	276.39	0.5940	0.6948	17.0	10.06	4.24
10	302.85	0.5443	0.6409	17.8	10.02	4.28
11	344.28	0.5289	0.5665	7.1	5.04	4.37
12	356.02	0.4531	0.5475	20.8	10.01	4.40
13	383.85	0.4194	0.5060	20.6	10.05	4.46

Continuer avec RETOUR ...

Figura 5-6 - Equa o da curva de efici ncia a 5cm encontrada pelo INTERGAMMA.

5.3 Cálculo dos Fluxos Térmicos e Epitérmicos do Reator TRIGA utilizando o software k_0 LABSUE:

Considerando a equação 43, foram realizados os procedimentos abaixo para o cálculo dos fluxos térmicos e epitérmicos do reator TRIGA do CDTN/CNEN a potência de 100 kW:

Irradiação de 8 horas ininterruptas de monitores de fluxo Au e Zr em 8 posições simétricas da mesa giratória do reator ;

Em cada posição foram colocadas em media 10 mg de um fio de liga de Au e Al com teor de 0,1% em Au, e 50 mg de uma folha de Zr de espessura ;

Apos irradiação e decaimento de 3 dias, estes monitores foram colocados um a um sobre o detector na geometria de 5cm e feitas a aquisição dos espectros em tempos de contagens suficientes para que os picos de ^{95}Zr e ^{97}Zr tivessem contagens equivalentes, fato que é importante para a estatística de contagem. São necessários pelo menos 10000 contagens em cada pico ;

Transformação dos espectros CNF em RPT (Genie 2000) e em .SPE (RPT TO SPE);

Os parâmetros α (alfa) e f foram calculados diretamente pelo programa k_0 LABSeUE, a partir dos espectros acima .SPE, e são mostrados a seguir:

12/ 1/2003 19:16: 4

CONDITIONS D'IRRADIATION

Isotope	Raie gamma	Asp	Err(2s%)	efficacit,
Au198	411.8	8.981079E+0008	0.80	4.05E-0003
Zr95	724.2	3.784956E+0004	2.03	2.23E-0003
Zr95	756.7	4.556172E+0004	1.71	2.14E-0003
Zr97	743.3	4.647723E+0004	0.70	2.17E-0003

Tir(H)	AspAu/Eff	f	a	Epi/Rap
12.0000	2.22E+11	35.19	-0.06796	1.7600
Flux neutroniques en n/cm2/s				
Thermiques		Epithermiques		Rapides
	5.119E+0011	1.455E+0010	8.265E+0009	

Chemin des spectres ... traiter
 C:\INTERPC\MAT•RI~1\
 Nom du fichier du moniteur d'or
 C:\INTERPC\MAT•RI~1\POS1-AU.SPE
 Nom du fichier du moniteur de zirconium

C:\INTERPC\MAT•RI~1\POS1-ZR.SPE

POS1-AU

Date de sortie de pile : 17/ 9/2002 20:18: 0

Date de comptage : 23/ 9/2002 8: 7:30

Quantit, d'echantillon : 0.012000 g

Detecteur : 1

Bibliothsque :
 nouveau.lib

keV/Canal : 0.4872600

OffSet : 2.5682000 keV Fenetre en energie : 2.0 keV

Q(keV/C**2):-1.4240E-0008 Sensibilit, RechPic: 3.0

Courbe d'efficacite : c:\kzero\effi\5CM.aus

Temps de comptage :

Reel : 901 secondes

Actif: 880 secondes

Fenetre en energie de 60 keV ... 2000 keV

Np	It	Energie	Aire	BdFond	Fwhm	Canal	Can.G	L	Cps/Sec	2S%
1	6	69.06	3226	14481	1.31	136.46	132	15	3.666	11.1
2	6	70.94	5072	12653	1.17	140.31	132	15	5.764	6.9
3	0	80.11	1893	15140	1.14	159.14	155	9	2.151	19.0
4	0	411.72	278145	17588	1.43	839.72	835	12	316.074	0.4
5	0	574.31	26	63	1.70	1173.43	1171	7	0.030	94.8
6	0	675.87	1339	131	1.75	1381.86	1375	14	1.522	6.0
7	0	703.07	15	19	1.16	1437.69	1435	7	0.017	94.7
8	0	906.17	6	6	2.46	1854.56	1852	6	0.007	141.4
9	0	936.02	4	3	1.48	1915.83	1914	6	0.005	158.1
10	0	969.60	7	0	1.91	1984.75	1981	8	0.008	75.6
11	0	1087.72	187	11	1.90	2227.20	2221	13	0.213	15.4
12	0	1189.37	6	0	1.13	2435.83	2432	8	0.007	81.6
13	0	1460.80	30	2	1.84	2992.99	2989	10	0.034	38.3

Au198	Periode =2.69	D	F.Decr =4.107	Code.Des =1			
Energie (keV)	E (keV)	Int.Rel	Aire nette	Eff	Teneur (ppm)	2S%	LdD (ppm)
411.80	-0.08	100.0	278145	4.05E-3	1.00E+03	0.4	2.55E+00

Teneur recommandee : 1.00E+03 ppm +/- 0.4 % en Or

POS1-ZR

Date de sortie de pile : 17/ 9/2002 20:18: 0

Date de comptage : 20/ 9/2002 10:24:59

Quantit, d'echantillon : 0.058200 g

Detecteur : 1

Bibliothsque :
nouveau.Lib

keV/Canal : 0.4872600

OffSet : 2.5682000 keV Fenetre en ,nergie : 2.0 keV

Q(keV/C**2):-1.4240E-0008 Sensibilit, RechPic: 3.0

Courbe d'efficacite : c:\kzero\effi\5CM.aus

Temps de comptage :

Reel : 4496 secondes

Actif: 4356 secondes

Fenetre en energie de 60 keV ... 2000 keV

Np	It	Energie	Aire	BdFond	Fwhm	Canal	Can.G	L	Cps/Sec	2S%
1	0	74.94	1182	61685	0.94	148.53	146	9	0.271	59.7
2	0	111.70	1621	59598	1.32	223.96	221	9	0.372	42.9
3	0	132.97	7281	71979	1.36	267.63	263	11	1.671	10.7
4	0	136.39	820	51352	0.92	274.65	273	8	0.188	78.5
5	0	218.82	2995	53728	1.40	443.82	440	10	0.687	22.2
6	0	254.14	16093	51445	1.33	516.31	512	10	3.694	4.3
7	0	272.28	2659	51042	1.13	553.54	550	10	0.610	24.3
8	0	294.30	809	39339	1.04	598.72	596	8	0.186	69.7
9	0	343.40	492	25628	0.84	699.50	696	6	0.113	92.5
10	0	345.53	549	25882	1.29	703.86	701	6	0.126	83.3
11	0	355.36	18161	49618	1.43	724.04	720	12	4.169	3.8
12	6	400.48	1790	23372	0.97	816.66	813	11	0.411	24.6
13	6	401.91	448	23421	0.97	819.58	813	11	0.103	97.1
14	7	480.80	888	29220	1.26	981.50	977	14	0.204	54.9
15	7	482.04	3522	28944	1.26	984.05	977	14	0.809	14.1
16	0	507.63	27343	50871	1.45	1036.57	1030	14	6.277	2.6
17	0	513.45	2318	35782	1.27	1048.51	1045	10	0.532	23.4
18	0	602.40	6992	19903	1.80	1231.08	1224	15	1.605	6.2
19	0	658.08	438682	14179	1.58	1345.36	1338	16	100.708	0.3
20	0	672.08	179	3485	1.56	1374.10	1371	7	0.041	94.4
21	0	690.56	1066	5608	1.62	1412.03	1406	12	0.245	20.8
22	0	698.94	470	3088	1.48	1429.22	1426	7	0.108	34.7
23	0	703.71	4366	6737	1.88	1439.01	1432	15	1.002	6.1
24	0	724.16	50342	7568	1.67	1480.98	1474	15	11.557	1.0
25	0	743.35	343526	7672	1.64	1520.36	1513	16	78.863	0.3
26	0	756.70	60599	3445	1.68	1547.78	1541	15	13.912	0.9

27	0	765.80	5933	2361	1.63	1566.46	1560	14	1.362	3.5
28	0	796.46	195	1642	3.77	1629.37	1625	12	0.045	60.5
29	0	804.53	2496	2067	2.03	1645.95	1639	14	0.573	6.5
30	0	829.93	675	1143	1.66	1698.07	1692	10	0.155	16.1
31	0	832.64	53	800	1.85	1703.63	1701	7	0.012	154.4
32	6	854.90	1137	1075	1.62	1749.32	1744	15	0.261	10.1
33	6	857.01	115	737	1.05	1753.66	1744	15	0.026	69.2
34	0	909.04	686	1592	1.71	1860.44	1854	16	0.157	18.1
35	0	971.54	854	987	1.89	1988.73	1983	14	0.196	12.5
36	4	1021.37	2939	615	1.79	2091.00	2084	22	0.675	4.4
37	4	1024.52	3107	604	1.84	2097.48	2084	22	0.713	4.2
38	0	1110.50	326	535	2.02	2273.96	2267	13	0.075	22.9
39	0	1116.71	221	717	2.10	2286.69	2279	17	0.051	36.8
40	0	1148.16	6050	615	1.86	2351.25	2344	15	1.389	2.8
41	0	1268.58	359	269	2.09	2598.43	2591	16	0.082	16.7
42	0	1276.31	1937	240	2.01	2614.29	2606	16	0.445	5.1
43	0	1295.74	8	67	0.28	2654.17	2652	4	0.002	311.2
44	0	1297.99	102	167	1.75	2658.80	2655	10	0.023	40.8
45	0	1305.79	22	174	0.70	2674.81	2671	12	0.005	174.9
46	0	1362.79	2253	240	2.03	2791.81	2782	18	0.517	4.6
47	0	1368.88	91	141	2.49	2804.30	2799	11	0.021	42.5
48	0	1402.17	49	111	2.29	2872.63	2869	8	0.011	66.7
49	0	1460.95	126	124	1.99	2993.28	2988	12	0.029	30.7
50	0	1515.61	249	208	2.37	3105.49	3098	15	0.057	20.7
51	0	1592.87	29	64	1.75	3264.08	3261	11	0.007	87.0
52	0	1629.50	59	85	2.24	3339.27	3334	17	0.014	51.3
53	0	1681.33	12	45	2.27	3445.67	3442	17	0.003	173.4
54	0	1750.65	1634	48	2.14	3587.94	3581	15	0.375	5.1
55	0	1763.94	21	17	2.58	3615.23	3611	10	0.005	69.3
56	0	1782.20	1	12	0.19	3652.72	3653	5	0.000	745.0
57	0	1826.62	10	1	0.90	3743.91	3741	8	0.002	72.7
58	0	1851.71	421	25	2.17	3795.40	3789	15	0.097	10.3
59	0	1980.73	3	5	2.97	4060.25	4060	6	0.001	240.4

Zr95 Periode=64.03 D F.Decr = 1.028 Code.Des = 1

Energie (keV)	E (keV)	Int.Rel	Aire nette	Eff	Teneur (ppm)	2S%	LdD (ppm)
724.20	-0.04	81.1	50342	2.23E-3	9.87E+05	1.0	7.70E+03
756.70	0.00	100.0	60599	2.14E-3	1.00E+06	0.9	5.04E+03

Teneur recommand,e : 9.97E+05 ppm +/- 0.9 % en Zirconium

Zr97 Periode = 16.74 H F.Decr = 13.093 Code.Des = 1

Energie (keV)	E (keV)	Int.Rel	Aire nette	Eff	Teneur (ppm)	2S%	LdD (ppm)
254.20	-0.06	26.9	16093	7.03E-3	9.58E+05	4.3	5.66E+04
355.40	-0.04	43.0	18161	4.80E-3	9.89E+05	3.8	4.88E+04
507.70	-0.07	100.0	27343	3.21E-3	9.57E+05	2.6	2.96E+04
602.40	0.00	28.0	6992	2.68E-3	1.05E+06	6.2	7.95E+04
703.70	0.01	20.0	4366	2.29E-3	1.07E+06	6.1	7.87E+04
1148.00	0.16	50.2	6050	1.48E-3	9.18E+05	2.8	1.72E+04

Teneur recommand,e : 9.65E+05 ppm +/- 3.4 % en Zirconium

5.4 Cálculo do Fluxo do Reator com Método Tradicional – Planilha Excel®

Os cálculos para a determinação dos fluxos de neutrons térmicos e epitérmicos do reator Triga Mark I, são feitos tradicionalmente através da planilha Excel.

Utilizando-se dos procedimentos descritos no item 5.3, faz-se necessário editar manualmente:

dados espectrais dos monitores de fluxos: ^{198}Au , ^{95}Zr e ^{98}Zr ;

os tempos de irradiação e decaimento de contagens;

energias e áreas correspondentes;

equação da curva de eficiência.

Os cálculos dos fluxos de neutrons térmicos e epitérmicos efetuados neste trabalho através da planilha Excel são mostrados abaixo. Em destaque estão indicados os valores de alfa, f e os fluxos.

EXPERIÊNCIA PARA DETERMINAÇÃO DOS PARÂMETROS NA MESA PARADA FLUXOS TÉRMICOS E EPITÉRMICOS, ALFA

Amostras de Au P1 0.1% de Au em Al
 Massa em g 1,20E-05
 1,20E-02
 Amostras de Zr P1
 Massa em g 5,82E-02

Tempo de irradiação: 8 horas

Potência: 100kW

Data: 17/09/02 - início: 8:18h - fim: 20:18h

Início da contagem: 19/09/02

Tempo de contagem: 1800 s

Geometria: 5 cm (detector DEN-UFMG)

Isotopo	Energia	Área	T. C.	T. R.	TD	Lambda	Dia de cont	Hora de cont	S	D	C	W
Au-198	411,8	293000	879,8	901,3	475650	2,97682E-06	23/9/2002		0,08216	0,242701	0,99866	1,21E-05
Zr-95	724,2	50400	4355,8	4495,5	224699	1,25293E-07	20/9/2002		0,003602	0,972239	0,999718	5,82E-02
Zr-97	743,32	345000	4355,8	4495,5	224699	1,15018E-05			0,281977	0,075437	0,974587	5,82E-02
Zr-95	756,73	60700	4355,8	4495,5	224699	1,25293E-07			0,003602	0,972239	0,999718	5,82E-02

-1,81E+01 1,32759E-08

Tesp	Energia	ln (En)	ln(Eff)	Eff	K0	sigma 0	Io	Er	alfa	Qo
1,35E+09	411,8	6,02E+00	-0,91	0,004026836	1	9,87E-23	1,55E-21	5,65	0,000892	15,7
5,50E+04	724,2	6,59E+00	-1,48	0,002270861	9,32E-05	5,30E-26	2,87E-25	6,26E+03		5,97
6,36E+04	743,32	6,61E+00	-1,51	0,002213241	1,30E-05	2,13E-26	5,28E-24	3,38E+02		280
6,63E+04	756,73	6,63E+00	-1,53	0,002174538	1,15E-04	5,30E-26	2,87E-25	6,26E+03		5,97

Qo(alfa)	lo(alfa)	so	so (alfa)	Isotopo	a	b	eq	num f	den f	f	R Cd
15,67589	1,55E-21	17,23153	17,20493	Au-198	1,13585329	1,18E+00	-1,41E-04	2,63E+01	0,845038659	3,11E+01	2,98E+00
5,926416	3,16E-25	6,252416	6,203841	Zr-95							
278,5508	5,96E-24	315,4618	313,8272	Zr-97							
5,926416	3,16E-25	6,252416	6,203841	Zr-95							

M	Energia	gama	ab isoto	R	térmico	epitérmico	ind esp	R2	relação	gLu	Isotopo
196,97	411,8	0,9556	1	1,1472E-10	7,72E+11	2,48E+10	0,0281	7,00E+35	0,00E+00	0	Au-198
91,22	724,2	0,442	1,74E-01	4,7794E-14				5,43E+35	0,00E+00		Zr-95
91,22	743,32	0,979	0,028	1,5886E-13				4,49E+36	0,00E+00		Zr-97
91,22	756,73	0,548	0,1738	4,8484E-14				5,51E+35	0,00E+00		Zr-95

5.5 Comparação de Amostras de Referência

Serão apresentados nas Tabela 5-2, Tabela 5-3 e Tabela 5-4 os resultados obtidos na aplicação do software K₀Labsue, das amostras de referencia Milk Powder (IAEA), Soil 3 (IAEA) e GBW083 (IAEA)

Tabela 5-2 Comparação de resultados obtidos entre o software K0LabSue e amostra certificada da AIEA

Elemento	Resultado Software K0LabSue (ppm)	Valor Certificado (ppm)	Intervalo de Confiança (ppm)
Na	4550±23	4420	4090-4750
K	15000±915	17200	16200-18200
Ca	10000±4730	12900	12100-13700
Br	10,2±0,5	NC	NC
Zn	43,0±2,0	38,9	36,6-41,2

Amostra de referência IAEA – Milk Pawder A-11

NC – Não certificado

Tabela 5-3 - Comparação de resultados obtidos entre o software K0LabSue e amostra certificada da AIEA

Elemento	Resultado Software K0LabSue (ppm)	Valor Certificado (ppm)	Intervalo de Confiança (ppm)
Na	6.460 ± 52	6690	6360 – 7020
K	10.200 ± 2.650	8740	7920 – 9570
Ca	108.000 ± 13.800	111.100	107.200 – 115.000
Sc	3,70 ± 0,14	3,91	3,64 – 4,18
Cr	31,5 ± 6,5	---	---
Fe	11.500 ± 1.150	---	---
C	3,08 ± 1,00	---	---
As	3,37 ± 0,56	3,2	3,0 – 3,4
Br	5,20 ± 0,80	5,63	4,84 – 6,42
Rb	38,7 ± 3,8	36,9	36,9-40,6
Sb	0,69 ± 0,12	0,56	0,46 – 0,65
Cs	1,5 ± 0,2	1,38	1,24 – 1,51
La	20,6 ± 0,5	22,5	21,6 – 23,5
Ce	45,4 ± 3,7	45,5	43,9 – 47,2
Nd	19,4 ± 2,0	21,5	20,0 – 23,0
Sm	3,83 ± 0,07	3,83	3,53 – 4,13
Eu	0,56 ± 0,11	0,66	0,64 – 0,67
Yb	2,05 ± 0,30	1,89	1,77 – 2,01
Hf	7,88 ± 0,60	9,1	8,51 – 9,69
Th	6,22 ± 0,60	7,02	6,54 – 7,5
U	2,81 ± 0,47	2,3	2,08 – 2,52

Amostra de referência IAEA – Soil 3

Tabela 5-4 - Comparação de resultados obtidos entre o software KOLabSue e amostra certificada da AIEA.

Elemento	Resultado Software KOLabSue (ppm)	Valor Certificado (ppm)
K	15.600 ± 1870	15.700 ± 1570
Ca	41.900 ± 4.600	47.900 ± 3350
Sc	9,19 ± 0,06	10 ± (NC)
Cr	110,00 ± 2,97	120 ± 12
Fe	25.700 ± 462	29.700 ± 2.079
Co	11,8 ± 6,0	13,0 ± 1,2
Zn	288 ± 20	260 ± 20
As	11,7 ± 0,3	10,6 ± 1,1
Br	6,15 ± 0,56	---
Rb	70,5 ± 9,7	NC
Sr	46,6 ± 10,6	---
Zr	224 ± 58	---
Sb	5,54 ± 0,10	---
Cs	4,8 ± 0,4	---
Ba	714 ± 47	NC
La	31,8 ± 0,2	NC
Ce	63,0 ± 10	---
Nd	22,3 ± 4,0	---
Sm	5,35 ± 0,02	---
Hg	3,39 ± 0,64	2,15 ± 0,13
Th	11,2 ± 0,4	11,6 ± 1,0
U	3,77 ± 0,19	NC

Amostra de referência IAEA – GBW08303 – Polluted Farmland Soil

6 DISCUSSÃO

Para a otimização da técnica de análise por ativação neutrônica instrumental e adequação do software k_0 LabSue – método paramétrico do k_0 , no laboratório de radioquímica do CDTN/CNEN, foi necessário o cumprimento de diferentes etapas de trabalho:

- ajustes das partes eletrônicas dos diversos equipamentos;
- calibração em Energia/canal;
- calibração da eficiência absoluta do detetor GeHP;
- adequação dos espectros .CNF gerados pelo programa Genie2000 da CANBERRA para espectros .SPE(Piccot,1987);
- inserção da curva de calibração em energia/canal no software INTERGAMA;
- inserção da curva de calibração em eficiência no software INTERGAMA;
- entrada manual dos parâmetros do espectro INTERGAMA: data e hora de aquisição e massa da amostra;
- cálculo do fluxo do reator TRIGA;
- cálculo dos parâmetros f e α ;
- geração de resultados através do software k_0 LABSUE.

Os resultados apresentados nos itens 5.3 e 5.4 dos fluxos de nêutrons térmicos e epitérmicos do reator Triga Mark I, são comparados na Tabela 6-1.

Tabela 6-1 -Comparação dos resultados encontrados pelo software K_0 Labsue e a Planilha Excel

	Resultados obtidos pelo software K_0 Labsue	Resultados obtidos pela planilha Excel
f	35,19	31,1
alfa	-0,06796	0,00892
Fluxo de nêutrons térmicos	5,119E11	7,72E11
Fluxo de nêutrons epitérmicos	1,455E10	2,48E10

O valor de alfa tem que estar entre $-0,1$ e $0,1$ e o valor médio do fluxo $\approx 6,6 \times 10^{11}$.

Em função da complexidade dos cálculos das equações envolvidas no método paramétrico do k_0 , mostrada pelas cap.2.1.1, a utilização da planilha Excel® exige

um conhecimento e experiência muito grande, para não introduzir dados de maneira errada, causando erros nos resultados. A utilização do software k_0 LABSUE simplifica e otimiza o método paramétrico do k_0 para obtenção dos resultados.

As Tabela 5-2, Tabela 5-3 e Tabela 5-4 mostram uma boa correlação entre os resultados encontrados nas amostras de referência com os valores certificados e ou estão dentro dos intervalos de confiança. Além disso, foram encontrados alguns elementos que não são citados ou certificados pela IAEA. É caso, por exemplo, dos elementos Br, Sr, Zr, La, Ce e Nd encontrados na amostra GBW80303.

Além dos excelentes resultados acima o software k_0 LABSUE permite também a visualização dos dados de características nucleares dos elementos, tais como: isótopos, meia vida, energias, fator k_0 , Q_0 , podendo-se ainda incluir ou editar outros elementos se necessário.

A escolha dos isótopos de maior interesse pode ser determinada em uma sub-rotina do programa k_0 LABSUE, o que permite o estudo de apenas alguns elementos quando necessário caso contrário a análise será feita em função de todos os elementos contidos no programa k_0 LABSUE.

7 CONCLUSÃO

Tendo em vista os resultados apresentados no capítulo 5 pôde-se avaliar os cálculos gerados pelo software k_0 LABSUE através da comparação das calibrações em energia/canal, e em eficiência, com os cálculos efetuados tradicionalmente através de planilha Excel®.

Dentro dos objetivos da pesquisa e dos resultados encontrados, expostos nesta Dissertação, conclui-se que:

Através das análises de materiais de referência foi confirmada a eficiência do método de INAA utilizando-se o software k_0 LabSue ao se encontrar resultados em concordância com os resultados certificados em amostras de referência da IAEA.

O software k_0 LabSue é mais uma ferramenta de cálculo para determinação de elementos na INAA em uma determinada amostra, de uma maneira mais prática visto que é possível fazer a análise quantitativa de vários elementos simultaneamente, presentes em uma amostra.

A adequação do software k_0 LabSue às condições de trabalho do CDTN/CNEN possibilitará a aplicação da INAA envolvendo menor tempo de cálculo e, principalmente, minimizando os riscos associados à inserção de dados manualmente na planilha Excel®.

A utilização do software K_0 Labsue permite em uma única irradiação de 8 horas fazer análises de elementos de $T_{1/2}$ média e longa o que acarreta uma economia substancial uma vez que não é necessário irradiações parciais de 4 horas e 16 horas convencionalmente utilizadas para meia-vida média e longa respectivamente.

O software K_0 Labsue permite efetuar com facilidade, segurança e certeza os cálculos básicos para utilização do método paramétrico K_0 : alfa, f e fluxos.

Pelo fato de podermos tratar os dados espectrais diretamente através do software K_0 Labsue, tem-se a certeza de minimizar os erros que podem ocorrer quando são inseridos manualmente no cálculo convencional através da planilha Excel.

O K_0 Labsue possibilitou também a determinação de elementos ainda não considerados nas análises por ativação neutrônica instrumental do CDTN/CNEN. Estes elementos são: Nd, Sm e Yb.

8 REFERENCIAS BIBLIOGRAFICAS

BRUNFELT, A.O., STEINNES, E, *Activation analysis in geochemistry and cosmochemistry*. In: NATO ADVANCED STUDY INSTITUTE., 1970, Kjeller. *Proceedings...* Oslo: Universitets forlaget., 1971. 467p.

BODE, P., BLAAUW, M., OBRUSNIK, I. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* .v.157, n.2, p.301-312, 1999.

CURRIE, L. A. Limits for qualitative detection and quantitative determination- application to radiochemistry. *Analytical Chemistry*. V.40: p.586-593, 1968.

DE CORTE, F.; HAMMAMI; K. SORDO. EL., MOENS, L. et al. The accuracy and precision of the experimental α determination in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal reactor-neutron spectrum. *Journal of Radioanalytical Chemistry*., v.62, n. 1-2, p.209-255, Oct..1980.

DE CORTE F.; MOENS L.; SIMONITS A.; SORDO EL-HAMMAMI; DE WISPELAERE A.; HOSTE J. The effect of the epithermal neutron flux distribution on the accuracy of absolute and comparative standardization methods in (n, γ) activation analysis. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, v.72, n^o 1-2, p.275-286, July.1982a.

DE CORTE, F.; MOENS, L.; SIMONITS, A.; DE WISPELAERE, A., HOSTE, J. The reaction $^{117}\text{Sn}(n,n')^{117\text{m}}\text{Sn}$ as a primary interference in (n, γ) neutron activation analysis. *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry*., v.179, n.2, p.255-263, Nov.1982b.

DE CORTE, F.; MOENS, L.; JOVANOVIĆ, S. et al. Applicability of the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal spectrum representation and the effective resonance energy E_r in NAA. *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry*., v.102, n^o 1, p. 37-57, December.1986a.

DE CORTE F., SIMONITS A., DE WISPELAERE A., HOSTE J. Accuracy and applicability of k_0 - standardization method, 7th international conference M.T.A.A. 1 : 581-597. 1986b.

DE CORTE, F. *The k_0 - standardization method*; A manual to the optimization of neutron activation analysis. Ryksuniversiteit Gent, Faculteit Van de Wetenschappen, 1986c. 464p.

DE CORTE, F. The traceability of the neutron activation analysis (NAA) k_0 standardization method. *Journal of Trace and Microprobe Techniques*., v.5, n^o 2-3, p.115-134, 1987.

DE CORTE F.; SIMONITS A.; DE WISPELAERE A.; ELEK A. , IIIb. k_0 measurements and related nuclear data compilation for (n, γ) reactor neutron activation analysis. *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry*., v.133, n.1, p.3-41.1989.

DE CORTE, F.; SIMONITS, A.; BELLEMANS, F. et al. Recent advances in the k_0 standardization of neutron activation analysis: extensions, applications, prospects. *Journal. Radioanalytical. Nuclear. Chemistry...*, v.169, n 1, p.125-158, Nov.1992.

DE CORTE, F.; BELLEMANS, F.; DE NEVE, P.; SIMONITS, A. The use of a modified Westcott formalism in the k_0 standardization of NAA: the state of affairs., *Journal. Radioanalytical. Nuclear. Chemistry...*, v.179, n p.93-103, Nov.1994.

DE CORTE, F.; MASUMOTO, K.; DE WISPELARE, A.; BELLEMANS, F. A dedicated NAA method to determine the neutron spectrum monitor elements Co, Au and Lu with high accuracy in alloyed wires and foils. *Journal Radioanalytical. Nuclear. Chemistry...*, v.192, n.1, p.91-96, 1995.

EHMANN, W; VANCE, D. E. *Radiochemistry and nuclear methods of analysis*. New York: John Wiley , 1991. 531p. (Chemical analysis, 116)

IHNAT, M. Biological reference materials for quality control of elemental composition analytical data. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. V.245,n.1,p.65-72,July 2000.

KNOLL G. F; *Radiation Detection and Measurement* –2.ed., Orlando:Academic Press, , 1988-754p.

MENEZES, M.A.B.C.; SABINO, C.V.S.; AMARAL, A.M.; MAIA, E.C.P. K_0 -NAA applied to certified reference materials and hair samples: evaluation of exposure level in a galvanising industry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, v. 245, n. 1, p.173-178, 2000.

MENEZES, M.A.B.C.; MAIA, E.C.P.; ALGINATI, S.; SABINO, C.V.S.; Assessment of occupational exposure and contamination means of airborne particulate matter and biomonitors using K_0 instrumental neutron activation analysis. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, v.254, n.3, p. 499-507,2002.

MAY, S. ; PINTE, G. Méthodes nucléaires d'analyse - analyse par activation neutronique. *Les techniques de l'ingénieur. Traité: Analyse chimique et caractérisation*. Paris :Centre français du Copyright., 1993, p-2565.

NEWTON, G. W. A. *Environmental radiochemical analysis*.. Londoni Society of Chemistry. 1999. 406p.

PICCOT, D. *Principe et possibilités de la méthode du K_0 en analyse par activation neutronique - adaptation au matériel Nuclear Data « COSYNUS 683 »*. 1987(*Rapport Technique CEA*. SEA n° 767),.

PICCOT, D., Deschamps, C., Delmas, R., Revel, G.. K_0 - Labsue: A quasi non-dependent data format package for K_0 - quantification. *Journal Radioanalytical Nuclear Chemistry* 1996

REVEL, G. Développements récents en analyse par activation - XXXI^e Conférence Bardy prononcée à la Société d'encouragement pour l'industrie nationale, 1973

REVEL, G. Analyse par activation. Extrait de la collection : *Techniques de l'ingénieur, traité analyse et caractérisation*, P 2 565-1-565-21, 1999.

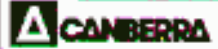
REVEL, G. L'analyse élémentaire dans le domaine des traces et des ultra-traces. 2. partie. *Analisis*;12; 506-513, 1984.

SABINO, C. DE V.S. *Participação no Regional workshop on applications of the k_0 and other parametric methods in neutron activation analysis*. Belo Horizonte: CDTN, 1995. 21p. (CNEN-RD-AT4-001/95).

VASCONCELLOS, M. B. A., et al.. Use of neutron activation analysis in the study of the composition of brasilian geological samples. In: INTERNATIONAL SYMPOSIUM NUCLEAR TECHNIQUES THE EXPLORATION AND EXPLOITATION OF ENERGY AND MINERAL RESOURCES. Vienna Proceeding of a symposium Vienna:IAEA -SM-308/92. 597-608, 1991.

VEADO, M. A. R. V. *Application de l'Analyse par Activation Neutronique et de la Spectrométrie de Masse Associée à un Plasma d'argon pour l'identification et le dosage des éléments métalliques apportés par les rejets miniers dans la rivière das Velhas-Brésil*. Ph.D. Thesis, Université de Paris XI - Orsay, 154p (in French). 1997b

Anexo 1 – Especificações do Detetor de Ge Ultrapuro - HPGe



DETECTOR SPECIFICATION AND PERFORMANCE DATA

Specifications

DETECTOR MODEL GC2020 SERIAL NUMBER 12063704

CRYOSTAT MODEL 7500SL PREAMPLIFIER MODEL 9000CSL

The purchase specification and therefore the warranted performance of this detector are as follows:
(Electric cooling may degrade performance by as much as 10%.)

Active Volume cc Relative Efficiency %

Resolution keV (FWHM) at 1.38 MeV
 keV (FWHM) at 1.38 MeV
 keV (FWHM) at
 keV (FWHM) at

Peak / Compton :1 Cryostat well diameter mm Cryostat well depth mm
 Cryostat description if special

Physical Characteristics

Geometry Closed-end coaxial

Diameter 62 mm Active Volume cc
 Length 31 mm Well Depth mm
 Distance from window 5 mm Well Diameter mm

Electrical Characteristics

Depletion voltage +10500 V dc
 Recommended bias voltage +13000 V dc
 Leakage current at recommended bias 0.01 nA
 Preamplifier test point voltage at recommended voltage -1.15 V dc
 Capacitance at recommended bias 1 pF

Resolution and Efficiency

With amplifier time constant of 4 microseconds

Isotope	⁶⁰ Co	¹³⁷ Co			
Energy (KeV)	122	1332			
FWHM (KeV)	0.77	1.83			
FWTM (KeV)	1.42	3.64			
Peak / Compton		47.6			
Rel. Efficiency %		14.1			

Cool Down Time 4 hours Cryostat Liquid Nitrogen Consumption Rate <1.8 Liters per Day.

Tested by: *Dennis Hayward* Date: December 5, 1998

Approved by: *Dennis Hayward* Date: December 5, 1998

800 Research Parkway, Meriden CT, U.S.A. 06450 Tel. 203-238-2351/Fax 203-232-1347

Anexo 2- Modelo de Detetores de Germânio Ultra Puro (HPGe) e Eletrônica Associada

A ionização produzida pela radiação nos detetores semicondutores é coletada como pulso elétrico, amplificada e registrada ou contada em um multicanal. O tamanho do pulso elétrico coletado no eletrodo do semicondutor é proporcional a energia depositada pela radiação, à qual o cristal foi exposto inicialmente (Knoll, 1988).

Os Detetores de germânio são diodos semicondutores que têm uma estrutura P-I-N (positivo, intrínseca e negativa) na qual a região Intrínseca (I) é sensível a radiação ionizante, particularmente aos raios X e gama.

Sobre uma polarização reversa, um campo elétrico é estendido através da região intrínseca ou das regiões vazias. Quando fótons interagem com o material dentro das regiões vazias do volume de um detector, portadores de carga (buracos e elétrons) são produzidos e arrastados rapidamente pelo campo elétrico para os eletrodos P (positivo) e N (negativo). Esta carga que é proporcional à energia depositada no detector pelo fóton é convertido em um pulso de voltagem por um pré-amplificador sensível a carga.

Devido a propriedade de baixa banda de lacunas (“band gap”) – 0,7eV; a operação do detector de Ge a temperatura ambiente é impossível, porque nesta temperatura ocorre correntes de fuga que induz ruído, interferindo na resolução dos picos de energia do detector (Knoll. 1988). O Nitrogênio líquido com temperatura de 77 °K, é o meio refrigerante comum para tais detetores, conseqüentemente o detector deve permanecer montado dentro uma câmara de vácuo preza ou inserida em uma garrafa de nitrogênio líquido chamada de “LN2 Dewar”. A superfície do detector, região muito sensível, fica assim protegida da umidade e contaminantes.

A Figura A2-1 mostra as várias geometrias de detetores que estão disponíveis pelo fabricante CANBERRA, e suas faixas de energias de trabalho. A Figura A2-2 ilustra o desempenho em eficiência de cada um destes detetores.

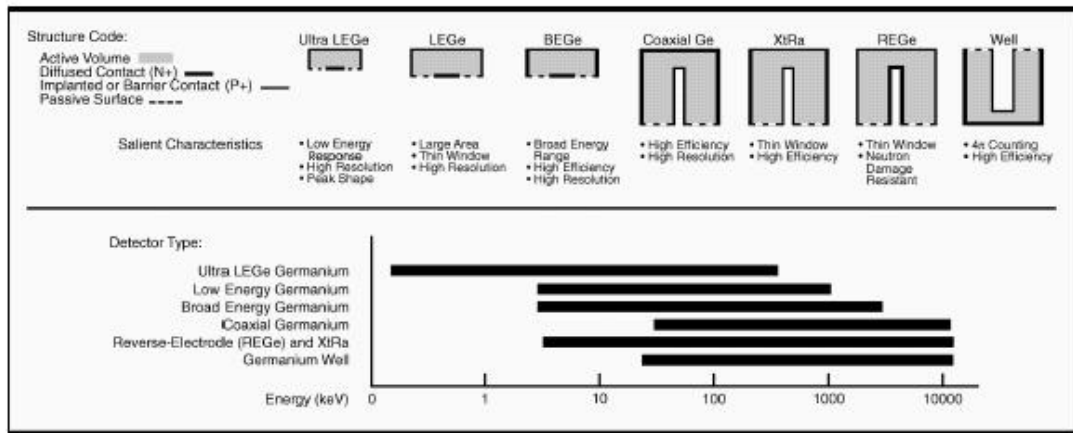


Figura A2-1 – Geometria dos detectores.

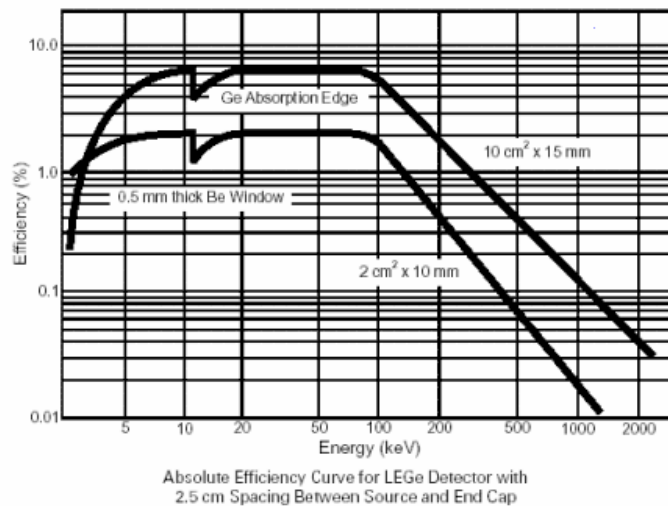


Figura A2-2 - Curva típica de eficiência absoluta para vários detectores de Ge (modelo CANBERRA)

No presente trabalho o detector utilizado foi do tipo Ge ultrapuro – GeHP, modelo GC 1020 da CANBERRA, com 14,1% em eficiência para o pico de energia de 1332 keV do ⁶⁰Co.

As especificações do detector são mostradas no Anexo 1.

O criostato consiste de uma camisa de vácuo onde é acondicionado o elemento detector mais uma garrafa (de parede dupla, a vácuo) separando o recipiente do nitrogênio líquido “criogênio”. Em alguns casos, a camisa do detector e a garrafa estão permanentemente conectadas. Estes são chamados criostatos integrados “dipstick”. Os criostatos têm uma camisa de vácuo do detector com um “dipstick” igual o dedo frio que é inserido no pescoço da garrafa.

O elemento detector é sustentado por um suporte, o qual esta eletricamente isolado, mas, termicamente conectado a um dedo frio de cobre. O dedo frio transfere o

calor do conjunto do detetor para o reservatório de nitrogênio líquido. O suporte do detetor é sustentado por um estabilizador anti-microfônico. O suporte do detetor assim como as camisas de vácuo exteriores (ou tampa) são finas para evitar a atenuação dos fótons de baixa energia. O suporte é geralmente feito de alumínio e tem 1mm de espessura. A tampa também é em alumínio com 1,5mm de espessura. A face do elemento detetor esta localizada tipicamente 5mm a partir da tampa, por isto deve-se ter cuidado para evitar empurrar a tampa contra o conjunto do detetor. Dois tipos de criostatos, modelos CANBERRA, são mostrados na Figura A2-3.

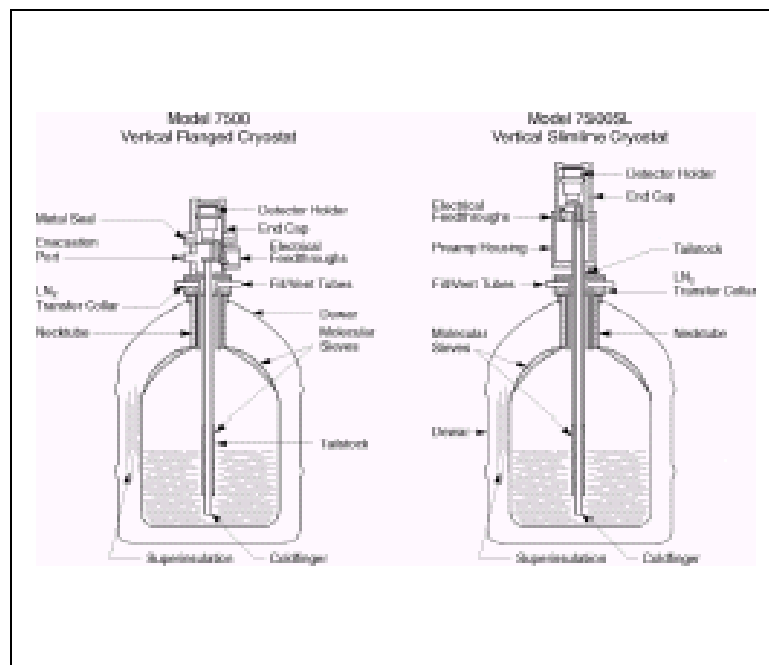


Figura A2-3 - Tipos de Criostatos (Modelo CANBERRA)

Há dois tipos básicos de pré-amplificadores em uso nos detetores de Ge.

- 1- Os pré-amplificadores sensíveis a carga, empregados em restauração de qualquer carga dinâmica (realimentação RC). Mais comum, usado na maioria das aplicações de Baixas Taxas de Contagem. Abaixo de 50K CPS
- 2- Os pré-amplificadores que se utilizam do método de reinício de restauração de carga para descarregar o integrador. Estes reinícios podem ser com luz pulsada de um emissor óptico de luz (LED) ou com um interruptor a transistor. Especial Para altas taxas de Contagem – Acima de 50K CPS

O diagrama em bloco mostrado na A2-4 descreve a realimentação RC convencional no pré-amplificador. A carga do detetor é coletada no nó de entrada do

primeiro amplificador de fase não balanceado, que tem um capacitor como o elemento de realimentação (com um resistor em paralelo). O equilíbrio do amplificador é restabelecido quando as mudanças na saída tornam necessário injetar carga oposta no nó "A" da Figura A2-4 através do capacitor de realimentação.

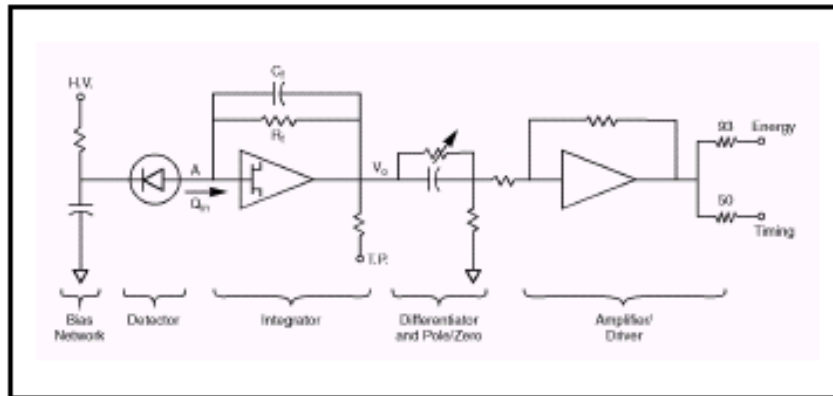


Figura A2-4 – Circuito típico de realimentação RC

O resistor de valor alto (R_f) descarrega o capacitor de realimentação (C_f) em função da constante tempo $R_f C_f$. O limite da taxa de energia do pré-amplificador é inversamente proporcional ao valor do resistor de realimentação como é mostrado na Figura A2-5.

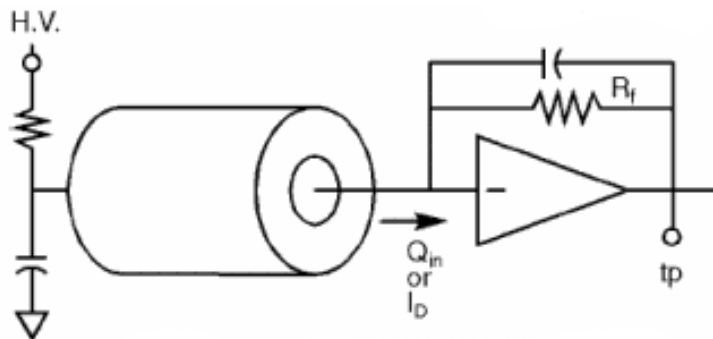


Figura A2-5 – Pré-amplificador com realimentação RC.

A saída do integrador é diferenciada e passa através de um amplificador que tem ganho ajustável. A saída é dividida e alimentada com 50 e 93 ohms para a temporização e energia de saídas respectivamente.

O resistor de realimentação nos pré-amplificadores RC é uma fonte de ruído. Para detetores de baixa energia onde o ruído eletrônico é o principal fator de

resolução, a eliminação do resistor de realimentação é desejável. Sem este resistor a saída do pré-amplificador é uma função de degrau a degrau sucessivos construídos até o limite de faixa da saída do amplificador, Figura A2-6.

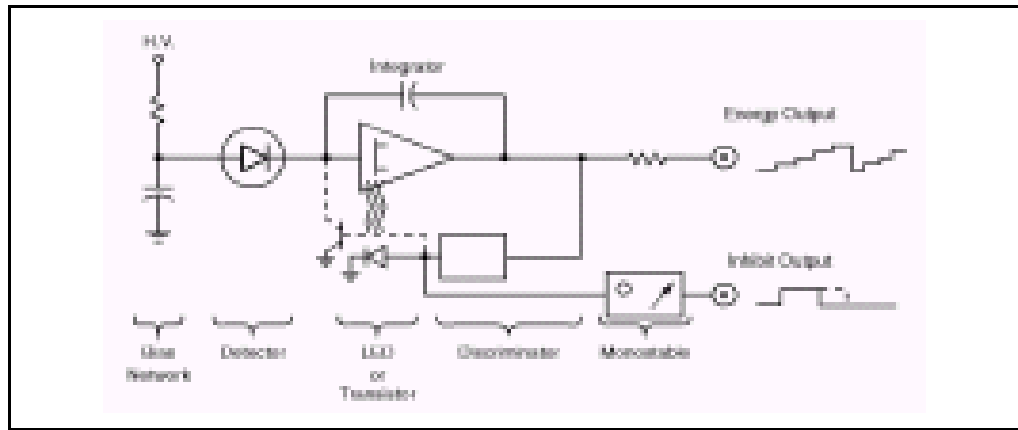


Figura A2-6 - Circuito pré-amplificador reiniciado a Pulso Ótico/Transistor

O pré-amplificador é reinicializado pela luz incidente de um LED próximo do FET, descarregando e reiniciando o circuito para sua condição inicial.

Um circuito mono estável gera um pulso de gatilho de duração variável que pode ser usado na porta do ADC (conversor analógico digital) durante o intervalo de reinicialização/recuperação se for necessário reduzir contagens espúrias no sistema.

Pré-amplificadores RC podem ser saturados quando são operados a taxas de altas energias (Figura A2-5). O transistor de reinício do pré-amplificador (TRP) virtualmente elimina o travamento uma vez que é capaz de descarregar o integrador rapidamente (<2 ms) e sem transientes longos que ocorrem na reinicialização. O pré-amplificador de pulso ótico (PO) e o TRP têm o diagrama de bloco muito parecido, mas o TRP é projetado para detectores que operam a taxas de energia altas enquanto o pré-amplificador de PO opera melhor com detectores de energia de ultrabaixo ruído.

Módulo Amplificador

O módulo amplificador (Figura A2-7) empregado tem as seguintes características:

- unipolar, bipolar, e portas de saídas integradoras;
- porta integradora de resolução otimizada versus ganho;
- compatibilidade com circuito RC e pré-amplificadores reiniciáveis por pulso;
- restaurador do disparo da linha de base com sintonia automática;

Restaurador simétrico de base de linha selecionável.



Figura A2-7 – Painel Frontal e Traseiro do Módulo Amplificador

Os ajustes necessários no amplificador para o seu funcionamento correto são o ajuste do formato do pico, a base de tempo e o pólo zero mostrados nas Figura A2-8, Figura A2-9, Figura A2-10 respectivamente como na visto na tela do osciloscópio.

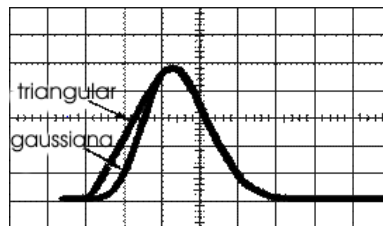


Figura A2-8 - Formato do Pico

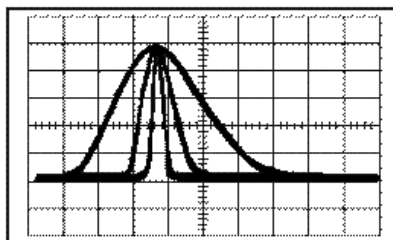


Figura A2-9 – Base de tempo (Saping Time) - Saída unipolar (10V)

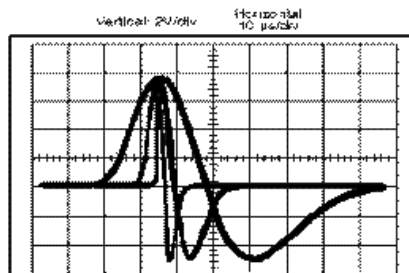


Figura A2-10 – Pólo Zero - Saída Bipolar (6V)

Sensor de Armar e Inibir a Alta Tensão

Detetores mais modernos podem ser equipados com um sensor de temperatura interno e circuitos associados que podem ser usados para desabilitar a corrente de polarização no caso de aquecimento acidental do detector. Esta função também é provida de um monitor de nitrogênio líquido (LN2) separado, como no Modelo 1786 da CANBERRA.

Em qualquer outro caso, a razão para escolha de tal proteção é a seguinte: quando um detector é aquecido, os espaços moleculares que normalmente atuam como uma bomba ou absorvedor a vácuo, liberará os gases que acumulou ou bombeou quando fria. A elevação de pressão resultante pode conduzir a uma descarga elétrica dentro do circuito de alta tensão dentro do criostato e desta forma danificar o FET dentro do pré-amplificador.

O Modelo 1786 (fabricante CANBERRA) sente o nível de nitrogênio líquido no Dewar e provê uma advertência antecipada de tal forma que LN2 pode ser repostado antes do detector começar a esquentar. O sensor interno não pode reagir até que ele se aqueça, assim, ao mesmo tempo em que isto prove uma proteção adequada para o FET, ele pode não prevenir com o tempo restante se por acaso um reabastecimento não ocorra imediatamente.

Fonte de alta tensão

A fonte usada em nosso trabalho é uma fonte CANBERRA modelo 3106D projetada para operar com detetores semicondutores. Ela é particularmente adequada para uso com sistemas detetores de alta resolução. Foi projetada para aceitar todos os tipos de detetores requerendo tensão de polarização acima de 6KV e uma corrente acima de 300 μ A. A tensão de saída desta fonte é ajustável continuamente de ± 30 V DC até ± 600 V DC. Para detetores de baixa tensão, tem uma saída secundária na faixa de ± 3 V DC até ± 600 V DC. Um voltímetro de três dígitos e mostradores de tensão de saída com uma resolução de 10 Volts na saída normal e 1 Volt na saída secundária. Sua polaridade é selecionada internamente.

Este modelo de fonte irá resistir a qualquer condição de sobrecarga ou curto circuito por um período indefinido de tempo. Uma entrada inibidora esta disponível para um rápido desligamento da fonte. Esta unidade pode ser programada internamente através de um “jumper” para recomençar a operação antes de remover o defeito ou inibir ou para requerer um reinicio (“reset”) manual. O tempo de subida na saída de 5 segundos protege

os pré-amplificadores e detetores de excessivos surtos de corrente enquanto estiver carregando.

O módulo de alta tensão é basicamente um amplificador DC/DC que converte uma baixa tensão DC de entrada em uma alta tensão DC de saída. Esta tensão de saída é altamente regulada e filtrada e, pode ser ajustada pelo controle de tensão no painel frontal. A amplificação da tensão é uma função de um controle de tensão o qual executa as funções de controle e regulação. Uma amostra de tensão é comparada com uma tensão de referência em um circuito sensível a diferença de tensões. O controle de tensão para ajustar e manter a alta tensão de saída fixa é controlada por este circuito. A Figura A2-11 mostra o painel frontal da fonte de alta tensão.

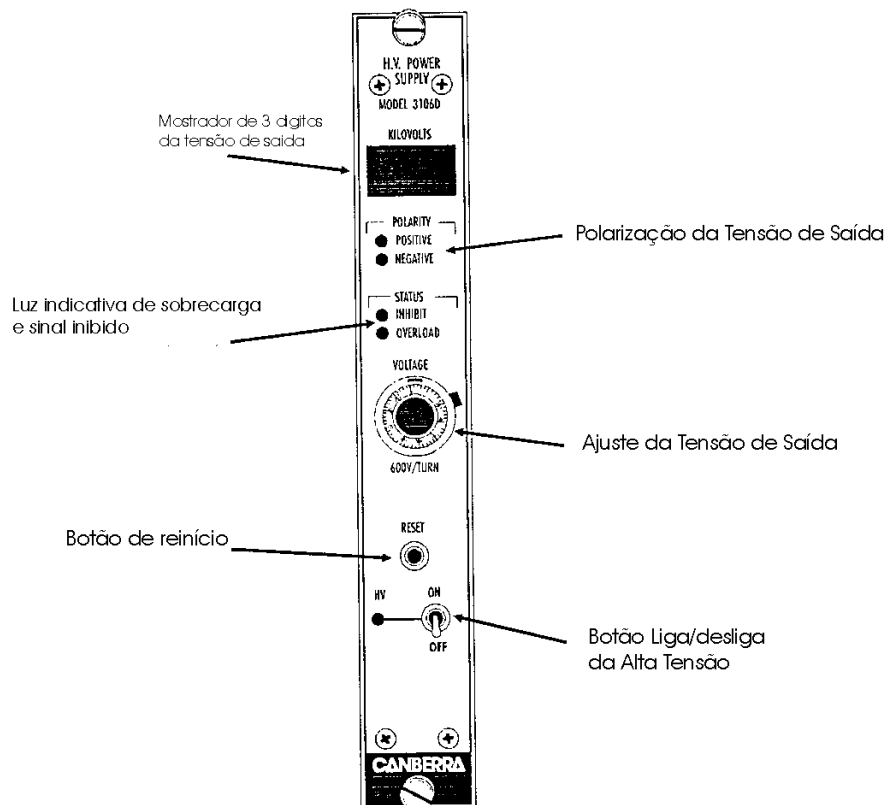


Figura A2-11 – Painel frontal da Fonte de Alta Tensão

Anexo 3 – Certificado de Calibração da Fonte Padrão de Európio.

Certificate of Calibration

MULTI-GAMMA RAY STANDARD

MGS-1

Serial Number: 1109 Type: 2" disk
 Calibration Date: 5-Jul-00 Julian Day: (245) 1731
 Total Activity: 26 100 Bq 0.705 µCi

This source has been calibrated with a HPGe detector for which the efficiency has been established with IAEA or NIST traceable standards. The gamma lines listed were measured to determine the stated activity as a weighted average with an uncertainty estimated at 5%.

Peak No.	Energy (keV)	Eu-152 13.6 y Photons/s	Eu-154 8.59 y Photons/s	Eu-155 4.76 y Photons/s
1	40.1 (SmKa)	5 440		
2	60.0			97
3	86.5			1 740
4	105.3			1 910
5	121.8 - doublet	2 670		
	123.1		3 200	
6	244.7	704		
7	344.3	2 500		
8	591.7		364	
9	723.3		1 560	
10	873.2		958	
11	1004.8		1 390	
12	1274.5		2 730	
13	1408.0	1 950		
14	1596.5		1 470	

* calculated

Activity (Becquerels)	9 380	7 920	8 840
Activity (Microcuries)	0.254	0.214	0.239
Half-Life (Days)	4.96E+03	3.14E+03	1.74E+03
Decay Constant (Days ⁻¹)	1.40E-04	2.21E-04	3.98E-04

Certified by: Carmen Jones Date: 7-5-00

TENNELEC, INC.

A CANBERRA COMPANY
 107 Union Valley Road
 Oak Ridge, Tennessee 37830, USA
 Telephone (865) 220-6300
 Fax (865) 483-0408

Anexo 4 – Manual de Operação do Software K₀LabSue.

AVERTISSEMENT

Dans l'état actuel de développement de ce logiciel la correction des effets dus aux coïncidences vraies n'est pas effectuée. Cela affecte sensiblement la précision de la teneur déterminée par la méthode du Ko pour un certain nombre d'isotopes. De ce fait, il est recommandé de travailler avec des angles solides de détection faibles (Sources éloignées du détecteur d'au moins 5 cm sinon plus).

MENU GENERAL

Permet de choisir parmi 8 fonctions à l'aide de la souris ou des clés de fonction (F1 à F8).

FONCTION "Aide"

Permet d'appeler un texte d'aide. Il est recommandé de ne pas modifier le texte sans concertation préalable avec les utilisateurs. Cliquer sur FICHER, puis QUITTER pour retourner au menu Ko.

FONCTION "Quitter"

Permet de quitter le menu général du logiciel.

FONCTION "DEF"

Permet de visualiser et accessoirement de modifier les fichiers de travail du programme. A chaque fichier correspond un N° logique (de 1 à 12). Seul ce numéro est reconnu par le logiciel ce qui permet de changer le nom d'un fichier sans modifier le programme.

Fonction attribuée à chaque fichier :

N° logique

- 1 : Fichier résultat de la recherche de pics.
- 2 : Fichier contenant la table des isotopes et les paramètres Ko correspondants.
- 3 : Fichier résultat des isotopes sélectionnés et des données correspondantes fournies par la recherche de pics.

- est
- 4 : Fichier texte contenant les paramètres suivants:
 - pourcentage minimum du total des intensités d'admission sélectionnées pour un isotope;
 - nombre de périodes maximum
 - { Ces 2 paramètres permettent de calculer la probabilité de présence d'un isotope dans le cas de la sélection automatique }
 - chemin des spectres à traiter;
 - extension des spectres à traiter;
 - Asp_Or;
 - Efficacité Or correspondante;
 - temps d'irradiation en secondes;
 - f;
 - alpha;
 - rapport flux n.thermiques/flux n.rapides;
 - flux n.thermiques;
 - flux n.thermiques;
 - flux n.rapides;
 - 5 : Fichier contenant les résultats lorsque l'option E est choisie dans le fichier OUTPUT.TXT;
 - 6 : Non attribué pour le moment;
 - 7 : Non attribué pour le moment;
 - 8 : Non attribué pour le moment;
 - 9 : Fichier texte d'aide à l'utilisation du logiciel;
 - 10 : Fichier texte du résultat du déroulement des tâches;
 - 11 : Fichier spectre à traiter;
 - 12 : Fichier de la courbe d'efficacité.

FONCTION "Déroulement des tâches"

Permet de visualiser le déroulement des appels aux différents modules dont est composé ce logiciel. En effet, le menu général est le chef d'orchestre qui appelle les fonctions au fur et à mesure des besoins.

C'est ce qui se nomme un "shell" (programme fils) en terminologie DOS.

Chaque appel est donc répertorié par :

- sa date et heure d'exécution (Cette date et heure apparaît également sur le listing de sortie sur imprimante);
- le message " Exécution du programme" suivi de la tâche à effectuer;
- éventuellement un message d'erreur DOS (Voir liste un peu plus loin dans le texte);
- puis le " message Exécution complète " si le shell s'est passé correctement.

Dans le cas de traitement de spectres en séquence, le nom du fichier apparaît avant l'exécution du module " Entête de spectre ".

POUR QUITTER LE FICHIER DE DEROULEMENT DES TACHES :

Cliquer sur Fichier, puis Quitter --> Retour au menu général.

MAINTENANCE DE LA TAILLE DU FICHIER :

La taille du fichier augmente en fonction des appels effectués. Il faut donc de temps à autre effacer le début du fichier en sélectionnant une partie du texte avec la souris en maintenant le bouton gauche enfoncé et en le relâchant lorsque la partie de texte sélectionnée convient. Il faut alors cliquer sur

EDITION

puis COUPER et enfin répondre OUI à la question ENREGISTER

MAIN-

TENANT lors de la sortie de l'éditeur de texte.

LISTE DES MESSAGE D'ERREUR :

N° de l'erreur

2 : Fichier introuvable
3 : Chemin d'accès introuvable
4 : Trop de fichiers ouverts simultanément
5 : Accès au fichier interdit
6 : Identificateur de fichier invalide
12 : Code d'accès fichier invalide
15 : Numéro d'unité de disque invalide
16 : Ne peut supprimer le répertoire courant
17 : Ne peut renommer de disque à disque
100 : Erreur disque en lecture
101 : Erreur disque en écriture
103 : Fichier non ouvert
104 : Fichier non ouvert en lecture
105 : Fichier non ouvert en écriture
106 : Format numérique invalide
150 : Unité de disque protégée en écriture
151 : Unité de disque non reconnue par le système
152 : Unité de disque non prête
153 : Commande inconnue
154 : Erreur d'intégrité des données lues
155 : Taille de la structure de communication-disque erronée
156 : Erreur de positionnement des têtes du disque
157 : Type de support magnétique inconnu
158 : Secteur non trouvé
159 : Erreur imprimante : détection de fin de papier
160 : Erreur d'écriture sur périphérique
161 : Erreur de lecture sur périphérique
162 : Erreur liée au matériel
200 : Division par zéro
201 : Erreur de dépassement d'intervalle
202 : Débordement de pile
203 : Débordement du segment de tas
204 : Opération sur pointeur invalide
205 : Débordement en virgule flottante
206 : Débordement inverse en virgule flottante
207 : Opération en virgule flottante invalide
208 : Gestionnaire de recouvrement de partiels non installé
209 : Erreur de lecture du fichier de recouvrement des partiels
210 : Objet non initialisé
211 : Appel à une méthode abstraite
212 : Erreur d'enregistrement de flux

213 : L'indice dans la collection est hors des limites
214 : D bordement d'une collection

FONCTION "R sultats"

Cette fonction permet d' diter les r sultats gr ce   un  diteur de texte.

L' diteur utilis  actuellement est celui du TURBO-PASCAL car c'est le

seul qui permette d' diter des gros fichiers. La consultation des pages

de r sultats peut  tre effectu e   l'aide de la souris et de l'ascenseur

ou bien   l'aide des fl ches verticales.

Si on d sire imprimer la totalit  du document, il faut cliquer sur :
 ■ File ■, puis ■ Print ■.

Si on d sire imprimer une partie du texte seulement, il faut s lectionner

le texte   imprimer avec la souris en cliquant au d but de la zone et en

ne relachant le doigt qu'  la fin de la zone. La zone   imprimer apparait-

tra en gris. Pour l'imprimer, il suffit d'appuyer sur les touches :
 CTRL , K et P.

Pour retourner au menu principal, il faut cliquer sur :

 ■ File ■, puis ■ Exit ■

ou bien d'appuyer sur les touches : Alt et X .

FONCTION "Editeur de la table des isotopes"

Permet la visualisation et la manipulation des donn es de la table des

isotopes. L'appel de cette fonction fait appara tre une fen tre conte-

nant une liste d'isotopes que l'on peut faire glisser en cliquant sur

un ascenseur. Cinq actions sont possibles   ce moment en cliquant sur

un bouton :

Editer : Edite l'isotope s lectionn  (Un double cliquage sur l'iso-
 tope s lectionn  a le m me effet);;

Ins rer : Ins re un nouvel isotope dans la table;

Supprimer : Supprime l'isotope s lectionn ;

Sauver : Sauve la table modifi e ;

Energies : Edite une nouvelle fen tre contenant la liste des  nergies

correspondant   l'isotope s lectionn . Cette fen tre con-

tient elle-m me des boutons identiques permettant les m -

mes actions, mais sur l' nergie s lectionn e cette fois.



FENETRE "Editer"



Visualise les parametres relatifs à l'isotope tels que :



- le nom de l'isotope
- l'element et l'origine de la formation de cet isotope
- la periode
- la valeur Q_0
- l'energie effective de resonance { E_r (eV) }
- le facteur de transmission "Cd" pour les irradiations

sous

- cadmium {F_Cd}
- le code de desintegration { Code_Des }
- un commentaire

Cliquer sur le bouton  Suite  permet d'editer des parametres supplémentaires lorsque le code de desintegration est différent de "1". Tous ces parametres sont susceptibles d'etre modifiés sauf le nom de l'isotope. Pour ce faire, on clique sur l'item à modifier. Le parametre apparait sur fond vert. La frappe d'une nouvelle valeur entrainera le remplacement de la valeur existante.

Cliquer sur le bouton  Sauver  permet de sauvegarder les nouvelles valeurs dans la collection en memoire vive de l'ordinateur.

Cliquer sur le bouton  Fermer  efface la fenetre avec controle des modifications éventuelles. Cliquer sur le petit carré vert en haut et à gauche de la fenetre a la même action.

FENETRE "Insérer"

Fait apparaitre une fenetre vide contenant les intitulés des parametres à renseigner. Un controle de validité est effectué sur chaque entrée. Il n'est pas possible de quitter si tous les champs de données ne sont pas renseignés. L'action de cliquer sur les différents boutons est la même qu'avec ceux de la fenetre "Editer".

FENETRE "Supprimer"

Supprime l'isotope de la liste en memoire. Une fenetre de confirmation invite les suppressions intempestives.

FENETRE "Sauver"

Sauve les nouvelles valeurs dans la table sur disque.

FENETRE "Energies"

Edite une nouvelle fenetre contenant la liste des energies correspondant
à l'isotope selectionné. Cette fenetre contient elle-même des boutons
identiques permettant les mêmes actions, mais sur l'energie selectionnée
cette fois.
Le paramètre associé à chaque energie est la valeur Ko.

POUR QUITTER L'EDITEUR DE LA TABLE DES PARAMETRES Ko

Il n'est pas possible de quitter l'editeur Ko si toutes les fenetres n'ont
pas été fermées. Pour effectuer rapidement cette action, on peut
cliquer sur
le petit carré vert en haut et à gauche de la fenetre active jusqu'à
effacement de toutes les fenetres.

ATTENTION!!! Il peut arriver que la table soit détruite lors de sa
manipulation. Si cela devait arriver, on peut restaurer la table
précédente sous DOS en procédant comme suit:

- se mettre dans le répertoire contenant la table;
- copier le fichier avec son nom suivi de l'extension OLD;

Exemple : le fichier table était BIBLK0.LIB donc
on tape :
copy BIBLK0.OLD *.LIB
et le fichier sera restauré dans sa version précédente.

FONCTION "Irradiation normale"

Permet le traitement des spectres avec la méthode du Ko lorsque les
échantillons ont été irradiés de manière classique, c'est à dire
sans
écran de cadmium. Un certain nombre d'écrans apparaissent permettant
de renseigner la procédure automatique de traitement. Il sera
toujours
possible de remonter à l'écran précédent en utilisant la touche
"Début".

[1] Ecran permettant d'entrer la date et l'heure du début
d'irra-
diation. Les fichiers spectre contenant la date et l'heure
de
fin d'irradiation, le programme sera donc en mesure de
calculer
le temps d'irradiation.
Les flèches et la touche entrée permettent de se déplacer
dans

les différentes fenêtres de cet écran. La touche effacement arrière détruit le contenu précédent permettant l'introduction de la nouvelle valeur. La touche FIN permet de passer à l'écran suivant.

[2] Pose la question de l'existence d'un spectre d'or pour le calcul de l'Asp_Or. La réponse O pour "oui" impose le choix d'un nom de spectre dans un répertoire et l'entrée de la teneur en OR en % de l'échantillon irradié. Si la réponse est N pour "non", on passe à l'écran suivant.

[3] Pose la question de l'existence d'un spectre de zirconium. Si ce spectre est le seul qui permette de monitorer la manip, il sera utilisé pour le calcul de l'Asp_Or. Si un spectre d'OR existe conjointement, le programme calculera les valeurs pour α et f. La réponse O pour "oui" impose le choix d'un nom de spectre dans un répertoire et l'entrée de l'épaisseur de la feuille de zirconium irradiée pour tenir compte de l'affaiblissement du flux des neutrons épithermique dans l'échantillon. Si la réponse est N pour "non", on passe à l'écran suivant.

[4] Pose la question de l'existence d'un spectre de fer. Si ce spectre est le seul qui permette de monitorer la manip, il sera utilisé pour le calcul de l'Asp_Or. La réponse N pour "non" impose l'entrée du rapport du flux des neutrons thermiques sur le flux des neutrons rapides. Ce paramètre n'est utile pour le calcul des teneurs par la méthode du Ko seulement dit, mais pour un calcul annexe des teneurs par les réactions à seuil. Si la réponse est O pour "oui" impose le choix d'un nom de spectre dans un répertoire, puis on passe à l'écran suivant.

[5] Cet écran peut exister ou ne pas exister suivant les choix faits préalablement. Il permet l'introduction manuelle des paramètres manquants tel α , f, Asp_Or ou efficacité pour l'Asp_Or.

[6] Cet écran permet de sélectionner dans un répertoire les fichiers à traiter. La frappe sur la barre espace a une fonction alter-

sous native permettant la sélection ou la désélection du spectre
le curseur suivant son état. La touche FIN permet de passer
l'écran suivant.

[7] Cet écran permet de déterminer les éléments dont on veut
obtenir la teneur ou la limite. La sélection s'effectue de la même
manière que l'écran précédent.
Si on ne sélectionne aucun élément, le programme établira
une probabilité d'existence des isotopes grâce au pourcentage
minimum du total des intensités d'admission sélectionnées pour un
isotope et au nombre de périodes maximum.

[8] Cet écran permet justement de donner une valeur à ces
paramètres.
Si on tape "l", on peut entrer la nouvelle valeur pour le
pourcentage minimum du total des intensités d'admission
sélectionnées pour un isotope.
Si on tape sur "u", c'est le nombre de périodes maximum qui
peut être changé.

[9] Les écrans suivants rappellent les choix effectués. Il est
toujours possible de revenir aux écrans précédents par la
touche "Début".

Après l'affichage du dernier écran, on passe aux calculs proprement
dits.

L'appel aux différentes tâches est matérialisé par l'affichage à
l'écran de la fonction en train de s'exécuter. Si un spectre est concerné
par le traitement, son nom s'inscrit en vert en haut de la fenêtre.

Sortie des résultats sur imprimante

[1] Un tableau rappelle les conditions d'irradiation ce qui
permet de vérifier que les paramètres sont corrects par rapport à
la position d'irradiation dans un réacteur donné.

[2] Une partie de l'histoire de chaque spectre est ensuite
imprimée dans un cartouche. La plupart des intitulés sont sans
ambiguïté
sauf:
keV/Canal : B de la courbe de calibration en énergie;
Offset : A de la courbe de calibration en énergie;

$Q(\text{keV}/\text{C}^2)$: C de la courbe de calibration en énergie;
avec $\text{Energie}(\text{en keV}) = A + BX + CX^2$

référence
la
moins
va-
utili-

Fenêtre en énergie :
Nombre de keV de chaque côté de l'énergie de
pour déterminer si cette raie est présente ou non;

Sensibilité RechPic :
Paramètre permettant de modifier la sensibilité de
recherche de pics. Plus cette valeur est grande,
les petits pics sont détectés et inversement. Une
leur égale à 3 devrait être le plus couramment
sée.

[3] Les résultats de la recherche de pics apparaissent ensuite.

La fenêtre en énergie pour la recherche est indiquée.

Signification des sigles en entête des colonnes :

Np : N° du pic dans l'ordre des énergies croissantes;
It : Nombre d'itérations dans le cas de déconvolution
de multiplet (0 dans le cas d'un pic simple);
Energie : Energie du pic en keV;
Aire : Aire nette sous le pic;
BdFond : Bruit de fond sous le pic (linéaire avec des bornes
délimitées par moyenne glissante sur trois canaux de
chaque côté du pic);
Fwhm : Résolution du pic en keV;
Canal : Canal sommet en canaux (barycentre);
Can.G : Canal gauche de la zone pic;
L : Largeur en canaux de la zone pic;
Cps/Sec : Nombre de coups par secondes;
?S% : Erreur statistique en % avec ? intervalles de confiance;
Fit : Chi² = indicateur de la qualité du fit d'une
déconvolution
idéal,
moins
diffi-

de multiplet (devrait être égal à "1" dans le cas
mais est fortement influencé par le contenu plus ou
important des canaux de la zone à déconvoluer d'où
cette interpréter);

[4] Les résultats du traitement des isotopes sélectionnés sont
dis-
posés comme suit :

- 1) Une ligne rappelle :
 - le nom de l'isotope;
 - sa période;
 - le facteur de décroissance depuis la sortie de pile;
 - le code de désintégration (permet de calculer l'Asp de l'isotope suivant la complexité de son schéma de désintégration).

2) Suivent des colonnes dont les intitulés ont la
signification

suivante :

- Energie(keV) : Energie de l'isotope trouvée dans la
table
des isotopes;
- δE (keV) : Différence en keV entre l'énergie détectée
par
des
La
valeur 100 est attribuée à la raie gamma la
plus émissive de l'isotope;
- Int.Rel : Intensité relative d'émission photonique.
Cette
spectre
raie
pro-
détecteur
de
de
est
de
inter-
L'iso-
ou
aire est celle déterminée dans le
au moment de la mesure;
- Eff : Efficacité absolue de détection pour la
gamma (de 0 à 1). Cette efficacité est le
duit de l'efficacité intrinsèque du
par l'angle solide de détection;
- Teneur(ppm) : Teneur en ppm de l'élément à l'origine
de
de
est
de
inter-
L'iso-
ou
la formation de l'isotope;
- σ % : Erreur statistique en % avec σ intervalles
confiance;
- LdD(ppm): Limite de détection en ppm. Cette valeur
déterminée par la formule de CURRIE avec le
bruit de fond sous le pic sur une largeur
3 résolutions. Elle est calculée avec un
niveau de confiance de 95%.

- 3) Les valeurs ou valeurs limites de chaque raies gamma de
l'iso-
tope sont utilisées pour déterminer une teneur recommandée
ou
une valeur limite recommandée

valeurs
relati-
plus
calcul

- Teneur recommandée : Calculée sur la moyenne des déterminées pondérées par les intensités relatives d'émission. Les valeurs s'écartant de plus de 10% de la moyenne sont rejetées et le calcul est effectué de nouveau.

limi-
va-
pas
sur
plus

- Valeur limite recommandée : C'est la plus basse des déterminées. Le programme indique cette valeur lorsque aucune teneur n'a été calculée (de pics) ou lorsque la teneur a été retenue sur un seul pic et qu'une limite a été trouvée plus basse sur un autre pic.

indica-
tif.

En tout état de cause, cette valeur n'a qu'un intérêt

4) Commentaire (facultatif) :

Rappelle le commentaire inclus dans la table des isotopes.

FONCTION "Irradiation sous cadmium"

Permet le traitement des spectres avec la méthode du Ko lorsque les échantillons ont été irradiés sous écran de cadmium. Les écrans du dialogue avec l'opérateur sont adaptés à ce mode d'irradiation. La possibilité de calculer α et f n'existe pas dans ce mode de fonction-
nement. Il faut donc les introduire manuellement.
La sortie de résultats est la même qu'avec l'irradiation normale.
Seul, un commentaire supplémentaire indique si l'isotope est favorisé avec ce mode d'irradiation.

Anexo 5 – Relatório de dados espectrais.

 ***** S P E C T R A L D A T A R E P O R T *****

***** Sample ID: Eu a 5cm *****

Elapsed Live time: 1556
 Elapsed Real Time: 1569

Channel	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----
1:	0	0	0	0	0	0	0	0
9:	0	0	0	0	0	0	0	0
17:	0	0	0	0	0	0	0	0
25:	0	0	0	0	0	0	0	0
33:	0	0	0	0	0	0	0	0
41:	0	0	0	0	0	0	0	0
49:	0	0	0	0	0	0	0	0
57:	0	0	0	0	0	0	0	0
65:	0	0	0	0	0	0	0	0
73:	0	0	0	0	0	0	0	0
81:	0	0	0	0	0	0	0	0
89:	0	0	0	0	0	0	0	0
97:	0	0	0	0	0	9	659	877
105:	844	865	838	788	817	763	796	793
113:	834	842	752	770	791	816	860	879
121:	850	824	836	832	790	880	785	809
129:	778	820	835	852	860	869	846	911
137:	854	921	922	944	974	931	1008	977
145:	1132	1244	1143	1026	1109	1247	1254	1161
153:	1074	993	1066	1003	1078	1140	1099	1124
161:	1098	1146	1125	1163	1253	1246	1331	1244
169:	1425	1512	1650	2288	6587	12367	8967	3054
177:	1241	1018	1002	1020	1079	1086	1113	1148
185:	1183	1138	1181	1216	1233	1251	1230	1289
193:	1288	1287	1326	1303	1297	1278	1317	1348
201:	1340	1325	1376	1393	1327	1244	1330	1328
209:	1352	1539	3618	9168	9867	4527	1530	1042
217:	948	1073	1069	1078	1057	993	989	1005
225:	998	994	1061	1049	1068	1051	1060	993
233:	1054	1063	1057	1113	1057	1068	1098	1102
241:	1183	1167	1317	2216	7995	18590	17825	17322
249:	20685	12222	3103	736	466	475	398	428
257:	402	414	384	404	409	410	395	394
265:	421	375	439	407	397	404	357	396
273:	407	387	391	368	415	382	419	398
281:	337	414	411	388	429	385	436	399
289:	393	408	373	414	402	425	412	431
297:	433	377	449	438	448	401	423	405
305:	423	448	423	409	407	410	408	382
313:	427	419	420	455	403	384	420	421
321:	412	418	380	424	383	418	402	385
329:	418	438	395	396	442	415	413	425
337:	417	396	430	419	406	410	423	418
345:	427	418	407	422	427	379	435	417
353:	405	419	428	416	394	399	397	442
361:	426	428	396	406	413	434	444	444
377:	440	408	427	422	445	474	502	435

385:	433	397	401	433	418	435	428	404
393:	393	432	420	472	438	429	384	424
401:	423	385	374	420	398	410	401	363
409:	363	359	348	392	381	340	385	377
417:	411	383	361	385	342	383	366	353
425:	345	371	348	346	386	390	328	377
433:	361	321	342	325	353	343	377	360
441:	379	362	339	320	386	326	311	342
449:	361	337	305	296	338	328	342	346
457:	300	341	334	319	293	327	295	346
465:	331	297	333	341	311	306	281	303
473:	316	339	279	295	288	285	288	308
481:	301	311	273	322	291	320	267	301
489:	296	302	342	298	296	321	359	514
497:	1503	2886	2740	1234	434	323	545	1400
505:	2045	1509	646	310	268	250	273	286
513:	287	297	295	259	267	249	285	271
521:	222	260	282	227	246	262	249	270
529:	238	265	247	225	264	226	253	282
537:	224	264	274	229	285	259	266	245
545:	270	241	270	265	238	251	268	312
553:	255	293	266	242	254	271	269	257
561:	260	261	249	257	253	245	263	233
569:	261	228	231	240	245	247	240	219
577:	219	260	243	235	245	243	215	257
585:	251	236	220	242	244	229	228	243
593:	236	235	249	241	218	237	222	230
601:	252	258	339	334	275	268	215	211
609:	267	251	238	241	208	269	241	219
617:	225	213	233	247	247	210	246	252
625:	237	231	244	242	209	237	230	217
633:	237	240	226	252	228	250	234	233
641:	222	227	223	224	238	233	229	238
649:	210	193	244	228	250	230	211	221
657:	223	255	222	252	202	239	231	207
665:	233	218	233	228	197	226	237	244
673:	217	213	221	220	208	225	225	207
681:	199	227	223	243	235	234	241	212
689:	246	185	217	239	217	247	220	219
697:	233	234	258	608	2367	5420	6504	3678
705:	1139	323	179	182	168	178	192	197
713:	190	164	167	169	170	180	172	163
721:	156	181	187	171	178	162	176	169
729:	179	162	186	157	149	169	183	175
737:	165	148	181	163	164	174	160	154
745:	166	176	182	195	227	318	360	292
753:	226	164	165	180	169	176	166	153
761:	153	173	175	172	153	178	176	157
769:	143	172	149	184	187	142	182	166
777:	157	200	211	168	170	144	169	157
785:	180	188	163	172	161	182	178	185
793:	171	154	149	138	183	179	155	141
809:	163	176	164	158	151	160	186	164
817:	164	173	200	212	193	163	146	169
825:	170	158	156	158	146	157	164	166
833:	146	163	135	146	173	279	476	596
841:	419	258	164	161	170	155	153	169
849:	149	185	163	171	150	127	165	149
857:	159	134	152	158	146	150	145	155
865:	149	153	138	125	129	150	137	167
873:	149	140	171	139	149	144	129	135

881:	137	150	160	165	155	147	133	150
889:	149	134	166	134	144	139	144	131
897:	135	155	145	158	126	159	158	172
905:	228	421	681	643	381	239	155	132
913:	131	147	155	148	148	152	145	156
921:	138	137	141	154	126	146	135	154
929:	140	120	131	157	146	144	147	132
937:	164	152	136	125	118	152	139	150
945:	127	146	118	148	160	128	137	137
953:	151	151	140	154	140	143	130	132
961:	140	123	145	143	131	153	142	153
969:	148	126	142	118	135	149	154	143
977:	148	165	133	155	143	130	111	132
985:	141	137	144	146	150	118	121	135
993:	151	143	138	151	172	179	187	221
1001:	165	139	146	155	141	153	152	153
1009:	140	146	162	130	152	118	155	150
1017:	144	156	144	138	142	151	154	151
1025:	124	126	151	161	170	158	149	144
1033:	147	150	141	160	155	139	126	147
1041:	139	155	173	161	160	155	147	142
1049:	133	127	170	146	119	142	136	130
1057:	152	159	157	168	138	136	137	154
1065:	145	133	136	147	128	162	137	126
1073:	144	162	132	155	133	131	132	141
1081:	127	160	136	165	146	149	122	128
1089:	154	146	144	148	141	141	136	121
1097:	128	131	150	139	142	134	134	134
1105:	137	119	135	140	140	114	131	137
1113:	132	137	122	117	145	158	138	122
1121:	132	162	133	139	129	140	130	116
1129:	130	145	108	136	130	118	137	144
1137:	143	142	118	152	148	143	138	139
1145:	146	139	119	123	111	126	143	145
1153:	179	183	168	164	138	141	140	131
1161:	144	143	125	136	125	131	119	131
1169:	136	111	134	129	131	109	127	145
1177:	138	126	109	124	115	145	102	134
1185:	139	143	125	149	181	179	217	171
1193:	164	126	130	139	136	151	157	167
1201:	151	122	120	116	121	135	117	146
1209:	293	451	538	368	212	134	117	106
1217:	121	119	110	123	127	112	114	110
1225:	135	126	99	90	109	114	95	108
1241:	93	111	130	119	105	105	118	124
1249:	157	115	96	130	105	129	109	115
1257:	112	101	114	110	104	118	113	101
1265:	102	107	100	105	95	102	110	107
1273:	100	120	107	101	114	109	123	128
1281:	126	108	98	91	106	119	107	116
1289:	105	112	92	112	114	108	112	116
1297:	115	107	104	122	116	105	98	123
1305:	102	114	100	112	116	103	106	95
1313:	109	95	111	106	124	95	112	101
1321:	105	103	115	112	112	135	112	105
1329:	105	111	111	119	104	105	108	110
1337:	91	116	112	118	117	104	136	126
1345:	130	108	114	128	111	113	117	122
1353:	112	116	114	132	99	106	129	126
1361:	98	110	103	107	96	107	111	117
1369:	95	121	109	120	128	92	111	117

1377:	104	92	119	109	118	126	104	113
1385:	108	126	138	136	139	128	137	106
1393:	95	108	107	109	95	89	110	98
1401:	98	109	98	100	100	98	103	144
1409:	173	169	154	121	89	104	116	174
1417:	203	209	161	135	101	102	102	109
1425:	98	93	90	106	93	82	97	102
1433:	103	104	95	107	97	93	96	114
1441:	86	109	104	97	106	94	94	102
1449:	96	94	110	88	97	98	97	92
1457:	105	118	98	103	117	95	117	107
1465:	104	125	104	103	107	92	113	143
1473:	116	130	137	90	174	258	670	1147
1481:	1398	1059	504	185	128	100	87	110
1489:	99	95	91	90	108	98	95	110
1497:	90	103	107	87	95	83	86	91
1505:	101	103	79	127	104	118	95	107
1513:	94	92	102	87	95	80	109	98
1521:	103	100	96	100	99	109	105	102
1529:	103	81	81	98	103	92	91	109
1537:	108	100	102	97	109	89	112	108
1545:	109	119	141	266	347	346	272	171
1553:	116	96	103	121	88	94	113	116
1561:	100	78	84	135	110	91	115	105
1569:	87	105	91	118	89	106	101	99
1577:	107	83	101	102	96	106	79	76
1585:	86	96	106	77	100	105	138	249
1593:	539	886	1089	910	499	210	119	103
1601:	86	110	92	93	113	90	90	102
1609:	102	95	87	102	103	81	86	97
1617:	103	110	105	87	82	97	114	74
1625:	86	80	102	98	87	87	95	75
1633:	93	97	76	98	77	87	71	82
1641:	86	98	84	83	83	75	72	81
1649:	88	96	83	82	84	78	69	99
1657:	88	94	111	103	86	81	89	79
1673:	68	68	86	71	73	77	81	69
1681:	71	83	83	73	81	87	67	62
1689:	70	86	75	91	90	72	79	72
1697:	63	75	75	81	80	83	65	86
1705:	94	83	70	72	79	94	71	100
1713:	92	78	74	76	81	83	77	73
1721:	79	56	80	65	89	67	86	71
1729:	92	91	109	95	107	91	74	66
1737:	89	70	79	66	84	96	78	76
1745:	77	76	79	77	69	93	78	81
1753:	81	91	64	76	86	82	90	63
1761:	74	80	81	74	66	70	63	80
1769:	78	71	65	76	107	159	225	335
1777:	358	259	156	115	86	73	68	81
1785:	120	241	425	635	661	456	273	109
1793:	81	78	92	63	65	63	67	62
1801:	85	76	79	70	75	79	51	79
1809:	69	64	73	77	58	73	65	54
1817:	65	74	70	73	61	72	64	61
1825:	60	71	94	100	79	85	80	59
1833:	60	60	59	66	74	52	47	52
1841:	57	64	60	49	72	76	69	75
1849:	74	78	130	99	91	74	74	54
1857:	59	55	48	54	55	55	55	55
1865:	36	54	48	60	59	50	59	42

1873:	46	51	53	52	48	51	56	67
1881:	55	74	79	90	73	68	40	54
1889:	61	56	50	51	49	52	66	81
1897:	63	57	60	53	49	46	63	63
1905:	50	58	59	60	61	51	49	51
1913:	48	55	38	56	61	40	35	57
1921:	61	47	45	45	37	66	57	51
1929:	49	56	38	54	62	49	49	54
1937:	56	47	57	59	43	51	50	57
1945:	49	50	59	65	57	48	49	55
1953:	44	61	63	56	62	48	47	60
1961:	49	55	39	49	56	40	33	47
1969:	51	72	97	195	443	674	945	734
1977:	483	222	90	48	48	68	44	53
1985:	45	58	45	54	55	42	54	52
1993:	63	48	61	47	42	41	44	54
2001:	35	43	40	49	47	55	62	46
2009:	50	43	51	58	44	45	52	46
2017:	40	46	46	48	38	52	55	39
2025:	52	52	40	57	52	55	49	57
2033:	50	53	54	56	62	107	211	378
2041:	465	428	262	147	77	70	59	57
2049:	47	48	42	56	51	55	121	257
2057:	527	761	835	590	354	144	67	59
2065:	49	46	46	37	45	50	40	44
2073:	42	51	58	40	43	42	43	49
2081:	51	50	54	60	50	39	51	44
2089:	61	32	61	39	46	42	50	35
2097:	43	50	57	47	55	48	38	42
2105:	52	53	41	42	54	40	61	43
2113:	52	54	33	50	53	41	53	38
2121:	31	54	62	47	55	46	53	42
2129:	51	55	47	58	55	48	40	47
2137:	39	47	55	53	35	74	60	58
2145:	53	65	55	64	58	56	60	50
2153:	47	53	56	40	48	52	48	48
2161:	38	53	49	50	37	51	48	45
2169:	44	46	58	43	42	38	36	48
2177:	39	41	51	39	38	45	49	34
2185:	44	38	37	38	40	36	32	45
2193:	34	35	38	41	43	34	30	36
2201:	35	38	40	49	41	43	41	36
2209:	32	42	39	34	34	47	42	32
2217:	46	34	35	48	76	146	301	474
2225:	518	458	300	137	64	59	80	87
2233:	120	114	80	66	45	23	32	43
2241:	38	31	25	42	42	27	28	39
2249:	41	35	40	32	34	35	27	41
2257:	28	33	36	30	30	38	35	33
2265:	47	40	36	27	39	31	41	53
2273:	47	42	92	189	375	574	682	586
2281:	334	168	59	38	40	27	28	33
2289:	28	27	39	33	36	25	40	34
2297:	31	36	32	32	26	34	45	42
2305:	34	34	35	25	32	35	40	44
2313:	33	50	41	33	34	26	28	34
2321:	32	36	27	21	31	37	22	29
2329:	26	27	32	28	37	36	29	30
2337:	29	26	35	31	34	36	32	35
2345:	18	18	24	30	25	37	35	22
2353:	28	24	31	21	29	20	20	19

2361:	37	34	34	27	30	29	28	36
2369:	37	24	37	34	26	24	29	33
2377:	34	32	28	24	40	19	33	29
2385:	24	31	23	26	43	33	35	34
2393:	21	31	24	22	27	32	31	30
2401:	27	27	27	28	34	35	37	32
2409:	17	27	28	25	28	34	24	25
2417:	27	31	31	24	26	29	24	27
2425:	26	21	23	30	30	21	26	22
2433:	28	21	30	26	26	23	29	24
2441:	15	19	30	22	25	23	31	12
2449:	21	20	21	19	19	18	15	13
2457:	15	22	16	16	21	21	18	18
2465:	19	12	17	23	21	14	16	24
2473:	18	21	25	15	16	19	14	10
2481:	13	21	38	45	72	75	61	42
2489:	29	29	19	19	15	20	18	15
2497:	17	13	20	19	12	21	14	17
2505:	17	17	16	12	19	19	23	13
2513:	17	21	20	11	13	14	20	8
2521:	17	14	22	18	11	15	13	16
2537:	9	14	15	17	13	15	17	18
2545:	17	15	13	13	14	14	19	31
2553:	27	43	34	26	19	21	11	16
2561:	18	16	22	15	12	16	13	10
2569:	6	7	22	18	21	14	10	12
2577:	12	15	13	20	9	13	9	14
2585:	18	9	15	9	15	8	17	12
2593:	12	17	15	9	15	10	10	13
2601:	9	19	13	8	19	17	36	107
2609:	227	471	820	1002	973	639	344	125
2617:	35	10	8	12	13	5	7	6
2625:	5	10	8	4	10	8	2	12
2633:	10	4	7	11	12	7	7	7
2641:	9	9	7	2	10	5	7	10
2649:	12	17	13	12	12	12	8	6
2657:	4	10	12	29	50	64	67	46
2665:	42	19	6	9	2	8	9	7
2673:	4	7	11	2	3	4	8	8
2681:	5	4	8	6	1	5	3	4
2689:	2	10	5	5	7	4	3	10
2697:	2	5	2	8	2	2	6	9
2705:	5	3	6	7	3	5	3	6
2713:	4	5	3	5	3	4	3	6
2721:	2	6	3	6	8	2	2	4
2729:	2	6	5	7	2	3	8	2
2737:	2	6	6	1	3	5	1	5
2745:	7	8	4	1	4	4	5	6
2753:	3	7	2	5	7	6	3	5
2761:	6	15	8	2	6	4	4	4
2769:	4	2	3	2	5	3	6	5
2777:	3	3	3	4	2	5	0	2
2785:	2	3	5	1	4	5	3	3
2793:	4	3	6	4	8	3	3	3
2801:	2	5	7	4	5	2	5	7
2809:	6	2	7	4	1	3	4	2
2817:	7	3	4	4	2	4	3	8
2825:	5	4	2	4	3	4	4	1
2833:	8	5	6	4	8	1	2	7
2841:	3	3	6	2	2	6	4	4
2849:	5	4	6	3	5	2	8	6

2857:	0	3	4	3	2	4	9	9
2865:	10	11	3	9	3	6	4	4
2873:	2	3	2	5	5	4	3	11
2881:	23	60	162	342	563	718	699	469
2889:	268	120	31	8	4	6	1	3
2897:	4	3	2	2	4	1	3	4
2905:	2	2	6	0	3	1	0	1
2913:	2	2	1	3	2	1	2	3
2921:	3	1	0	1	0	2	1	0
2929:	0	2	1	3	0	4	1	2
2937:	2	0	3	4	2	3	0	0
2945:	2	1	3	1	3	2	1	1
2953:	0	1	2	1	3	2	1	1
2969:	1	1	2	5	1	3	1	1
2977:	2	1	0	0	2	0	0	2
2985:	5	9	8	15	18	17	8	7
2993:	11	8	9	10	8	1	1	1
3001:	1	2	1	1	0	2	1	3
3009:	0	0	1	1	0	0	1	0
3017:	0	2	0	2	2	1	1	2
3025:	3	1	0	1	1	3	0	0
3033:	0	0	1	0	1	3	1	1
3041:	0	0	2	0	0	0	1	2
3049:	1	2	2	1	1	1	3	1
3057:	0	1	2	8	12	11	20	15
3065:	14	6	1	0	1	2	1	1
3073:	1	0	3	0	0	3	0	2
3081:	1	1	4	0	1	0	0	1
3089:	1	1	0	0	1	0	1	1
3097:	2	1	0	0	0	1	1	0
3105:	0	0	1	1	2	0	0	0
3113:	1	1	2	0	0	3	2	0
3121:	1	3	2	2	0	1	3	1
3129:	5	3	8	7	13	5	9	14
3137:	3	4	3	1	0	3	1	0
3145:	0	0	1	0	1	3	2	1
3153:	2	0	1	1	0	1	0	1
3161:	0	2	1	0	2	0	1	0
3169:	0	0	0	0	2	1	2	0
3177:	0	0	0	0	1	0	1	0
3185:	1	1	0	1	0	0	1	0
3193:	0	1	0	1	1	0	2	0
3201:	0	0	1	0	1	1	0	0
3209:	0	0	1	0	0	0	2	1
3217:	1	0	0	0	1	0	0	2
3225:	1	2	0	1	0	0	0	0
3233:	0	0	1	0	0	0	1	0
3241:	0	1	0	0	1	0	0	1
3249:	1	0	0	0	0	0	0	0
3257:	1	1	0	0	0	0	0	0
3265:	1	1	3	1	7	12	19	22
3273:	37	34	26	6	3	2	0	3
3281:	0	0	0	0	1	0	0	1
3289:	1	0	0	1	0	0	1	0
3297:	0	1	2	0	1	0	0	2
3305:	0	0	0	2	0	0	1	0
3313:	1	1	0	1	1	1	1	0
3321:	2	0	0	0	0	1	0	1
3329:	0	0	0	1	0	1	0	0
3337:	0	1	0	0	0	0	0	0
3345:	1	0	0	1	0	1	0	1

3353:	0	1	0	1	1	1	0	0
3361:	0	0	0	0	0	2	0	0
3369:	0	1	0	2	0	0	0	1
3377:	1	0	1	0	1	0	1	0
3385:	0	1	1	0	0	2	0	0
3393:	1	0	1	0	0	0	0	1
3401:	0	0	0	0	1	0	0	0
3409:	0	0	0	0	0	1	0	0
3417:	0	0	0	0	0	0	1	0
3425:	2	0	1	0	0	0	0	0
3433:	0	0	0	0	0	0	0	0
3441:	0	0	1	1	0	1	0	0
3449:	1	0	0	0	0	0	0	1
3457:	0	1	1	0	0	0	1	0
3465:	0	0	0	1	1	0	1	0
3473:	0	1	0	0	0	0	0	0
3481:	0	0	0	0	0	0	1	0
3489:	0	0	0	0	2	0	0	0
3497:	0	0	0	0	0	0	0	0
3505:	0	1	1	0	0	0	0	0
3513:	0	0	1	0	2	0	0	2
3521:	1	1	2	1	1	2	2	1
3529:	2	0	1	0	1	0	0	1
3537:	0	0	1	1	2	1	0	0
3545:	1	0	0	0	0	0	0	0
3553:	0	0	0	1	0	0	0	0
3561:	0	0	1	1	1	1	0	0
3569:	0	0	0	0	0	0	0	0
3577:	0	0	0	0	1	0	0	0
3585:	0	0	0	0	0	0	0	0
3593:	0	0	0	0	0	0	0	0
3601:	0	1	1	2	1	1	2	2
3609:	1	0	0	1	0	1	0	1
3617:	1	1	1	0	0	0	0	4
3625:	0	0	0	0	0	0	0	0
3633:	0	0	0	0	0	0	0	0
3641:	0	0	0	0	0	0	0	0
3649:	1	0	0	0	0	0	0	0
3657:	1	1	1	0	0	0	0	0
3665:	0	0	0	1	0	0	0	0
3673:	0	0	0	0	0	0	0	1
3681:	0	0	0	0	0	0	1	0
3689:	0	0	0	0	0	0	1	0
3697:	0	0	0	1	0	0	1	0
3705:	1	0	0	0	0	0	0	0
3713:	0	0	0	0	0	0	0	0
3721:	0	0	0	0	0	0	0	0
3729:	0	0	0	0	0	0	0	0
3737:	0	0	1	0	0	0	0	0
3745:	0	0	0	1	0	0	1	0
3753:	0	0	0	0	0	0	0	0
3761:	0	1	0	0	0	0	1	0
3769:	0	0	0	1	0	0	0	0
3777:	0	0	0	1	0	1	0	0
3785:	1	0	0	1	0	1	0	0
3793:	0	0	0	0	1	3	0	0
3801:	0	0	0	0	0	2	0	0
3809:	0	1	0	0	0	0	0	1
3817:	0	0	0	0	0	0	0	0
3833:	0	0	0	0	0	0	0	1
3841:	0	1	0	1	0	0	0	0

3849:	0	0	0	0	1	0	0	0
3857:	0	0	0	0	0	1	0	0
3865:	2	0	1	0	0	0	0	0
3873:	0	1	0	0	0	0	0	0
3881:	0	0	0	0	0	0	0	0
3889:	0	1	0	0	0	0	0	0
3897:	0	0	0	0	0	0	0	0
3905:	0	0	0	0	0	0	1	2
3913:	0	0	0	0	1	0	0	0
3921:	0	0	0	0	0	0	0	0
3929:	0	0	0	0	0	0	0	1
3937:	0	0	0	0	1	1	0	0
3945:	0	0	0	0	0	0	0	1
3953:	0	2	0	0	0	0	0	1
3961:	0	0	0	0	0	0	0	0
3969:	0	0	0	0	0	0	3	0
3977:	1	0	1	1	1	0	1	0
3985:	0	0	0	0	0	0	0	0
3993:	0	0	0	0	0	0	0	0
4001:	0	0	0	0	2	0	0	1
4009:	2	1	0	0	1	0	0	2
4017:	0	0	0	0	0	0	0	0
4025:	0	0	0	1	0	0	0	0
4033:	0	0	0	0	1	1	0	0
4041:	0	0	1	0	0	0	1	1
4049:	1	1	0	1	0	0	0	1
4057:	0	0	0	1	1	0	0	0
4065:	0	0	0	1	0	0	0	0
4073:	0	0	0	1	0	0	1	0
4081:	0	1	0	0	1	0	0	0
4089:	0	0	0	0	1	0	0	0