AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**ESTUDO DE TÉCNICAS ESTATÍSTICAS APLICADAS À DETERMINAÇÃO DE PARÂMETROS
NO MÉTODO k_0 DE ANÁLISE POR ATIVAÇÃO NEUTRÔNICA**

Rafael Vanhoz Ribeiro

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

**Orientador:
Prof. Dr. Mauro da Silva Dias**

**São Paulo
2017**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Diretoria de Pesquisa, Desenvolvimento e Ensino
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária CEP: 05508-000
Fone/Fax(0XX11) 3133-8908
SÃO PAULO – São Paulo – Brasil
<http://www.ipen.br>

**O IPEN é uma Autarquia vinculada à Secretaria de Desenvolvimento, associada
à Universidade de São Paulo e gerida técnica e administrativamente pela
Comissão Nacional de Energia Nuclear, órgão do
Ministério da Ciência, Tecnologia e Inovação.**

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

**ESTUDO DE TÉCNICAS ESTATÍSTICAS APLICADAS À DETERMINAÇÃO DE PARÂMETROS
NO MÉTODO k_0 DE ANÁLISE POR ATIVAÇÃO NEUTRÔNICA**

Rafael Vanhoz Ribeiro

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

Orientador:
Prof. Dr. Mauro da Silva Dias

Versão Corrigida
Versão Original disponível no IPEN

São Paulo
2017

“Se toda a humanidade menos um fosse da mesma opinião, e apenas um indivíduo fosse de opinião contrária, a humanidade não teria maior direito de silenciar essa pessoa do que esta o teria, se pudesse, de silenciar a humanidade.”

(Stuart Mill)

AGRADECIMENTOS

Gostaria de agradecer a todos que ajudaram, direta ou indiretamente, a fazer com que este trabalho se realizasse. Por ordem, agradeço ao professor Luiz Paulo Geraldo, o responsável por me motivar e indicar o local aonde eu tentaria cursar minha pós-graduação. Agradeço ao meu professor e orientador Mauro da Silva Dias, à colega de sala Lívia Barros e ao professor Maurício Moralles, por estarem presentes no momento mais importante para que meu trabalho tenha início. Agradeço também ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN-CNEN) pelo espaço e por todo apoio oferecido para que meu trabalho fosse concluído.

Agradeço às irmãs Lyslaine e Camila Sato, por confiarem em mim, oferecendo-me uma hospedagem no local onde moram e por vezes, até, me alimentando. Agradeço à Izabela Motta Pinto por estar comigo durante todas as etapas da minha nova fase de pós-graduação, principalmente no primeiro ano, período no qual era minha única companhia.

Agradeço aos meus familiares por toda ajuda e apoio que puderam me oferecer, seja financeiro ou motivacional. E agradeço, por fim, mais uma vez, aos professores Caren Studer e José Caetano da Silva, pois agora estou abrindo os braços do mundo.

ESTUDO DE TÉCNICAS ESTATÍSTICAS APLICADAS À DETERMINAÇÃO DE PARÂMETROS NO MÉTODO k_0 DE ANÁLISE POR ATIVAÇÃO NEUTRÔNICA

Rafael Vanhoz Ribeiro

RESUMO

O presente trabalho procurou aperfeiçoar um código criado para calcular os parâmetros k_0 e Q_0 , denominado COVAR, adicionando um outro método para a determinação do fator k_0 e aprimorar a análise de covariância existente, criando uma nova versão: COVAR v4.1. O presente trabalho também desenvolveu um novo método de cálculo para os parâmetros α e vários fatores k_0 em um único ajuste de mínimos quadrados, por meio de uma metodologia inédita, utilizando matrizes de covariância e todas as incertezas parciais envolvidas. Para aplicação deste método, outro código foi desenvolvido, denominado AKFIT v2.1, no qual possui a capacidade de efetuar dois ajustes, linear e não-linear, na determinação de α e k_0 para várias irradiações. Foi utilizado um conjunto de dados com irradiações realizadas nos anos de 2008 e 2010, pelo Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) e por meio do reator nuclear IEAR-1, do IPEN-CNEN/SP, correspondendo aos radionuclídeos ^{95}Zr , ^{65}Zn , $^{69\text{m}}\text{Zn}$, ^{46}Sc , ^{140}La e ^{60}Co , resultando em 21 conjuntos de dados a serem analisados para verificar o desempenho dos códigos criados. Para COVAR v 4.1, os resultados do cálculo alternativo para o fator k_0 foram próximos dos valores obtidos pelo método original do programa e foram consistentes com a literatura. Para AKFIT v2.1, realizou-se ajustes com ambas irradiações simultâneas e separadas. Os modelos ajustados concordaram com a literatura. O valor de α foi de 0,0025(83), que está de acordo com resultados obtidos anteriormente pelo LMN. As correlações entre os parâmetros k_0 se comportaram como esperado, com valores menores entre diferentes elementos e maiores entre elementos iguais com diferentes energias e usando o mesmo comparador. Pode-se concluir que os métodos propostos foram capazes de calcular os valores de k_0 , com AKFIT v2.1 sendo uma nova técnica no qual é possível determinar dois parâmetros, α e k_0 , ao mesmo tempo, de modo rápido e preciso. Espera-se que o código AKFIT possa ser aperfeiçoado, adicionando mais parâmetros, como Q_0 e f , tornando-o uma ferramenta de ajuste completo para a determinação de todos os parâmetros essenciais do Método k_0 de AAN.

Palavras-chave: Análise por Ativação Neutrônica, Método k_0 , Método dos Mínimos Quadrados, Matriz de Covariância

IMPROVEMENT IN STATISTICAL TECHNIQUES APPLIED TO THE DETERMINATION OF PARAMETERS IN THE k_0 METHOD OF NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS

Rafael Vanhoz Ribeiro

ABSTRACT

The present work aims to improve a code for calculating k_0 and Q_0 parameters, called COVAR, adding another method of calculating k_0 factor and improving the covariance analysis, creating a new version: COVAR v4.1. The present work also aims the development of a new method of calculating the alpha and several k_0 parameters in a single least square fit, by means of a novel methodology, using covariance matrices and all partial uncertainties. For the calculations applying this new method, another code was developed, called AKFIT v2.1 which performs linear and non-linear fittings for the determination of alpha and k_0 parameters for several irradiations in different periods. We used a database with irradiations in the years 2008 and 2010 performed at the IEAR-1 nuclear reactor of the IPEN-CNEN/SP, by the Nuclear Metrology Laboratory (LMN), corresponding to radionuclides ^{95}Zr , ^{65}Zn , $^{69\text{m}}\text{Zn}$, ^{46}Sc , ^{140}La and ^{60}Co and resulting in 21 data sets which were analyzed in order to verify the performance of COVAR4.1 and AKFIT2.1. For COVAR v4.1, the results with the alternative calculation of k_0 factor were close to the already existing calculation and were consistent with the literature. For AKFIT v2.1 fittings were performed with both irradiations simultaneously and separately. The fitted models agreed with the literature. The α value was 0,0025(83), which agrees with previous results obtained by the LMN. The correlations between the parameters k_0 behaved as expected, with smaller values between different elements and greater correlations between equal elements with different energies and using the same comparator measurement. It can be concluded that the proposed methods were able to calculate the values of k_0 , with AKFIT v2.1 being a new technique in which it is possible to determine two parameters, alpha and k_0 at the same time, quickly and accurately. It is expected that AKFIT code can be improved by adding more parameters, such as Q_0 and f , by making a complete fitting for the determination of all the main parameters for the k_0 NAA method.

Keywords: Neutron Activation Analysis, k_0 Method, Least Squares Fitting, Covariance Matrix

SUMÁRIO

RESUMO	6
ABSTRACT	7
SUMÁRIO	8
ÍNDICE DE FIGURAS	9
ÍNDICE DE TABELAS	10
1 INTRODUÇÃO	11
1.1 Objetivos e Justificativa do Presente Trabalho	14
2 FUNDAMENTOS TEÓRICOS.....	16
2.1 Interação do nêutron com a matéria	16
2.1.1 Fórmula de Breit-Wigner.....	22
2.1.2 Convenção de Westcott.....	24
2.1.3 Convenção de Høgdahl	27
2.2 Análise de Ativação Neutrônica e o Método k_0	29
2.3 Determinação de α para o fluxo de nêutrons epitérmicos	34
2.3.1 Método da razão de cádmio com monitores múltiplos.....	35
2.3.2 Método de monitores múltiplos cobertos com cádmio.....	35
2.3.3 Método Múltiplos Monitores descobertos	36
2.4 Determinação do parâmetro Q_0 e o Fator de Cádmio FCd	37
2.5 Outros parâmetros que compõem o método k_0	40
2.5.1 Eficiência de detecção.....	40
2.5.2 Correções de auto-blindagem	42
2.6 Análises das incertezas	44
3 METODOLOGIA	47
3.1 Atualização do código COVAR	47
3.2 Ajuste Único.....	48
3.2.1 Ajuste linear de α e k_0	48
3.2.2 As equações de α e k_0	49
3.2.3 Determinação de α e k_0 em um único ajuste	50

3.2.4	Transferência do erro de X para Y	53
3.2.5	Ajuste não linear de α e k_0	54
3.3	Programas utilizados	55
3.3.1	Código COVAR	55
3.3.2	Código AKFIT	56
3.3.3	Análises dos espectros e dados experimentais	56
3.4	Caracterização das amostras	59
3.4.1	Caracterização das fontes padronizadas e curva de eficiência	61
4	RESULTADOS E DISCUSSÃO	65
4.1	Curva de eficiência do detector HPGe	65
4.2	Resultados do código COVAR v4.1	67
4.3	Resultados do código AKFIT v2.1	71
5	CONCLUSÃO	82
	APÊNDICES	84
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	109

ÍNDICE DE FIGURAS

FIGURA 1 - Distribuição do fluxo de nêutrons $\varphi(E)$ em função da energia E	17
FIGURA 2 - Seção de Choque total do Manganês em função da energia do nêutron.....	22
FIGURA 3 - Seção de choque total de Ródio em função da energia do nêutron com ajuste de Breit-Wigner.....	24
FIGURA 4 - Exemplo dos parâmetros utilizados no método de integração numérica da área sob o pico de absorção total.	58
FIGURA 5 - Curva de eficiência, em escala log-log, para o espectrômetro de HPGe em função da energia gama, obtida pelas fontes padrões fornecidas pela IUPAC.....	66
FIGURA 6 - Exemplo do resultado obtido na primeira execução do COVAR v4.1. Os números de N (14 e 15) referem-se aos índices atribuídos às transições gama de 724,2 keV e 756,7 keV, da reação $^{94}\text{Zr}(n, \gamma)^{95}\text{Zr}$	67
FIGURA 7 - Resultados de k_0 para os dados de 2008 analisado pelo AKFIT v2.1. Quanto mais próximo de 1, melhor é o resultado.....	74
FIGURA 8 - Resultados de k_0 para os dados de 2010 analisado pelo AKFIT v2.1. Quanto mais próximo de 1, melhor é o resultado.....	74
FIGURA 9 - Resultados de k_0 para os dados de 2008 e 2010 analisados simultaneamente pelo AKFIT v2.1. Quanto mais próximo de 1, melhor é o resultado.	75
FIGURA 10 - Resíduos normalizados do ajuste dos dados de 2008 analisados separadamente.	76
FIGURA 11 - Resíduos normalizados do ajuste dos dados de 2010 analisados separadamente.	76
FIGURA 12 – Resíduos normalizados do ajuste com ambos os dados de 2008 e 2010 analisados simultaneamente.....	77
FIGURA 13 - Esquema da divisão realizada nas matrizes com suas partes definidas.....	89

ÍNDICE DE TABELAS

TABELA 1 – Dados característicos sobre probabilidade de emissão gama, meia-vida, espessura e concentração da liga de cada produto resultante das irradiações no ano de 2008.	59
TABELA 2 - Dados característicos sobre probabilidade de emissão gama, meia-vida, espessura e concentração da liga das reações dos dados de 2010.	60
TABELA 3 - Valores das massas e suas incertezas para cada reação nos anos de 2008 e 2010..	60
TABELA 4 - Características das reações das fontes padronizadas utilizadas para o cálculo da curva de eficiência.	61
TABELA 5 - Valores de fator de cádmio, correção de auto-blindagem para nêutrons térmicos e epitérmicos, energia de ressonância efetiva, razão entre fluxo térmico e epitérmico, alfa e Q_0 , para as reações de 2008 e 2010	63
TABELA 6 - Valores das taxas de contagens específicas com e sem Cd para as reações de 2008.	63
TABELA 7 - Valores das taxas de contagens específicas com e sem cádmio e razão de cádmio para as irradiações de 2010.....	64
TABELA 8 - Dados do ajuste da curva de eficiência do detector HPGe realizado pelo programa LOGFIT.	65
TABELA 9 - Valores das eficiências das reações.	66
TABELA 10 - Resultados de k_0 gerados por meio do COVAR v4.1 utilizando as EQ. (3.1) (K_0) e a EQ. (3.3) incluída (K_03), para os dados de 2008.	68
TABELA 11 - Resultados de k_0 gerados por meio do COVAR v4.1 utilizando as EQ. (3.1) (K_0) e a EQ. (3.3) incluída (K_03), para os dados de 2010.	68
TABELA 12 - Resultados de Q_0 gerados por meio do COVAR v4.1, para os dados de 2008 e 2010.....	69
TABELA 13 - Resultados dos dados das irradiações do ano de 2008 analisados separadamente.	71

TABELA 14 - Resultados dos dados das irradiações do ano de 2010 analisados separadamente.	72
TABELA 15 - Comparação dos valores de a , α , χ^2 e $\chi^2_{reduzido2}$ entre os ajustes linear e não-linear obtidos pelo código AKFIT v2.1.	72
TABELA 16 - Comparação dos valores k_0 entre os ajustes linear e não-linear obtidos pelo código AKFIT v2.1.....	73
TABELA 17 - Representação de cada índice da FIG. 11, com os alvos e suas respectivas transições gama.	77
TABELA 18 - Comparação entre os valores de k_0 do código COVAR v4.1 com o método novo e AKFIT v2.1 para os dados de 2008 analisado separadamente.....	79
TABELA 19 - Comparação entre os valores de k_0 do código COVAR v4.1 com o método novo e AKFIT v2.1 para os dados de 2010 analisado separadamente.....	79
TABELA 20 - Comparação entre os valores de k_0 do código AKFIT v2.1 com ajuste simultâneo dos dados e do código COVAR v4.1 com o método novo.....	80
TABELA 21 - Valores definidos de k_0 para os elementos analisados.....	81
TABELA 22 - Comparação dos valores de k_0 e Q_0 para ^{64}Zn da literatura com os obtidos no presente trabalho.	81

1 INTRODUÇÃO

A Análise por Ativação Neutrônica (AAN) é uma técnica mundialmente utilizada para a determinação da concentração de elementos químicos em diferentes materiais^[1-3]. George Hevesy e Hilde Levi foram os precursores dessa técnica, em um momento em que químicos procuravam uma solução mais eficaz para separar e purificar diferentes elementos dentro de um grupo de terras raras em razão da complexidade que era o processo na época, Hevesy e Levi encontraram a possibilidade de identificar, qualitativa e quantitativamente, elementos que estariam presentes em uma amostra, após verificarem que ao irradiá-la em uma fonte de nêutrons, tornavam-se radioativas, viabilizando a mensuração da radioatividade induzida^[1-4].

O conceito empregado pela AAN está na medição da radiação gama produzida após a exposição de uma amostra contendo certa quantidade de elementos em um feixe de nêutrons térmicos por um determinado tempo. Guinn^[1] descreve um exemplo prático considerando uma amostra contendo certa quantidade de cobre, na qual estão contidos na mistura os isótopos ^{63}Cu e ^{65}Cu , que são estáveis. Ao serem expostos em um feixe de nêutrons térmicos, uma fração do ^{63}Cu tende a capturar um nêutron, tornando-se ^{64}Cu , e da mesma maneira, uma fração do ^{65}Cu também irá capturar um nêutron térmico, formando um núcleo de ^{66}Cu . Os novos núcleos formados estão em um estado excitado que, para voltarem ao estado fundamental, emitem um raio-gama, conhecido como raio-gama pronto. Se após a exposição ao feixe de nêutrons o núcleo produto da reação (n, γ) é um radioisótopo do elemento, ou seja, ele ainda emite radiação gama, pode-se usar esse raio-gama atrasado (*delayed gamma ray*), para detectar, identificar e medir a quantidade de radiação induzida, em razão de serem característicos do elemento. No caso do cobre, tanto ^{64}Cu quanto ^{66}Cu são radioisótopos do mesmo, o que lhe permite ser usado para os propósitos analíticos.

A aplicação quantitativa da AAN, portanto, é baseada na identificação dos radionuclídeos presentes na amostra pela comparação das linhas de energias

da emissão gama com as energias da literatura^[5]. Esta aplicação é realizada por meio de um método de padronização, que pode ser do tipo relativo, absoluto ou comparador-simples.

O Método Relativo é caracterizado pela irradiação simultânea de uma amostra comparadora certificada e uma amostra que se deseja analisar sob idênticas condições experimentais. Após o processo, as atividades são medidas e, posteriormente, comparadas, proporcionando a quantificação dos elementos. Sua vantagem está na maior precisão obtida, eliminando fontes de incertezas, além de não precisar de um monitoramento da variação do fluxo de nêutrons. Por outro lado, este método necessita de uma amostra padrão para cada elemento analisado, o que demanda muito tempo para irradiação e contagem caso a amostra desconhecida contenha muitos elementos, resultando em um processo dispendioso. Elementos na amostra que não estavam presentes ou não foram certificados na padronização e que aparecerem no espectro da amostra não podem ser determinados. A escolha da amostra de comparação também deve ser feita com cautela, para que diferenças de composição entre a amostra padrão e a desconhecida não acarretem um aumento nas incertezas^[6, 7]. A aplicabilidade deste método, apesar de ser comumente utilizado em razão de suas vantagens, além de ser realizado nas mais diversas condições experimentais e não necessitar de um profundo conhecimento técnico sobre os parâmetros do local de irradiação, é limitada na prática de uma rotina analítica^[5].

O Método Absoluto é uma técnica de padronização paramétrica^[5, 6, 8], na qual a concentração do elemento é determinada por parâmetros nucleares e pelo fluxo de nêutrons. Apesar de ser experimentalmente simples e rápida comparada com o Método Relativo, necessita-se de um fluxo de nêutrons contínuo e bem conhecido, ou seja, de um reator estável no qual a variação no fluxo pode ser desprezada. Também é necessário um conhecimento prévio de certos dados nucleares que podem ser grandes fontes de incertezas para a realização deste método^[5, 7], tais como: as probabilidades de emissão de raios-gama, o fluxo de nêutron e a geometria do sistema, o que o torna menos preciso em razão das incertezas associadas ao grande número de parâmetros^[6, 8].

O Método k_0 surgiu como proposta para resolver as desvantagens dos métodos descritos anteriormente, assim como unir as vantagens metodológicas do Método Absoluto com a precisão e exatidão do Método Relativo. Este método

é descrito em detalhes na seção 2.4 e consiste, basicamente, na irradiação de uma amostra junto com um comparador, onde usualmente é utilizado o ouro para este fim. Desse modo, é possível determinar as concentrações dos elementos por meio da razão entre as atividades do alvo analisado e do comparador, com a vantagem de ser mais versátil e analisar grandes séries de amostras similares com economia no tempo de irradiação, além de resultar em incertezas significativamente menores^[5, 9–11].

O cálculo da concentração exige um cuidado especial em virtude dos parâmetros que envolvem este método. Alguns dos parâmetros fundamentais são: a razão entre a integral de ressonância e a seção de choque térmica, Q_0 , e a razão entre os fluxos de nêutron térmico e epitérmico, f . Segundo Kubešová^[6], é muito importante conhecer exatamente os parâmetros do detector e as incertezas associadas a cada um. Os cálculos da incerteza tornam-se complexos em razão da existência de mais parâmetros do que os outros métodos anteriormente citados, além das eventuais correlações existentes entre eles. Smodiš e Bucar^[12] demonstraram uma metodologia de medida das incertezas nos resultados obtidos das concentrações pelo método k_0 com base no *Guide to the Expression of Uncertainty and Measurement* (GUM). Outros trabalhos para a cálculos das incertezas foram desenvolvidos procurando como objetivo a otimização dos resultados^[13–16]. Mas apesar de importante para a aquisição de melhores resultados, encontram-se na literatura poucos trabalhos realizados para este fim, ou ainda, não consideram as correlações existente ou todos os parâmetros envolvidos no método. Segundo Smodiš e Bucar^[12], simplificações nos cálculos das incertezas no Método k_0 devem ser evitadas, pois podem acarretar em erros para os resultados; e na literatura costuma-se à ignorar as correlações existentes.

Nas referências Dias et al.^[9, 17], foram utilizados um método estatístico para os cálculos das incertezas, empregando matrizes de covariância entre os parâmetros associados. O conceito do método foi tratar as incertezas de forma mais completa, levando em conta a complexidade das correlações existentes entre os parâmetros de ajuste. Desenvolveu-se um código de programação, nomeado COVAR, que estava, até o presente trabalho, na sua versão 3 (COVAR v3), para a realização desses cálculos. Os resultados obtidos pelo código COVAR v3 mostram, entre outras informações, os valores de k_0 , Q_0 de cada isótopo analisado e suas respectivas incertezas^[18]. O código COVAR v3 utiliza uma

equação de k_0 que requer que tanto as amostras com o comparador sejam irradiadas com e sem uma cobertura de cádmio (Cd). Conforme apresentado por De Corte^[11], existe uma alternativa do cálculo de k_0 que não requer a irradiação das amostras com cobertura de cádmio. Esta expressão não foi utilizada no código COVAR v3, porém foi incluída no presente trabalho por meio de uma nova versão do código, denominada COVAR v4, sendo assim uma extensão do trabalho de Cardoso^[18]. Com algumas correções e atualizações no código, sua versão final estabeleceu como COVAR v4.1.

A aplicação do método k_0 na AAN exige a determinação do parâmetro que descreve a forma real do espectro de nêutrons epitérmico, α , além dos parâmetros k_0 e Q_0 para cada núcleo-alvo e transição gama utilizada na análise. Existem métodos para determinar o parâmetro α utilizando valores de k_0 e Q_0 tabelados e medições de amostras irradiadas com e sem cobertura de cádmio^[9].

Morales, M.^[19] elaborou um método de ajuste linear simultâneo para os parâmetros α e k_0 , denominado AKFIT v1. No presente trabalho, foi implementado o algoritmo do AKFIT v1 e criou-se também o AKFIT v2, que além do ajuste linear, inclui um ajuste não linear para α e k_0 , com base no método de Gauss-Marquardt^[20]. Uma atualização no código do AKFIT v2 foi necessária para que fosse possível a realização de análises várias irradiações distintas, gerando assim o AKFIT v2.1

1.1 Objetivos e Justificativa do Presente Trabalho

O presente trabalho foi motivado pela necessidade de expansão e aprimoramento das metodologias de cálculos dos parâmetros que envolvem o método k_0 , utilizando uma expressão que possibilita a determinação dos valores em um único ajuste, incorporando as incertezas do maior número de parâmetros possível e suas correlações, estendendo a análise de covariâncias desenvolvida por Cardoso e Dias^[9, 17, 18]. Este trabalho apresenta aspectos de originalidade associados ao desenvolvimento de uma metodologia teórica, utilizando Matrizes de Covariância em todas as incertezas parciais do método k_0 para as equações não consideradas anteriormente, e introduzindo uma nova técnica para a determinação simultânea destes parâmetros para vários alvos. O método proposto torna-se particularmente complexo, principalmente na análise e

determinação da correlação existente entre os parâmetros, pois as equações utilizadas para sua determinação são composições de funções, o que torna a definição da Matriz de Covariância complexa e laboriosa.

O presente trabalho possibilitará uma ampliação na área de pesquisa relacionada com o método k_0 da AAN do Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do IPEN, que tem adquirido uma boa experiência no campo de padronização de radionuclídeos e trabalhos com tratamento estatístico dos dados, com a utilização de, entre outros métodos, os de Monte Carlo e regressão.

2 FUNDAMENTOS TEÓRICOS

2.1 Interação do nêutron com a matéria

Partículas carregadas leves, como elétrons, e partículas carregadas pesadas, como alfas, interagem com a matéria primariamente através das forças coulombianas (espalhamento de Coulomb) entre a partícula incidente e os elétrons dos átomos do alvo^[21]. Os nêutrons, entretanto, não possuem carga, conseqüentemente torna-se impossível a realização desse fenômeno. A interação causada pelos nêutrons, portanto, é através do núcleo alvo de um material. Como resultado dessa interação o nêutron pode desaparecer completamente, emitindo-se no lugar uma ou mais radiações secundárias (que podem ser partículas pesadas ou raio-gama), ou a sua energia ou direção podem mudar^[22]. À vista disso, os fenômenos de interação são classificados como:

- Espalhamento elástico (n, n): a energia cinética total resultante da interação do nêutron incidente com o núcleo alvo se conserva;
- Espalhamento inelástico (n, n'): a energia cinética resultante da interação do nêutron e o núcleo alvo não se conserva e o núcleo alvo entra em um estado excitado;
- Captura (n, γ): o nêutron incidente é absorvido pelo núcleo alvo e emite-se um raio-gama;
- Emissão ($n, 2n$), (n, p), (n, α) etc.: o nêutron incidente é absorvido pelo núcleo alvo e emite-se um ou mais nêutrons ou uma partícula carregada pesada;
- Fissão (n, f): o núcleo alvo é fissionado, formando novos núcleos atômicos e liberando raios-gama e mais nêutrons.

Usualmente, as reações são representadas como (n, X), na qual n é a radiação incidente e X o resultado das possíveis reações que podem ocorrer. A probabilidade de ocorrer a interação do nêutron com um determinado núcleo alvo altera de acordo com sua energia. Utiliza-se, portanto, essa energia como base para categorizar os nêutrons, que podem ser: nêutrons muito rápidos (entre 15

MeV a 50 MeV), rápidos (entre 0,1 MeV a 15 MeV), intermediários (entre 1 keV a 0.1 MeV), epitérmicos (entre 1 eV a 1 keV) e térmicos (inferior a 1 eV). Para fins práticos, usualmente classificam-se apenas em nêutrons térmicos, epitérmicos e rápidos^[23]. Na FIG. 1^[11] é apresentada a distribuição típica em energias de nêutron, para um reator nuclear térmico, como o reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP. Pode-se observar a classificação dos nêutrons de acordo com sua energia, em: região dos nêutrons térmicos (também chamada de Distribuição Maxwelliana); região dos nêutrons epitérmicos (que segue aproximadamente a lei $1/E^{1+\alpha}$) e a região dos nêutrons rápidos (distribuição de Watt).

FIGURA 1 - Distribuição do fluxo de nêutrons $\phi(E)$ em função da energia E ^[11].

Dentre os tipos de interações para os nêutrons mais lentos, os térmicos (com energias cinéticas abaixo de 1.0 eV), predominam os fenômenos de espalhamento elástico e captura radiativa. Para nêutrons rápidos predominam as interações por espalhamento elástico, inelástico ou emissão de partícula carregada.

Nêutrons lentos podem atingir o equilíbrio térmico com os núcleos do meio antes que alguma reação nuclear aconteça. Em temperatura ambiente (293 K), os nêutrons térmicos possuem uma energia de aproximadamente 0,025 eV. Quando as condições para o equilíbrio térmico são atingidas, os nêutrons possuem uma distribuição Maxwelliana de velocidade, dada por:

$$n(v)dv = 4\pi n \left(\frac{m}{2\pi kT} \right)^{\frac{3}{2}} v^2 e^{-\frac{mv^2}{2kT}} dv \quad (2.1)$$

onde n é o número total de nêutrons por unidade de volume, $n(v)dv$ é o número de nêutrons por unidade de volume que possuem velocidades entre v e $v + dv$, m é a massa de um nêutron, k é a constante de Boltzmann e T a temperatura absoluta do moderador, medida em Kelvin.

Com a distribuição Maxwelliana é possível determinar a velocidade mais provável, diferenciando o lado direito da expressão (2.1) em relação a v e igualando a derivada a zero. Com algumas modificações algébricas pode-se reescrever a EQ. (2.1) como:

$$n(v) = Cf(v) = Cv^2 e^{-\beta^2 v^2} \quad (2.2)$$

onde:

$$C = 4\pi n \left(\frac{m}{2\pi kT} \right)^{\frac{3}{2}}$$

$$\beta = \left(\frac{m}{2kT} \right)^{\frac{1}{2}}$$

De maneira que:

$$\frac{1}{C} \frac{dn(v)}{dv} = 2v e^{-\beta^2 v^2} - 2v^3 \beta^2 e^{-\beta^2 v^2} = 0 \quad (2.3)$$

Para satisfazer a EQ (2.3) em algum valor de velocidade $v = v_0$, é necessário que:

$$v_0 = \frac{1}{\alpha} = \left(\frac{2kT}{m} \right)^{\frac{1}{2}}$$

para cada valor da temperatura absoluta T . A velocidade mais provável é quando $v = v_0$, em razão de ser o ponto em que $n(v)$ alcança seu valor máximo. A energia cinética correspondente é:

$$E^0 = \frac{1}{2}mv_0^2 = kT \quad (2.4)$$

O valor numérico da velocidade mais provável v_0 para temperatura ambiente (293 K) é de 2198 m/s (ou, para fins práticos, 2200 m/s), correspondendo a uma energia cinética do nêutron igual a 0,0252 eV. Esses nêutrons são também conhecidos como *nêutrons kT* .

Definem-se como nêutrons epitérmicos, nêutrons que possuem, teoricamente, um espectro do tipo^[24, 25]:

$$\phi_e(E) = \Phi_e \frac{1}{E} \quad (2.5)$$

onde:

$\phi_e(E)$ = Intervalo do fluxo epitérmico por unidade de energia do nêutron;

Φ_e = Integral do fluxo epitérmico por unidade de $\ln(E)$

A integral de ressonância para esta condição ideal ($\phi_e(E) \sim \frac{1}{E}$), que representa a probabilidade de interação entre os nêutrons epitérmicos e os núcleos devido às ressonâncias (pequenas faixas de energia na qual a secção de choque apresenta probabilidade de interação muito maior que a proporcional ao inverso da velocidade) e é dada por:

$$I_0 = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \frac{\sigma(E)}{E} dE \quad (2.6)$$

onde:

E_{Cd} = Energia efetiva do corte de cádmio

$\sigma(E)$ = Secção de choque microscópica em função da energia

A seção de choque microscópica, σ , é a probabilidade de ocorrência de cada um dos fenômenos de interação para nêutrons monoenergéticos incidindo em um núcleo atômico conhecido, e que possui dimensão de área medida em barn. A seção de choque macroscópica, Σ , resulta da multiplicação de σ pelo N números de núcleos atômicos contidos em uma unidade de volume do material alvo^[22]:

$$\Sigma = N\sigma \quad (2.7)$$

Já a seção de choque macroscópica total, Σ_t , fornece a probabilidade de ocorrência de todos os fenômenos de interação possíveis, ou seja:

$$\Sigma_t = \Sigma_{ee} + \Sigma_{ei} + \Sigma_c + \Sigma_e + \Sigma_f \quad (2.8)$$

onde:

Σ_{ee} = Seção de choque macroscópica para espalhamento elástico;

Σ_{ei} = Seção de choque macroscópica para espalhamento inelástico;

Σ_c = Seção de choque macroscópica para captura;

Σ_e = Seção de choque macroscópica para emissão;

Σ_f = Seção de choque macroscópica para fissão.

Em determinadas situações, a seção de choque pode aumentar ou diminuir. Isso depende da reação que está sendo verificada e da energia de incidência do nêutron. Para reação (n, γ) , por exemplo, a seção de choque diminui conforme a energia do nêutron aumenta. Essa proporcionalidade inversa pode ser aproximada para a lei $1/v$, ou seja, o aumento da taxa de reação é inversamente proporcional à velocidade do nêutron incidente. Também podem ocorrer rápidas elevações no valor da seção de choque em determinadas energias, conhecidas como energia de ressonância, que são causadas quando a formação de um núcleo composto é mais provável.

A energia efetiva do corte de cádmio é definida como 0.55 eV para um detector, possuindo uma seção de choque $\sigma(v)$ proporcional a $1/v$ para a reação (n, γ) , irradiado em um fluxo de nêutrons isotrópico com uma pequena amostra

em um invólucro cilíndrico de cádmio^[24]. O conceito empregado de que a distribuição da densidade de fluxo epitérmico varia com o inverso da energia supõe-se válida quando o meio em que os nêutrons estão sendo moderados é homogêneo e infinito; as fontes de nêutrons rápidos estão homogeneamente distribuídas no espaço; o poder de moderação do meio não depende da energia; não existe absorção e as partículas do moderador se comportam como partículas livres com a mesma massa que os nêutrons^[26]. Entretanto, na prática, essa proporcionalidade de $1/E$ não é exatamente obedecida. O fluxo de nêutrons epitérmicos em um caso real é corrigido por uma aproximação do tipo:

$$\phi_e(E) = \Phi_e \frac{1}{E^{1+\alpha}} \quad (2.9)$$

onde α , que é independente da energia, pode ser positivo ou negativo, dependendo da configuração do reator^[24]. A integral de ressonância, definida na EQ. (2.6) e tabelada na literatura, não é válida no caso real. Para um espectro de nêutrons epitérmicos do tipo $1/E^{1+\alpha}$, a integral de ressonância torna-se:

$$I_0 = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \frac{\sigma(E)}{E^{1+\alpha}} dE \quad (2.10)$$

Isso indica que as integrais de ressonância para uso prático são uma função de α , e portanto, do local de irradiação considerado. Também implica que para a conversão de I_0 em $I_0(\alpha)$ e vice-versa, deve-se conhecer a relação existente entre elas, enquanto que, para α , deve ser determinado experimentalmente^[24], como será demonstrando da sessão 2.3.

Nêutrons rápidos não são desejáveis em um reator nuclear, em razão de que a maioria dos combustíveis físeis possuem uma alta taxa de reação para fissão e captura para nêutrons lentos. Por este motivo, passam pelo processo de moderação, que consiste em desacelerar nêutrons rápidos por meio de espalhamento elástico de núcleos atômicos até que atinjam o equilíbrio térmico com o meio. Para um bom moderador, as seções de choque para os fenômenos de captura e fissão devem ser pequenas. Caso contrário os nêutrons irradiados serão perdidos por absorção no moderador.

2.1.1 Fórmula de Breit-Wigner^[27]

A formação de um núcleo composto ocorre quando a soma das energias cinética e de ligação do nêutron incidente corresponde ao estado excitado do núcleo composto, conhecida como reação de ressonância. Em uma situação de ressonância isolada, como no exemplo da FIG. 2^[27], no qual as ressonâncias são bem separadas por um intervalo de alguns keV por todo o trajeto para altas energias, pode-se descrever a variação da seção de choque de uma reação por meio da fórmula de Breit-Wigner. Considera-se uma largura Γ (incerteza de energia) correspondente a cada vida média τ de um núcleo composto:

$$\Gamma = \frac{\hbar}{\tau} \quad (2.11)$$

A probabilidade de um núcleo composto decair é $\Gamma/\hbar = 1/\tau$. A largura total Γ é resultante da soma das larguras parciais para os diversos canais de decaimento $\Gamma_\gamma + \Gamma_n + \Gamma_\alpha \dots$. A probabilidade, portanto, do núcleo composto decair por meio de uma reação Γ_i é Γ_i/Γ .

FIGURA 2 - Seção de Choque total do Manganês em função da energia do nêutron.

A seção de choque para a formação de um núcleo composto por meio de um canal i com um momento angular l pode ser expressa por^[28]:

$$\sigma_{C_l}(i) = (2l + 1)\pi\lambda^2 T_l(i) \quad (2.12)$$

onde $\sigma_{C_l}(i)$ é o produto da seção de choque máxima $(2l + 1)\pi\lambda^2$ com o coeficiente de transmissão $T_l(i)$.

Entretanto, a EQ. (2.12) não considera os fenômenos de ressonância. Pode-se dizer que é válida em situação na qual $\sigma_{C_l}(i)$ está em um intervalo de energia onde se encontra longe o suficiente da região de ressonâncias. Adicionando, portanto, o fenômeno de ressonância, tem-se a expressão:

$$\sigma_{C_l}(i) = (2l + 1)\pi\lambda^2 \frac{\Gamma_n \Gamma_i}{(E - E_R)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} \quad (2.13)$$

onde:

E = Energia do nêutron incidente;

E_R = Energia de ressonância;

$\lambda = \frac{\lambda}{2\pi}$ = Comprimento de onda de de Broglie, associado à velocidade do nêutron.

A fim de encontrar a seção de choque de uma determinada reação (n,i) , multiplica-se $\sigma_{C_l}(i)$ pela probabilidade de decaimento do núcleo composto por meio do canal i , Γ_i/Γ :

$$\sigma(n, i) = (2l + 1)\pi\lambda^2 \frac{\Gamma_n \Gamma_i}{(E - E_R)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} \quad (2.14)$$

A EQ. (2.14) é conhecida como fórmula de Breit-Wigner para um único nível. Deve-se notar que os comprimentos Γ_i são dependentes dos canais de reação, mediante os coeficientes de transmissão $T_l(i)$. A FIG. 3 apresenta um exemplo da seção de choque total de Ródio em função da energia do nêutron, com ajuste de Breit-Wigner^[27].

FIGURA 3 - Seção de choque total de Ródio em função da energia do nêutron com ajuste de Breit-Wigner^[27].

A fórmula de Breit-Wigner não é adequada quando há influência de outras ressonâncias. Por este motivo, realiza-se um ajuste na EQ. (2.14) no qual considera a contribuição de todas as probabilidades parciais correspondentes de cada ressonância para o valor de energia E do nêutron incidente^[29–31].

$$\sigma(E) = g\pi\lambda^2 \sum_{i=1}^n \frac{\Gamma_n \Gamma_i}{(E - E_{Ri})^2 + \left(\frac{1}{2}\Gamma_i\right)^2} \quad (2.15)$$

2.1.2 Convenção de Westcott^[32–35]

O formalismo de Westcott, apresentado em 1958, procura solucionar alguns problemas relacionados com a seção de choque de um espectro de nêutron, descrevendo uma distribuição precisa para as seções de choque que não obedecem a lei- $1/v$ ^[36]. A convenção proposta possui a característica na qual o valor da seção de choque que varia inversamente com a velocidade do nêutron para cada reação (obedece a lei- $1/v$), corresponde ao próprio valor da seção de choque do nêutron com velocidade de 2200 m/s. A taxa de reação, neste caso, é proporcional à densidade de nêutrons e é independente do seu espectro.

Define-se nesta convenção a seção de choque eficaz, $\hat{\sigma}$, e uma taxa de reação por núcleo presente, R , sendo o produto de $\hat{\sigma}$ com nv_0 ^[34], onde:

n = Densidade do nêutron, incluindo ambos nêutrons térmicos e epitérmicos;
 $v_0 = 2200$ m/s, assim sendo $R = nv_0\hat{\sigma}$.

Quando a seção de choque se afasta da lei- $1/v$, pode-se obter uma relação aplicando a seção de choque efetiva $\hat{\sigma}$ no espectro de um reator de nêutrons bem termalizado. Supõe-se que o espectro de nêutrons seja a soma de dois componentes: a distribuição do fluxo de nêutrons epitérmicos cortada num limite inferior adequado e uma distribuição Maxwelliana correspondente ao kT . A relação, portanto, é:

$$\hat{\sigma} = \sigma_0(g + rs) \quad (2.16)$$

onde:

σ_0 = Seção de choque para nêutrons com velocidade de 2200 m/s;

g e s = Funções da temperatura T que depende do desvio da lei- $1/v$ da seção de choque;

r = Índice que representa a intensidade relativa do componente epitérmico.

Para a lei- $1/v$, $g = 1$ e $s = 0$. Quando $r = 0$, o espectro é puramente Maxwelliano^[33, 37]. A EQ. (2.16) é alcançada considerando que distribuição da densidade de nêutrons, admitindo a suposição, pode ser expressa como:

$$n(v) = n(1 - f)\rho_m(v) + nf\rho_e(v) \quad (2.17)$$

onde:

f = Fração da distribuição epitérmica na densidade total de nêutrons;

$n(1 - f)$ = Densidade de nêutrons térmicos;

nf = Densidade de nêutrons epitérmicos.

$\rho_m(v)$ = Função normalizada de densidade de probabilidade de nêutrons térmicos por unidade de velocidade, dada por^[32]:

$$\rho_m(v) = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v^2}{v_{t_n}^3} e^{-(v/v_{t_n})^2} \quad (2.18)$$

onde o índice t_n é a temperatura do nêutron;

$\rho_e(v)$ = Função normalizada de densidade de probabilidade de nêutrons epitérmicos por unidade de velocidade, dada por:

$$\rho_e(v) = v_{t_n} \sqrt{\mu} \frac{\Delta}{v^2} \quad (2.19)$$

O parâmetro Δ é uma função de corte que descreve o término para as menores energias da distribuição epitérmica^[38], considerando, no caso da EQ. (2.19), que $\Delta = 1$ se $E > \mu kT$ e $\Delta = 0$ se $E < \mu kT$.

Com as EQ. (2.17), EQ. (2.18) e EQ. (2.19), é possível escrever a taxa de reação R , como definido por meio da seção de choque efetiva, de modo que:

$$R = n v_0 \hat{\sigma} = \int_0^\infty n(v) \sigma(v) v dv$$

$$R = n(1 - f) \int_0^\infty \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v^3}{v_{t_n}^3} e^{-(v/v_{t_n})^2} \sigma(v) dv + n f \cdot v_{t_n} \sqrt{\mu} \cdot \int_0^\infty \frac{\Delta}{v} \sigma(v) dv \quad (2.20)$$

Caso o espectro seja puramente Maxwelliano, $f = 0$ e a taxa de reação depende somente da primeira integral da EQ. (2.20). A seção de choque $\hat{\sigma}_m$ efetiva para este caso é^[34]:

$$\hat{\sigma}_m = \frac{1}{v_0} \int_0^\infty \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v^3}{v_{t_n}^3} e^{-(v/v_{t_n})^2} \sigma(v) dv \quad (2.21)$$

Com a EQ. (2.21) Westcott define o fator g como sendo a razão entre $\hat{\sigma}_m$ e v_0 ^[32]:

$$g = \frac{\hat{\sigma}_m}{v_0} = \frac{1}{v_0 \sigma_0} \int_0^\infty \rho_m(v) v \sigma(v) dv \quad (2.22)$$

O fator g é conhecido como fator de Westcott e permite corrigir a secção de choque Maxwelliana efetiva para a influência da temperatura. Nas reações (n, γ) que não possuem ressonâncias abaixo da energia de corte de cádmio, o fator $g = 1$. Existem diversas tabelas com valores de g para elementos de acordo com a temperatura^[33, 36, 37].

Na situação em que f é diferente de zero, a secção de choque efetiva é:

$$\hat{\sigma} = g\sigma_0 + \frac{f\sqrt{\mu}}{2} \frac{v_t}{v_0} \int_0^\infty \left[\sigma(v) - \frac{v_0 \hat{\sigma}_m}{v} \right] \frac{\Delta dE}{E} \quad (2.23)$$

O parâmetro r , conhecido por fração de nêutrons epitérmicos, é expresso sendo proporcional a $f\sqrt{\mu}$ da EQ. (2.23):

$$r = \frac{f\sqrt{\pi\mu}}{4} \quad (2.24)$$

e o fator s também é expresso como:

$$s = \frac{1}{\sigma_0} \sqrt{\frac{4T}{\pi T_0}} \int_0^\infty \left[\sigma(v) - \frac{v_0 \hat{\sigma}_m}{v} \right] \frac{dE}{E} \quad (2.25)$$

Chega-se, portanto, na relação entre σ_0 e $\hat{\sigma}$, conforme descrito na EQ. (2.16): $\hat{\sigma} = \sigma_0(g + rs)$. A taxa de reação dada por:

$$R = nv_0\sigma_0(g + rs) \quad (2.26)$$

2.1.3 Convenção de Høgdahl

Apesar da convenção de Westcott ser precisa, ela é complexa e, na prática, considera-se que apenas alguns radionuclídeos se afastam da lei- $1/v$ para as seções de choque de modo que as incertezas sejam significativamente altas^[31, 39, 40]. A convenção de Høgdahl procura ser uma alternativa menos laboriosa, o que torna esta convenção simples para ser utilizada. Entretanto, ela é restrita para reações (n, γ) nas quais o fator de Westcott g é igual à unidade^[5, 40],

^{41]}. Em situações em que g difere da unidade, recomenda-se não utilizar a convenção de Høgdahl e considerar a temperatura do nêutron, o que, em outras palavras, significa utilizar o formalismo de Westcott^[35, 42–44]. Ao longo dos anos, adaptações foram feitas em ambas convenções^[32, 36, 41, 44, 45]. A convenção de Høgdahl pode ser escrita dividindo a taxa de reação R em duas partes^[44]:

$$R = \int_0^{V_{Cd}} \sigma(v)\phi(v)dv + \int_{V_{Cd}}^{\infty} \sigma(v)\phi(v)dv \quad (2.27)$$

Observa-se que R é uma soma das partes térmicas (primeira integral) e epitérmicas (segunda integral). V_{Cd} é a velocidade do nêutron correspondente à energia de corte de cádmio. Dessa forma, para reações (n, γ) sem ressonâncias abaixo da energia de corte de cádmio E_{Cd} , a primeira integral é definida como:

$$\int_0^{V_{Cd}} \sigma(v)\phi(v)dv = \sigma_0 v_0 \int_0^{V_{Cd}} n(v)dv \quad (2.28)$$

A definição convencional para o fluxo de nêutrons térmicos, ϕ_t , é dada por $v_0 \int_0^{V_{Cd}} n(v)dv$. Assim:

$$\int_0^{V_{Cd}} \sigma(v)\phi(v)dv = \sigma_0 \phi_t \quad (2.29)$$

E a segunda integral é expressa como:

$$\int_{V_{Cd}}^{\infty} \sigma(v)\phi(v)dv = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E)\phi(E)dE \quad (2.30)$$

O fluxo de nêutrons epitérmicos, como observado na EQ. (2.7), não obedece exatamente a proporcionalidade $\phi_e(E) \sim \frac{1}{E}$. É necessário inserir o parâmetro de correção α .

Para energias acima de 0.35 eV, o fluxo de nêutrons pode ser definido como:

$$\phi(E) = \frac{\phi(E_{ref})}{\left(\frac{E}{E_{ref}}\right)^{1+\alpha}} \quad (2.31)$$

A energia de referência E_{ref} é um parâmetro escolhido arbitrariamente. Sua integral de ressonância é expressa como:

$$I(\alpha) = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{E_{ref}^{\alpha}}{E^{1+\alpha}} dE \quad (2.32)$$

e,

$$\phi_e = \phi(E_{ref}) E_{ref} \quad (2.33)$$

Assim:

$$\int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \phi(E) dE = \phi_e I_0(\alpha)$$

e a taxa de reação R é dada por:

$$R = \sigma_0 \phi_t + \phi_e I_0(\alpha) \quad (2.34)$$

sendo, portanto, a taxa de reação como a soma das contribuições dos nêutrons térmicos e epitérmicos.

Além das convenções de Høgdahl e de Westcott, que são bastante utilizadas e avaliadas na área da ANN, outras convenções também são conhecidas, como a convenção de Menno Blaauw^[44] e a convenção de Stoughton-Halperin^[46].

2.2 Análise de Ativação Neutrônica e o Método k_0

A AAN é uma técnica utilizada para determinar as concentrações de elementos em uma dada amostra, sendo capaz de analisar várias simultaneamente. A amostra pode ser líquida (aquosa ou orgânica) ou sólida (animal, tecido, cerâmica, vidros, papeis, plásticos, metais etc.)^[47].

A forma mais comum de AAN é a Análise de Ativação Neutrônica Instrumental (AANI). Nesta técnica, uma quantidade de amostras com suas massas medidas são encapsuladas adequadamente para serem analisadas e enviadas pneumáticamente (ou manualmente) em um local de irradiação de um reator nuclear de pesquisa, sendo bombardeada por nêutrons que são produzidos no reator. Uma vez irradiada em um determinado tempo, a amostra é retirada do local e a atividade induzida é medida pela contagem em um espectrômetro de raios-gama. O resultado da contagem produz um espectro no qual específicas energias de raios-gama produzem picos, cuja áreas são proporcionais à quantidade do elemento que é responsável pelos raios-gama. Para determinar a quantidade real de um elemento em uma amostra, as áreas dos picos são comparadas com informações da literatura, ou ainda, a partir de um elemento utilizado como referência^[47].

Existem três tipos de reações de ativação por nêutrons: reação (n, γ) , reação (n, p) e reação (n, α) . A primeira reação é gerada por nêutrons térmicos, enquanto as demais são geradas, principalmente, por nêutrons epitérmicos e rápidos, respectivamente. A reação nuclear induzida por nêutrons, de grande importância para a AAN, é a de captura de nêutrons (n, γ) . Neste processo o núcleo composto libera a energia de excitação por meio da emissão de radiação eletromagnética.

A AAN é um método de análise não destrutivo que é aplicável em quase todo campo de interesse científico^[48–56]. É capaz de determinar concentrações na ordem de partes por bilhão ou superior. No passado eram utilizados detectores de cintilação de NaI(Tl) para a medida e identificação de raios-gama, entretanto, apresentavam baixa resolução em energia, o que em razão do grande número de radionuclídeos gerados tornava-se necessária a separação radioquímica dos elementos para eliminar a superposição dos picos do espectro^[57]. Com o advento dos detectores semicondutores de germânio de alta resolução, aliado ao uso dos analisadores multicanais, houve um avanço significativo na determinação de muitos elementos, eliminando em grande parte a necessidade e as incertezas ocasionadas pelo tratamento radioquímico. Atualmente, estão disponíveis programas sofisticados para análise espectral, que são ferramentas poderosas para a área de ativação neutrônica^[58]. A necessidade de um reator nuclear como fonte de nêutrons pode ser uma desvantagem para a

AAN em vista da sua limitação de utilização e pesquisa, sendo aplicável somente em setores que possuem um reator, além da instrumentação para medir a radioatividade gama.

Os avanços alcançados dentro da técnica de AAN ao longo do tempo foram importantes para ampliar o número de elementos analisados, gerando resultados com maior precisão e exatidão. O método baseado em um único comparador tem sido amplamente avaliado e demonstrou-se ser tão eficiente (ou mais) quanto o método relativo^[59]. O termo “único comparador” refere-se à técnica cuja análise multi-elementar é realizada por meio da irradiação e medição utilizando um único elemento comparador. A taxa de contagem específica da amostra, A_{sp} , pode ser calculada pela multiplicação da taxa de contagem específica do comparador, $A_{sp,c}$, com o fator comparador experimentalmente determinado, k , expresso como:^[60]

$$k = \frac{A_{sp}}{A_{sp,c}} = \frac{M_c}{M} \frac{\gamma}{\gamma_c} \frac{\varepsilon_p}{\varepsilon_{p,c}} \frac{\theta}{\theta_c} \frac{\hat{\Phi}}{\hat{\Phi}_c} \frac{\hat{\sigma}}{\hat{\sigma}_c} \quad (2.35)$$

sendo:

$$A_{sp} = \frac{N_A \theta \gamma}{M} \left(G_{th} \hat{\Phi}_{th} \hat{\sigma} + G_e \hat{\Phi}_e I_0(\alpha) \right) \varepsilon_p = \frac{N_p/t_m}{SDCW} \quad (2.36)$$

onde:

M = Massa atômica do elemento irradiado;

θ = Abundância isotópica do nuclídeo alvo;

γ = Intensidade absoluta do raio-gama considerado;

ε_p = Eficiência do detector para o pico de absorção total de energia do raio-gama considerado;

$\hat{\Phi}$ = Fluxo de nêutrons do reator convencional (Fluxo total de Westcott)^[34];

$\hat{\Phi}_{th}$ = Fluxo de nêutrons térmicos convencional;

$\hat{\Phi}_e$ = Fluxo de nêutrons epitérmicos convencional;

$\hat{\sigma}$ = Seção de choque efetiva;

S = Fator de saturação dependente da constante de decaimento λ e tempo de irradiação t_{irr} , dado por:

$$1 - e^{-\lambda t_{irr}} \quad (2.37)$$

D = Fator de correção para o decaimento entre o início da medida e a data de referência;

C = Fator de correção para o decaimento durante o tempo de medida;

N_p = Área sob o pico de absorção total de energia;

t_m = Tempo de medida;

w = Massa do elemento.

O método do comparador acima descrito foi avaliado criticamente por GIRARDI *et al.*^[60, 61]. Novas aproximações foram desenvolvidas posteriormente como alternativas, utilizando outras convenções como de Høgdahl e Stoughton-Halperin para o cálculo da taxa de reação R , introduzindo assim o fator k_0 ^[60, 62], cujo diferencial era a não dependência do espectro de nêutrons na posição de irradiação e das características do detector utilizado, ou seja, o fator não incluía a secção de choque efetiva e a eficiência de detecção. O conceito do método k_0 pode ser aproximado por duas diferentes maneiras:^[11]

Maneira 1: Se os fatores k determinados experimentalmente pelo método do comparador único forem normalizados para as condições experimentais de irradiação (f , α) e contagens (ε), k_0 pode ser obtido a partir da equação:

$$k_0(i) = k_c(i) \frac{G_{th,c} f + G_{e,c} Q_{o,c}(\alpha) \varepsilon_{p,c}}{G_{th,i} f + G_{e,i} Q_{o,i}(\alpha) \varepsilon_{p,i}} \quad (2.38)$$

sendo $k_c(i)$ expresso por:

$$k_c(i) = \frac{A_{sp,i}}{A_{sp,c}} = \frac{M_c}{M_i} \frac{\gamma_i}{\gamma_c} \frac{\theta_i}{\theta_c} \frac{\sigma_{0,i}}{\sigma_{0,c}} \frac{G_{th,i} f + G_{e,i} Q_{o,i}(\alpha) \varepsilon_{p,i}}{G_{th,s} f + G_{e,c} Q_{o,c}(\alpha) \varepsilon_{p,c}} \quad (2.39)$$

O fator k_0 é definido, portanto, como uma constante nuclear composta:

$$k_{0,c}(i) = \frac{M_c}{M_i} \frac{\gamma_i}{\gamma_c} \frac{\theta_i}{\theta_c} \frac{\sigma_{0,i}}{\sigma_{0,c}} \quad (2.40)$$

Supondo que após a determinação dos valores de $k_0(i) = k_0(a)$ a amostra é co-irradiada com um monitor (m) para qual possui um valor de $k_{0,c}(m)$ experimentalmente determinado, a concentração do analito c_a é obtida pela relação:

$$c_{a,ppm} = \frac{A_{sp,a}}{A_{sp,m}} \frac{k_{0,c}(m)}{k_{0,c}(a)} \frac{G_{th,m} \cdot f + G_{e,m} Q_{o,m}(\alpha) \cdot \epsilon_{p,m}}{G_{th,a} \cdot f + G_{e,a} Q_{o,a}(\alpha) \cdot \epsilon_{p,a}} \cdot 10^6 \quad (2.41)$$

na condição em que não há variação isotópica entre o analito e a amostra ($\theta_a = \theta_i$).

Maneira 2: No método absoluto, a concentração é expressa por:

$$c_{a,ppm} = \frac{A_{sp,a}}{A_{sp,m}} \frac{M_a}{M_m} \frac{\gamma_m}{\gamma_a} \frac{\theta_m}{\theta_a} \frac{\hat{\sigma}_m}{\hat{\sigma}_a} \frac{G_{th,m} \cdot f + G_{e,m} Q_{o,m}(\alpha) \cdot \epsilon_{p,m}}{G_{th,a} \cdot f + G_{e,a} Q_{o,a}(\alpha) \cdot \epsilon_{p,a}} \cdot 10^6 \quad (2.42)$$

Substituindo os dados nucleares $M_m \gamma_a \theta_a \hat{\sigma}_a / M_a \gamma_m \theta_m \hat{\sigma}_m$ por uma única constante nuclear, $k_{0,m}$, definida como o fator para o elemento analisado com referência ao monitor, a concentração do analito é obtida pela expressão:

$$c_{a,ppm} = \frac{A_{sp,a}}{A_{sp,m}} \frac{1}{k_{0,m}(a)} \frac{G_{th,m} \cdot f + G_{e,m} Q_{o,m}(\alpha) \cdot \epsilon_{p,m}}{G_{th,a} \cdot f + G_{e,a} Q_{o,a}(\alpha) \cdot \epsilon_{p,a}} \cdot 10^6 \quad (2.43)$$

O método k_0 pode ser, portanto, interpretado como uma substituição dos dados nucleares pelo fator k_0 calculado experimentalmente. Isso elimina incertezas provenientes destes dados, tornando o resultado mais preciso, sob a condição, evidentemente, de que a determinação experimental de k_0 seja realizada corretamente.

O valor de k_0 também pode ser obtido por outro método além do demonstrado pela EQ. (2.38), por meio da técnica de subtração cádmica, expresso por:

$$k_{0,c}(i) = \frac{A_{sp,i} - \frac{(A_{sp,i})_{Cd}}{F_{Cd,i}}}{A_{sp,c} - \frac{(A_{sp,c})_{Cd}}{F_{Cd,c}}} \cdot \frac{G_{th,c} \cdot \epsilon_{p,c}}{G_{th,i} \cdot \epsilon_{p,i}} \quad (2.44)$$

com o diferencial de não necessitar da introdução de f e $Q_0(\alpha)$.

O comparador usado por conveniência para manter os dados de k_0 condensados e organizados é o ouro (^{198}Au), entretanto, outros monitores podem ser utilizados, como Co, Zn, Zr etc., bastando fazer a conversão dada por (o índice Au representa o comparador c)^[39]:

$$k_{0,m}(i) = \frac{k_{0,Au}(i)}{k_{0,Au}(m)} \quad (2.45)$$

Para medidas de k_0 precisas em aplicações práticas, dois parâmetros do espectro do reator, f e α , devem ser analisados, e dois parâmetros nucleares Q_0 e $\bar{E}_r$, e a curva de eficiência em energia do detector também devem ser conhecidos. O uso combinado de ^{198}Au , ^{94}Zr e ^{96}Zr como monitores se tornou mais conveniente em razão da baixa contribuição às incertezas para o cálculo de f e α e pelas características de ambos Zr citados na sessão 2.4. Se a irradiação com cádmio, por algum motivo, não for possível ou se a condição de constância de f não pode ser validado ou provada, pode-se calcular α e f sem a necessidade do uso de uma cobertura de cádmio, utilizando um isótopo, usualmente ^{94}Zr ou ^{198}Au como um comparador, enquanto os pares ^{94}Zr - ^{96}Zr e ^{198}Au - ^{96}Zr são usados como monitores de fluxo independentes. As razões de fluxo obtidas serão iguais se $\alpha = 0$ ou se os valores Q_0 utilizados forem corrigidos para α durante os cálculos. α e f podem então ser simultaneamente determinados sem o uso da cobertura cádmica^[39, 63].

2.3 Determinação de α para o fluxo de nêutrons epitérmicos

O comportamento do fluxo de nêutrons epitérmicos em uma situação real é representado por uma aproximação do tipo $1/E^{1+\alpha}$, como expresso na EQ. (2.7) e EQ. (2.8), e na FIG. 1. O parâmetro α , como dito, deve ser determinado experimentalmente. As metodologias para a sua determinação, de acordo com De Corte^[11], podem ser classificadas em três grupos, que correspondem a uma medida de razão de cádmio (*Cd-ratio measurements*), irradiação coberta com cádmio (*Cd-covered irradiation*) e irradiação descoberta (*bare irradiation*).

2.3.1 Método da razão de cádmio com monitores múltiplos

Um conjunto de monitores é irradiado com e sem cobertura de cádmio. A atividade induzida é medida em um detector de germânio hiperpuro (HPGe). Se considerar que todos os monitores possuem uma dependência que tendem à lei- $1/v$ para energias de até 1,5 eV, α pode ser obtido pela inclinação da curva ao desenhar o gráfico da expressão (o índice i refere-se a cada núcleo alvo):

$$\ln \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{(F_{Cd,i} \cdot R_{Cd,i} - 1) \cdot Q_{0,i}(\alpha) \cdot \frac{G_{e,i}}{G_{th,i}}} \text{ versus } \ln \bar{E}_{r,i} \quad (2.46)$$

onde:

$\bar{E}_{r,i}$ = Energia de ressonância média;

$F_{Cd,i}$ = Fator de transmissão de cádmio;

$R_{Cd,i}$ = Razão entre a taxa de contagem específica do isótopo irradiado sem cobertura de Cádmio e a taxa de contagem específica do isótopo irradiado com cobertura de Cádmio;

$Q_{0,i}(\alpha)$ = Razão entre a integral de ressonância e a seção de choque térmica do núcleo alvo em função de α ;

$G_{e,i}$ = Correção para auto blindagem de nêutrons epitérmicos.

De Corte^[11] sugere, para este método, evitar a utilização de monitores com alto valor de Q_0 em virtude do aumento de fatores de propagação de erros, especialmente em locais de irradiação com baixo fluxo. Também enfatiza evitar a termalização por espaçadores de polietileno nos recipientes para as irradiações com e sem cádmio. Por outro lado, desde que somente razões de cádmio estejam envolvidas, qualquer geometria de contagem pode ser utilizada.

2.3.2 Método de monitores múltiplos cobertos com cádmio

De modo semelhante ao método anterior, um conjunto de monitores é irradiado simultaneamente sob uma cobertura de cádmio e a atividade é medida por meio de um detector de germânio hiper puro (HPGe) com a eficiência de detecção conhecida. Se as seções de choque dos monitores aproximam-se da lei-

$1/\nu$ para energias de até 1,5 eV, o parâmetro α pode ser obtido pela inclinação da curva ao graficar^[9, 64]:

$$\ln \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} (A_{sp,i})_{cd}}{k_{0,c}(i) \varepsilon_{p,i} F_{Cd,i} Q_{0,i}(\alpha) G_{e,i}} \quad \text{versus} \quad \ln \bar{E}_{r,i} \quad (2.47)$$

onde:

$(A_{sp,i})_{cd}$ = Taxa de contagem específica (Área do pico de absorção total de energia para a reação), corrigida pelo fator de saturação, tempo de decaimento, soma em cascata, geometria, tempo de medida e massa;

$k_{0,c}(i)$ = Fator k_0 do monitor com relação ao comparador (usualmente Au);

$\varepsilon_{p,i}$ = Eficiência de pico do detector HPGe para a energia gama do monitor;

O índice c refere-se ao elemento comparador. Como o lado esquerdo da EQ. (2.47) também depende do parâmetro α , um procedimento iterativo torna-se necessário para obter um valor final, começando por plotar a EQ. (2.47) com $\alpha = 0$ que oferece a primeira aproximação de $\alpha = \alpha_1$ e assim por diante. O uso de três monitores com $\bar{E}_{r,i}$ bem afastados entre si podem trazer resultados com maior precisão e exatidão para o monitoramento de α ^[11, 64].

2.3.3 Método Múltiplos Monitores descobertos

Este método consiste em irradiar um conjunto de monitores, juntos com um monitor de referência, sem a cobertura de cádmio, e a atividade induzida é medida por meio de um detector de HPGe com uma eficiência de detecção conhecida. Assim como os métodos anteriores, se as seções de choque dos monitores tendem à lei- $1/\nu$ para energias de até 1,5 eV, o parâmetro α pode ser obtido pela inclinação da curva ao desenhar o gráfico:

$$\ln \left\{ (\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} \cdot \frac{\frac{A_{sp,i}}{k_{0,Au}(i)} \varepsilon_{p,i} - \frac{A_{sp,ref}}{k_{0,Au}(ref)} \varepsilon_{p,ref}}{\frac{Q_{0,i}(\alpha) G_{e,i}}{G_{th,i}} - \frac{Q_{0,ref}(\alpha) G_{e,ref}}{G_{th,ref}}} \right\} \quad \text{versus} \quad \ln \bar{E}_{r,i} \quad (2.48)$$

O índice *ref* está associado ao monitor de referência. O número mínimo de monitores é 3, sendo dois monitores mais um de referência. Esta configuração é uma técnica conhecida como Método dos Três Monitores Descobertos (*Bare-Triple Monitor Method*).

Os fatores de propagação de erros e as incertezas resultantes que envolvem α são, em geral, maiores neste método em comparação com os métodos anteriormente citados^[11].

2.4 Determinação do parâmetro Q_0 e o Fator de Cádmio F_{Cd}

Os valores de Q_0 são definidos como a razão entre a integral de ressonância I_0 em um espectro do tipo $1/E$ pela seção de choque térmica σ_0 , correspondente a um nêutron com velocidade de 2200 m/s^[40, 65]:

$$Q_0 = \frac{I_0}{\sigma_0} \quad (2.49)$$

A integral de ressonância, como representado na EQ. (2.6), pode ser definido pelo método da razão de cádmio, onde $t(E)$ é uma função de transmissão cádmica:

$$I_{Cd} = \int_0^\infty t(E)\sigma(E)\phi^*(E)dE \quad (2.50)$$

Onde $\phi^*(E)$ refere-se ao espectro com perturbações. A EQ. (2.49) reduz-se para EQ. (2.6) se definir os limites da integral entre as energias de corte de cádmio E_{Cd} até E_3 , que corresponde a 2 MeV. Os efeitos de auto blindagem devem ser desprezíveis de modo que o espectro $\phi^*(E)$ seja igual ao espectro sem perturbações $\phi(E)$ ^[65], ou seja, que obedece a forma $1/E$, e $t(E)$ é uma função degrau idealizada do tipo:

$$t(E) = \begin{cases} 0 & \text{se } E < E_{Cd} \\ 1 & \text{se } E \geq E_{Cd} \end{cases} \quad (2.51)$$

O termo $t(E)$ pode ser expresso de um modo mais realístico, como:

$$t(E) = e^{-N_{Cd}d\sigma_{Cd}(E)} \quad (2.52)$$

onde:

d = Espessura da cobertura de cádmio;

σ_{Cd} = Seção de choque total do cádmio;

N_{Cd} = Número de átomos da cobertura de cádmio, dado por:

$$N_{Cd} = \frac{\rho_{Cd}N_A}{M_{Cd}} \quad (2.53)$$

onde:

ρ_{Cd} = Densidade do cádmio;

N_A = Número de Avogadro;

M_{Cd} = Massa molar do cadmio

A integral de ressonância da EQ. (2.49) é uma medida a ser comparada com a EQ (2.6) nos limites da energia de corte de cádmio. Introduce-se um fator de cádmio F_{Cd} para corrigir eventuais diferenças^[65]:

$$I = \int_{E_{Cd}}^{E_3} \sigma(E)\phi(E)dE = \frac{1}{F_{Cd}} \int_0^{\infty} t(E)\sigma(E)\phi(E)dE \quad (2.54)$$

Assim:

$$F_{Cd} = \frac{\int_0^{\infty} t(E)\sigma(E)\phi(E)dE}{\int_{E_{Cd}}^{E_3} \sigma(E)\phi(E)dE} \quad (2.55)$$

Os desvios de F_{Cd} de uma unidade podem ser por fatores relacionados com a função de transmissão cádmica.

A determinação do valor de Q_0 é possível de ser realizada por meio da medida da razão de cádmio, expresso por:^[11, 63]:

$$Q_0 = \frac{F_{Cd,c} R_{Cd,c}^{-1}}{F_{Cd,i} R_{Cd,i}^{-1}} \frac{G_{th,i}}{G_{th,c}} \frac{G_{e,c}}{G_{e,i}} Q_{o,c} \quad (2.56)$$

onde R_{Cd} é a razão de cádmio. A razão de cádmio é definida como sendo a razão entre as taxas de contagens específicas da amostra com e sem cobertura de cádmio, dada por:

$$R_{Cd,i} = \frac{A_{sp,i}}{(A_{sp})_{Cd,i}} \quad (2.57)$$

Sendo $A_{sp,i}$ e $(A_{sp})_{Cd,i}$ as taxas de contagens específicas da amostra sem cádmio e com cádmio, respectivamente. Aplicando o fator α de aproximação na EQ. (2.55), considerando as EQ; (2.32) e (2.49), chega-se, portanto, à expressão:

$$Q_0(\alpha) = \frac{I_0(\alpha)}{\sigma_0} \quad (2.58)$$

Assim, pelo método da Razão de Cádmio, define-se $Q_0(\alpha)$ como:

$$Q_0(\alpha) = \frac{F_{Cd,c} R_{Cd,c} - 1}{F_{Cd,i} R_{Cd,i} - 1} \frac{G_{th,i}}{G_{th,c}} \frac{G_{e,c}}{G_{e,i}} Q_{o,c}(\alpha) \quad (2.59)$$

ou:

$$Q_0(\alpha) = \frac{f}{F_{Cd,i} R_{Cd,i} - 1} \frac{G_{th,i}}{G_{e,i}} \quad (2.60)$$

onde f é a razão entre os fluxos térmicos e epitérmicos, que pode ser obtida também por meio do método da Razão de Cádmio:

$$f = \frac{\varphi_{th}}{\varphi_e} = (F_{Cd,c} R_{Cd,c} - 1) G_{e,c} \frac{Q_{o,c}(\alpha)}{G_{th,c}} \quad (2.61)$$

ou por meio do método dos Monitores Bi-Isotópicos Descobertos. Este método consiste em irradiar um conjunto de monitores sendo dois isótopos cuja características sejam bem conhecidas e com valores de Q_0 bastante afastados entre si^[58], e um monitor de referência. O parâmetro f é calculado pela expressão:

$$f = \frac{G_{e,i} \frac{k_{0,c}(1)\varepsilon_{p,1}}{k_{0,c}(2)\varepsilon_{p,2}} Q_{0,1}(\alpha) - G_{e,2} \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} Q_{0,2}(\alpha)}{G_{th,2} \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} G_{th,1} - G_{th,1} \frac{k_{0,c}(1)\varepsilon_{p,1}}{k_{0,c}(2)\varepsilon_{p,2}}} \quad (2.62)$$

Onde, usualmente, utiliza-se os isótopos ^{95}Zr e ^{97}Zr , que melhor representam as características citadas, indicados pelos índices 1 e 2 na EQ. (2.62), respectivamente.

A relação entre Q_0 e $Q_0(\alpha)$ é dada por^[11]:

$$Q_{0,i}(\alpha) = \frac{Q_{0i}-0,429}{E_i^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha+1).0,55^\alpha} \quad (2.63)$$

2.5 Outros parâmetros que compõem o método k_0

2.5.1 Eficiência de detecção

Todos os detectores de radiação irão, em princípio, dar origem a um pulso de saída para cada quantum de radiação que interaja dentro do seu volume ativo. Para radiações de partículas carregadas tais como alfa ou beta, a interação, sob a forma de ionização ou excitação, ocorrerá imediatamente após a entrada da partícula no volume. Uma partícula formará pares de íons ao longo de seu caminho garantindo que o pulso resultante é grande o suficiente para ser registrado. Desse modo, um detector irá detectar cada partícula alfa ou beta que entra em seu volume ativo. Nestas condições, diz-se que o detector tem uma eficiência de contagem de 100%^[22, 66].

As radiações não carregadas, como radiações gama ou nêutrons, devem primeiro sofrer uma interação significativa antes da detecção ser possível. Como essas radiações podem percorrer grandes distâncias entre as interações, ocorre a condição dos detectores não serem 100% eficientes. Torna-se necessário ter uma correção precisa para a eficiência do detector, a fim de relacionar o número de pulsos contados para o número de nêutrons ou fótons incidentes sobre o detector. É conveniente subdividir as eficiências de contagem em duas classes: absoluta e intrínseca. As eficiências absolutas são definidas como:

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\text{número de pulsos registrados}}{\text{número de fótons de radiação emitidos pela fonte}} \quad (2.64)$$

e não dependem somente das propriedades do detector, mas também da geometria de detecção, como a distância entre a fonte e o detector. A eficiência intrínseca é definida como:

$$\varepsilon_{int} = \frac{\text{número de pulsos registrados}}{\text{número de fótons de radiação incidentes no detector}} \quad (2.65)$$

e depende do material do detector, da energia da radiação e da espessura física do detector na direção em que a radiação está incidindo.

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

$$\varepsilon_p(E) = \frac{N_p}{\gamma A t} f(E) \quad (2.66)$$

onde:

A = Atividade da fonte;

t = Tempo de medida;

$f(E)$ = Constituído por todos os fatores de correções que devem ser aplicados, tais como: decaimento radioativo, atenuação na fonte, tempo morto, soma em cascata, atenuação da fonte e geometria de detecção. Nota-se que estes fatores dependem da energia considerada^[18].

A determinação de ε_p é realizada pela medição da eficiência em condições de referência usando fontes calibradas, ou seja, padronizadas em atividade. As fontes padronizadas normalmente têm uma geometria ligeiramente diferente das amostras a serem analisadas, necessitando aplicar uma correção para a posição da fonte padrão. Podem ocorrer detecções simultâneas de outras

radiações gama, que surgem em cascata com o gama a ser medido. Se estas radiações em cascata forem detectadas durante um intervalo de tempo menor que o tempo de resolução do espectrômetro, o pulso resultante corresponderá à soma dos pulsos individuais. Desta forma, o número de contagens sob o pico de absorção total será alterado. Para corrigir este problema podem ser utilizadas simulações baseadas no método de Monte Carlo^[67].

2.5.2 Correções de auto-blindagem

Para materiais contendo núclídeos com grandes seções de choque é importante considerar o fatores de auto-blindagem para nêutrons térmicos e epitérmicos (*self-shielding factors*). Amostras biológicas, por exemplo, costumam possuir uma certa vantagem para a o método AAN em razão de não conterem elementos com altos níveis de seção de choque para reações (n, γ) e, portanto, os efeitos de auto-blindagem para nêutrons térmicos são pequenos^[1]

A presença de uma amostra num campo de nêutrons térmicos ou epitérmicos de um reator nuclear cria uma perturbação no fluxo de nêutrons no local. Este efeito pode ser de considerável importância se a seção de choque da amostra exibir um relevante pico de ressonância para o campo de nêutrons considerado. Em uma situação típica, a atividade A de um dado núclídeo produzido pela reação (n, γ) por meio da irradiação de uma amostra contendo uma quantidade m de elemento é dada por:

$$A = \frac{mN_A\theta}{M} \sigma_{th} \varphi_{th} \left(G_{th} + \frac{G_e Q_0}{f} \right) (1 - e^{-\lambda t_{irr}}) \quad (2.67)$$

sendo $f = \varphi_{th}/\varphi_{ep}$, conforme definido na EQ. (2.61), φ_{th} e φ_{ep} , são fluxos térmicos e epitérmicos não perturbados, respectivamente. Na prática, φ_{th} e φ_{ep} são medidos através da irradiação simultânea de monitores de fluxo próximo da amostra absorvedora. Para irradiações curtas e assumindo que φ_{th} e φ_{ep} são constantes com o tempo, pode-se medi-los irradiando monitores de fluxo antes ou depois da amostra, na mesma posição. O uso de simulações com método de Monte Carlo também auxilia na obtenção dos valores de G_{th} e G_{ep} , por meio de

uma simulação comparando a amostra real com uma amostra infinitamente diluída^[65,66].

Os fatores de correção G_{th} e G_{ep} dependem da geometria da amostra e são iguais a uma unidade quando as amostras estão suficientemente diluídas. O fator G_{th} depende da quantidade dos elementos na amostra que absorvem nêutrons térmicos, enquanto G_{ep} pode ser influenciado por outros núclídeos, como isótopos do mesmo elemento ou isótopos de elementos diferentes presentes na amostra, contudo, somente se esses núclídeos absorverem nêutrons com energias de ressonância que se sobrepõem com as ressonâncias que ativam o núclídeo em questão.

Uma função sigmóide universal foi desenvolvida para os cálculos de G_{th} e G_{ep} ^[69, 70]. Para nêutrons térmicos a expressão é dada por:

$$G_{th} = \frac{1}{1 + \left(\frac{z}{1,029}\right)^{1,009}} \quad (2.68)$$

onde:

$$z = x \Sigma_t \left(\frac{\Sigma_a}{\Sigma_t}\right)^k \quad (2.69)$$

sendo:

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

Σ_t = Seção de choque macroscópica total;

Σ_a = Seção de choque macroscópica de absorção;

x = Espessura ou raio, para o caso da amostra ser uma folha, um fio ou esfera.

Para nêutrons epitérmicos a expressão é dada por:

$$G_e = \frac{0,94}{1 + \left(\frac{z}{2,70}\right)^{0,82}} + 0,06 \quad (2.70)$$

onde:

$$z = \Sigma_t(E_{res}) y \left(\frac{\Gamma_Y}{\Gamma}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (2.71)$$

sendo:

y = O raio R para amostra esférica ou $2R$ para amostra cilíndrica; a espessura t , sendo $1,5t$ para folhas;

Γ = Largura total de nível de excitação do núcleo-alvo;

Γ_γ = Largura de nível para o canal de saída gama;

$\frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma}$ = Probabilidade de decaimento para o canal de saída gama.

A estimativa de G_{ep} como função da concentração do elemento a da geometria da amostra é uma tarefa complexa, em razão de cada nuclídeo possuir um padrão de ressonância diferente e às vezes complexo^[71]. O uso do método de Monte Carlo pode ser dispendioso e não muito prático para situações de rotina de AAN. Uma maneira comum tem sido evitar este problema diluindo as amostras ou irradiando em um espectro de nêutrons com baixo componente epitérmico.

2.6 Análises das incertezas

Dados analisados usualmente são processados através de multiplicação, adição ou outra manipulação funcional para chegar a um resultado de interesse. Os valores que são produzidos por estas etapas são distribuídos de uma forma que é dependente tanto da distribuição original como dos tipos de operações realizadas. Embora o valor médio da distribuição proveniente seja simplesmente calculado a partir das médias das distribuições originais, os valores do desvio padrão não são tão óbvios. Pode-se mostrar que se os erros são individualmente pequenas e simétricas em torno de zero, é possível obter um resultado geral para que a incerteza esperada seja associada a qualquer quantidade que é calculada como uma função das variáveis independentes. Se x , y , z ,... são contagens diretamente medidas ou outras variáveis relacionadas para as quais são conhecidas σ_x , σ_y , σ_z ,... então o desvio padrão para qualquer quantidade u pode ser calculado a partir da expressão^[22]:

$$\sigma_u^2 = \left(\frac{\delta u}{\delta x}\right)^2 \sigma_x^2 + \left(\frac{\delta u}{\delta y}\right)^2 \sigma_y^2 + \left(\frac{\delta u}{\delta z}\right)^2 \sigma_z^2 + \dots \quad (2.72)$$

onde $u = (x, y, z, \dots)$ representa a quantidade derivada. A equação (2.72) é usualmente conhecida como a fórmula de propagação de erros (incertezas) e é aplicável a quase todas as situações em medições nucleares. As variáveis x , y ,

$z, \dots$, se forem verdadeiramente independentes, não apresentarão efeitos de correlação.

É possível, também, analisar as incertezas por meio de uma matriz de covariância, uma forma compacta e otimizada de escrever as variâncias e as covariâncias de um dado. Considerando n grandezas físicas $y_1, y_2 \dots y_n$, a matriz de covariância é definida por^[20]

$$V_y = \begin{pmatrix} \sigma_1^2 & COV(y_1 y_2) & \cdots & COV(y_1 y_n) \\ COV(y_1 y_2) & \sigma_2^2 & \cdots & COV(y_2 y_n) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ COV(y_1 y_n) & COV(y_2 y_n) & \cdots & \sigma_n^2 \end{pmatrix} \quad (2.73)$$

Os termos diagonais são as variâncias das respectivas grandezas e os termos fora da diagonal são as covariâncias entre elas. Por ser uma matriz simétrica, $COV(y_i y_j) = COV(y_j y_i)$. A covariância é calculada como^[20, 72]:

$$\sigma_{xy} = \frac{1}{N-1} \Sigma (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y}) \quad (2.74)$$

onde N é um número de pares de medidas $(x_1, y_1), \dots, (X_N, y_N)$ de duas variáveis x e y e $\bar{x}$ e $\bar{y}$ são os valores esperados das mesmas, respectivamente.

O coeficiente de correlação, cuja função verifica quão correlacionadas estão duas grandezas, é dado por^[72]:

$$r = \frac{\sigma_{xy}}{\sigma_x \sigma_y} = \frac{\Sigma (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sqrt{\Sigma (x_i - \bar{x})^2 \Sigma (y_i - \bar{y})^2}} \quad (2.75)$$

A metodologia que utiliza as covariâncias é importante para que se possa obter resultados com o valor mais rigoroso da incerteza na grandeza mensurada. As referências da literatura possuem alguns trabalhos que procuraram desenvolver metodologias para este fim, determinando concentrações dos elementos químicos pelo método k_0 ^[73-75]. Porém muitos trabalhos verificados não consideraram as dependências dos parâmetros, calculando as possíveis correlações existentes entre si, tratando-os como variáveis independentes ou

mesmo não explicitando tal questão. Outros trabalhos usam os programas KAYZERO e k_0 -IAEA para as análises^[36, 52, 76, 77, 78], contudo, verificando o manual, nota-se que algumas fontes de incertezas não estão incluídas nos cálculos, o que pode apresentar resultados com incertezas que não sejam totalmente satisfatórios ou até mesmo incompletos.

As teorias e equações definidas até o momento foram utilizadas para a construção e atualização dos códigos COVAR e AKFIT, resultando assim em um método para calcular os valores de k_0 e Q_0 e suas incertezas com, potencialmente, maior precisão, utilizando as matrizes de covariância.

3 METODOLOGIA

3.1 Atualização do código COVAR

O desenvolvimento dos códigos presentes neste trabalho teve como base os procedimentos adotados a seguir. Os valores de k_0 de cada nuclídeo i em relação ao comparador c (para o presente trabalho foi utilizado ^{198}Au) são determinados através de medições das atividades das amostras irradiadas com e sem cobertura de cádmio, como definido pela EQ. (2.44):

$$k_{0,Au}(i) = \frac{A_{sp,i} - \frac{(A_{sp,i})_{Cd}}{F_{Cd,i}}}{A_{sp,Au} - \frac{(A_{sp,Au})_{Cd}}{F_{Cd,Au}}} \cdot \frac{G_{th,Au} \cdot \varepsilon_{p,Au}}{G_{th,i} \cdot \varepsilon_{p,i}} \quad (2.44)$$

onde os índices i e Au referem-se à amostra e ouro (comparador), respectivamente, e a taxa de contagem específica, A_{sp} , é definida pela EQ. (2.36).

Outra grandeza importante é a razão entre a integral de ressonância e a secção de choque para nêutrons térmicos, Q_0 . Os valores de $Q_{0,i}(\alpha)$ dependem do parâmetro α de acordo com a EQ. (2.63) e são obtidos pelos dados experimentais por meio da EQ. (2.56):

$$Q_{0,i}(\alpha) = \frac{(F_{Cd,Au} \cdot R_{Cd,Au} - 1) G_{th,i} G_{ep,Au}}{(F_{Cd,i} \cdot R_{Cd,i} - 1) G_{th,Au} G_{ep,i}} Q_{0,Au}(\alpha) \quad (2.56)$$

com a razão de cádmio, R_{Cd} , dada pela EQ. (2.57).

O código COVAR original^[18] utiliza as equações (3.1), (2.36), (2.63), (3.2) e (2.57) para as definições dos valores de $k_{0,Au}(i)$, $Q_{0,i}(\alpha)$, $Q_{0,i}$, $A_{sp,i}$, $(A_{sp})_{Cd,i}$ e $R_{Cd,i}$ (aqui, o índice i refere-se tanto para a amostra quanto para o comparador, Au).

Neste trabalho foi adicionado a expressão para o cálculo do k_0 que não utiliza os dados referentes às medições com cobertura de Cd , dada pela EQ. (2.38):

$$k_{0,Au}(i) = \frac{A_{sp,i}}{A_{sp,Au}} \cdot \frac{G_{th,Au} \cdot f + G_{ep,Au} Q_{0,Au}(\alpha) \varepsilon_{p,Au}}{G_{th,i} \cdot f + G_{ep,i} Q_{0,i}(\alpha) \varepsilon_{p,i}} \quad (2.38)$$

Também foram corrigidas certas limitações possuídas pelo COVAR em sua versão atual até este presente trabalho (COVAR v3). Uma das limitações era o número máximo de alvos que podem ser analisados em um arquivo de entrada. Outra limitação era sobre a análise das correlações entre k_0 e Q_0 , construídas para alguns casos específicos, e que foi generalizada para qualquer caso.

3.2 Ajuste Único

3.2.1 Ajuste linear de α e k_0

Um procedimento baseado no método dos mínimos quadrados^[19] foi desenvolvido para ajustar valores de k_0 de vários radionuclídeos que tiveram suas atividades determinadas por irradiação com e sem blindagem de cádmio. Neste procedimento, além de k_0 , o valor de α também é determinado em um ajuste linear nos parâmetros. Para isso, a expressão que envolve α no cálculo do k_0 foi manipulada algebricamente para possibilitar seu cálculo por meio de um ajuste linear.

As EQ. (2.46) e (2.47), utilizadas para calcular α pela inclinação da curva, podem ser expressas como:

$$Y_i = a + \alpha X_i \quad (3.1)$$

onde:

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

$$Y_i = \ln \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{(F_{Cd,i} \cdot R_{Cd,i} - 1) Q_{0,i}(\alpha) \frac{G_{e,i}}{G_{th,i}}}, \text{ para a EQ. (2.46);}$$

ou

$$Y_i = \ln \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} (A_{sp,i})_{Cd}}{k_{0,Au}(i) \varepsilon_{p,i} F_{Cd,i} Q_{0,i}(\alpha) G_{e,i}}, \text{ para EQ. (2.47)}$$

O valor de k_0 é obtida pela a EQ. (2.44). Os índices i e Au referem-se à amostra e ao comparador, Au, respectivamente. E $Q_0(\alpha)$ está relacionada conforme definida

pela EQ. (2.63). O procedimento deste método consistiu em ajustar simultaneamente os valores de k_0 , dados pela EQ. (3.5), e o valor de α , dado pela EQ. (3.4), utilizando os valores de Y_i expressos pela EQ. (2.47). O ajuste foi realizado pelo método dos mínimos quadrados, usando uma matriz de planejamento que vincula os valores de k_0 obtidos das medições aos valores de k_0 necessários para o cálculo do parâmetro α .

3.2.2 As equações de α e k_0

Partindo da EQ. (3.1) e das definições de X_i e Y_i , chegou-se a expressão:

$$\ln \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} (A_{sp})_{Cd,i}}{k_{0,Au}(i) \varepsilon_{p,i} F_{Cd,i} Q_{0,i}(\alpha) G_{e,i}} = a + \alpha \ln \bar{E}_{r,i} \quad (3.2)$$

E com uma manipulação algébrica, obteve-se:

$$\ln \frac{(A_{sp,i})_{Cd}}{k_{0,Au}(i) \varepsilon_{p,i} F_{Cd,i} G_{ep,i}} - \alpha \ln \bar{E}_{r,i} - \ln Q_{0,i}(\alpha) = a + \alpha \ln \bar{E}_{r,i} \quad (3.3)$$

Portanto:

$$\ln \frac{(A_{sp,i})_{Cd}}{k_{0,Au}(i) \varepsilon_{p,i} F_{Cd,i} G_{ep,i}} = a + 2\alpha \ln \bar{E}_{r,i} + \ln Q_{0,i}(\alpha) \quad (3.4)$$

O parâmetro α encontra-se apenas no lado direito da EQ. (3.4), entretanto, ainda não é linear em razão à expressão de $\ln Q_{0,i}(\alpha)$. Sabendo que $\alpha \approx 0$, expandiu-se a expressão de $\ln Q_{0,i}(\alpha)$ nas proximidades de $\alpha = 0$, cujo detalhes da operação pode ser vista na referência^[19]. Com o resultado deste procedimento obteve-se a expressão linear em α :

$$\ln \frac{(A_{sp,i})_{Cd}}{k_{0,Au}(i) Q_{0,i} \varepsilon_{p,i} F_{Cd,i} G_{ep,i}} = a + \frac{\alpha}{Q_{0,i}} [(Q_{0,i} + 0,429) \ln \bar{E}_{r,i} - 0,602] \quad (3.5)$$

Ajustou-se a EQ. (2.44) com a EQ. (3.5), possibilitando o uso de todos os dados referentes às amostras irradiadas com e sem cádmio (incluindo para o Au), não sendo mais necessário o uso de valores tabelados de k_0 para a EQ. (3.5):

$$\ln \left(\frac{A_{sp,i} - \frac{(A_{sp,i})_{Cd}}{F_{Cd,i}}}{A_{sp,Au} - \frac{(A_{sp,Au})_{Cd}}{F_{Cd,Au}}} \cdot \frac{G_{th,Au} \cdot \varepsilon_{p,Au}}{G_{th,i} \cdot \varepsilon_{p,i}} \right) = \ln k_{0,Au}(i) \quad (3.6)$$

3.2.3 Determinação de α e k_0 em um único ajuste

Para ajustar os valores de k_0 usando ambas as EQ. (3.5) e (3.6), foram colocados os valores de k_0 do lado direito da EQ. (3.5) como um parâmetro ajustável:

$$\ln \frac{(A_{sp,i})_{Cd}}{Q_{0,i} \varepsilon_{p,i} F_{Cd,i} G_{ep,i}} = a + \frac{\alpha}{Q_{0,i}} [(Q_{0,i} + 0,429) \ln \bar{E}_{r,i} - 0,602] + k_{0,Au}(i) \quad (3.7)$$

A EQ. (3.7), portanto, possui os parâmetros lineares a , α e $\ln k_{0,Au}(i)$ e a EQ. (3.6) tem apenas o parâmetro linear $k_{0,Au}(i)$. Com as EQ. (3.6) e (3.7) criou-se a equação matricial do problema pela superposição das duas equações, gerando um vetor $\vec{Y}$, onde:

$$\vec{Y} = \begin{bmatrix} Y^{sup} \\ Y^{inf} \end{bmatrix} \quad (3.8)$$

Essa divisão da EQ. (3.8) em Y^{sup} e Y^{inf} são, respectivamente, a composição das EQ. (3.7) e (3.6) formando o vetor $\vec{Y}$, ou seja:

$$\vec{Y} = \begin{bmatrix} \ln \frac{(A_{sp,i})_{Cd}}{Q_{0,i} \varepsilon_{p,i} F_{Cd,i} G_{ep,i}} \\ \ln \left(\frac{A_{sp,i} - \frac{(A_{sp,i})_{Cd}}{F_{Cd,i}}}{A_{sp,Au} - \frac{(A_{sp,Au})_{Cd}}{F_{Cd,Au}}} \cdot \frac{G_{th,Au} \varepsilon_{p,Au}}{G_{th,i} \varepsilon_{p,i}} \right) \end{bmatrix} \quad (3.9)$$

e a equação matricial é dada por:

$$\vec{Y} = \begin{bmatrix} a + \frac{\alpha}{Q_{0,i}} [(Q_{0,i} + 0,429) \ln \bar{E}_{r,i} - 0,602] + k_{0,Au}(i) \\ \ln k_{0,Au}(i) \end{bmatrix} \quad (3.9)$$

que pode ser escrita como $\vec{Y} = X \cdot \vec{A}$.

A quantidade de linhas que terá a matriz depende da quantidade de isótopos analisados. O vetor $\vec{A}$ representa os parâmetros a serem encontrados.

$$\vec{A} = \begin{bmatrix} a \\ \alpha \\ \ln k_{01} \\ \ln k_{02} \\ \vdots \\ \ln k_{0n} \end{bmatrix} \quad (3.10)$$

A matriz X é a matriz de planejamento, montada com as derivadas em primeira ordem de cada parâmetro de $\vec{A}$:

$$X = \begin{bmatrix} 1 & \frac{1}{Q_{0,1}} [(Q_{0,1} + 0,429) \ln \bar{E}_{r,1} - 0,602] & 1 & 0 & \cdots & 0 \\ 1 & \frac{1}{Q_{0,2}} [(Q_{0,2} + 0,429) \ln \bar{E}_{r,2} - 0,602] & 0 & 1 & \cdots & 0 \\ & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 1 & \frac{1}{Q_{0,n}} [(Q_{0,n} + 0,429) \ln \bar{E}_{r,n} - 0,602] & 0 & 0 & \cdots & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \cdots & 1 \end{bmatrix} \quad (3.11)$$

Criou-se ainda a matriz V_y que contém os termos da diagonal principal, correspondentes às variâncias dos elementos de $\vec{Y}$, e também os termos cruzados, que correspondem às covariâncias entre os diferentes elementos de $\vec{Y}$. Essa matriz mostrou-se trabalhosa pelo fato de haver vários fatores em comum nos diferentes elementos de $\vec{Y}$, tornando uma matriz grande e complexa.

Os elementos da diagonal principal de V_y foram obtidos pela propagação das variâncias dos elementos de $\vec{Y}$. As covariâncias foram calculadas conforme os critérios de avaliação: o envolvimento dos parâmetros do mesmo isótopo com mesma transição gama; o mesmo isótopo, mas com transições gama diferentes e isótopos diferentes.

Uma vez montadas as matrizes $\vec{Y}$, V_y e X , foi possível calcular os parâmetros de $\vec{A}$ e as respectivas covariâncias V_A por meio do método dos mínimos quadrados, utilizando o formalismo matricial, expresso da forma:

$$V_A = (X^t V_y X)^{-1} \quad (3.12)$$

e

$$\vec{A} = V_A X^t V_y^{-1} \vec{Y} \quad (3.13)$$

Os valores de $\vec{Y}$ ajustados são, portanto:

$$\vec{Y}_{aju} = X \vec{A} \quad (3.14)$$

Realizou-se a diferença entre os valores ajustados e experimentais para a realização do χ^2 , dado:

$$\vec{D} = \vec{Y} - \vec{Y}_{aju} \quad (3.15)$$

Assim:

$$\chi^2 = \vec{D}^t V_y^{-1} \vec{D} \quad (3.16)$$

Desse modo, concluiu-se o ajuste proposto, podendo analisar e comparar os resultados de k_0 obtidos com os da literatura.

3.2.4 Transferência do erro de X para Y

As grandezas $\bar{E}_{r,i}$ e $Q_{0,i}$ possuem incertezas e estão presentes também em X . Na propagação das incertezas de X para Y , após a determinação do valor de α , uma nova matriz V_Y é calculada. Os termos da diagonal principal da matriz correspondem a novos valores de variâncias dos Y_i , $\sigma_{Y_i}'^2$, calculados por:

$$\sigma_{Y_i}'^2 = \sigma_{Y_i}^2 + \left(\frac{\delta Y_i}{\delta \bar{E}_{r,i}} \right)^2 \sigma_{\bar{E}_{r,i}}^2 + \left(\frac{\delta Y_i}{\delta Q_{0,i}} \right)^2 \sigma_{Q_{0,i}}^2 \quad (3.17)$$

cujo resultado é:

$$\sigma_{Y_i}'^2 = \sigma_{Y_i}^2 + \left[\frac{\alpha(Q_{0,i}+0,429)}{\bar{E}_{r,i} Q_{0,i}} \right]^2 \sigma_{\bar{E}_{r,i}}^2 + \left\{ \frac{\alpha \ln \bar{E}_{r,i}}{Q_{0,i}} - \frac{\alpha [\ln \bar{E}_{r,i}(Q_{0,i}+0,429)-0,602]}{Q_{0,i}^2} \right\}^2 \sigma_{Q_{0,i}}^2 \quad (3.18)$$

Como $\bar{E}_{r,i}$ e $Q_{0,i}$ têm os mesmos valores para energias gamas diferentes do mesmo isótopo, é necessário também transferir estas incertezas para os termos covariantes de V_y . Os elementos de V_Y correspondentes a Y^{Sup} do mesmo isótopo devem ser recalculados.

3.2.5 Ajuste não linear de α e k_0

Criou-se um novo algoritmo para o ajuste de α e k_0 , passando agora para um ajuste não linear, esperando-se que seja obtido o mesmo resultado do método linear. Um procedimento utilizado em funções não lineares é o método de Gauss-Marquardt^[20]. No método, expande-se a função a ser ajustada até a primeira ordem da série de Taylor, e escolhe-se arbitrariamente os valores iniciais para os parâmetros. Ajustam-se então as variações nos parâmetros a partir dos valores escolhidos, encontrando-se as variações que produzam o mínimo da soma dos quadrados dos resíduos^[20].

Assim, com o método de Gauss-Marquardt criou-se uma matriz $R(\lambda)$ onde:

$$R(\lambda)_{ij} = (1 + \lambda \delta_{ij})(X^t V_y^{-1} X)_{ij} \quad (3.19)$$

sendo $\delta_{ij} = 1$ se $i = j$; $\delta_{ij} = 0$ se $i \neq j$

Isso significa que a matriz R é igual à matriz $(X^t V_y^{-1} X)$ com a diagonal multiplicada por $1 + \lambda$. Assim, o procedimento consiste, resumidamente, em criar uma matriz $\vec{A}'$ para os parâmetros a serem ajustados e seu $\chi_{inicial}^2$. Calcular posteriormente os valores $\vec{A}^{novo}$ dado por:

$$\vec{A}^{novo} = \vec{A}' + \Delta \vec{A} \quad (3.20)$$

onde:

$$\Delta \vec{A} = R(\lambda)_{ij} X^t V_y^{-1} Y^t \quad (3.21)$$

Calcular um χ_{novo}^2 e realizar a diferença entre eles, até que se verifique que $\chi_{novo}^2 < \chi_{inicial}^2$. Em caso contrário, multiplica-se λ por um fator (usualmente 10) e recalcula-se a matriz $R(\lambda)$. Quando verificado que $\chi_{novo}^2 < \chi_{inicial}^2$, reduz-se o valor de λ pelo fator multiplicativo, calcula-se um novo $R(\lambda)$ e atualiza-se os parâmetros pela EQ. (3.24), substitui-se o χ^2 atual pelo novo χ^2 calculado e repete-se o procedimento até que as diferenças entre os χ^2 possam ser

ignorados. Em outras palavras, significa descartar os valores do novo ajuste quando o chi-quadrado ajustado é maior que o anterior (ou inicial) ou substituir o valor anterior pelo novo quando o último chi-quadrado ajustado é menor, até que se chegue em uma diferença considerada desprezível entre eles. Estes foram os procedimentos executados para a elaboração do código de ajuste único, AKFIT v2.1, no presente trabalho.

3.3 Programas utilizados

3.3.1 Código COVAR

Foi utilizado a linguagem de programação Fortran^[79, 80] para a criação do código. É caracterizado por sua linguagem matemática, cujo nome é um acrônimo da expressão “IBM Mathematical Formula Translation System”. Costuma-se fazer uma pequena distinção entre FORTRAN e Fortran, no qual a primeira, em caixa alta, representa as versões iniciais da linguagem, enquanto a segunda representa as versões mais recentes, a partir do Fortran 90. A linguagem Fortran é principalmente usada em Ciência da Computação e Análise Numérica. Apesar de ter sido inicialmente uma linguagem de programação procedural, versões recentes de Fortran possuem características que permitem suportar programação orientada por objetos.

Existem diversos programas compiladores de Fortran. Procurou-se, neste presente trabalho, utilizar ferramentas que fossem grátis ou de código aberto (*open source*). Para compiladores utilizou-se o compilador GNU Fortran V. 6^[81]. Entretanto, por se tratar de um compilador Linux, necessitou-se a instalação de um emulador de programas deste sistema operacional para sistemas Windows 64 bits. Neste caso, foi utilizado o Cygwin V. 2.8.0-1^[82].

Para o ambiente de desenvolvimento integrado (IDE) empregou-se o programa Eclipse^[83], em sua versão Neon, com o *plugin* Photran, um *plugin* IDE voltado para Fortran que suporta as versões desde 77 até 2008 da linguagem, e que integra o compilador GNU Fortran ao Eclipse.

3.3.2 Código AKFIT

O código AKFIT foi desenvolvido no ambiente do programa científico para Computação Numérica Scilab V. 6.0.0^[84]. Esta linguagem de alto nível é orientada à Análise Numérica, semelhante ao Matlab, provê um ambiente para interpretação com diversas ferramentas. Algoritmos complexos podem ser criados em poucas linhas de código, em comparação com outras linguagens como C, Fortran ou C++.

Scilab inclui extensas funções matemáticas com a possibilidade de adicionar interativamente programas de várias linguagens (Fortran, C, C++, Java). Possui sofisticadas estruturas de dados, incluindo listas, polinômios e sistemas lineares, e um interpretador de linguagem de programação de alto nível, podendo o usuário definir novos tipos de informações e operações sobre essas estruturas.

A primeira versão do AKFIT realizava apenas um ajuste linear para a determinação de α e k_0 . Criou-se um ajuste não-linear baseado no método de Gauss-Marquardt^[20], atualizando para sua segunda versão, AKFIT v2. A implementação do ajuste não-linear no código foi motivada em razão de analisar a capacidade do método em comparação com o método linear. Se verificado que o método não-linear produz os mesmos resultados que o linear, será possível desenvolver ajustes mais complexos, incluindo mais parâmetros que envolvem o método k_0 , como o parâmetro Q_0 e f . Por fim, AKFIT v2 ainda possuía algumas limitações. O ajuste criado apenas trabalhava com um único comparador Au, ou seja, só era possível realizar ajustes para uma única irradiação. O código se tornava inútil quando havia análises com elementos de diferentes irradiações, com diferentes comparadores de Au. Por este motivo, foi implementado um recurso que possibilitou a utilização de vários comparadores que, conseqüentemente, tornou-se possível realizar análises com várias irradiações distintas. Em razão desta implementação, AKFIT foi atualizado para a versão 2.1.

3.3.3 Análises dos espectros e dados experimentais

A aquisição dos espectros foi realizada por meio de uma placa de aquisição de dados de marca Ortec Modelo ACE, de 8192 canais. Foi também utilizado o programa MAESTRO, um analisador multicanal (MCA) compatível com sistemas de espectroscopia gama e alfa e com uma ampla variedade de

aplicações científicas no meio industrial, ensino e afins. MAESTRO é uma excelente escolha para aplicações de espectroscopia básica e acompanha, por padrão, na maioria dos analisadores multicanais da Ortec. Com MAESTRO pode-se observar uma irradiação em tempo real, verificar os picos e as propriedades do *hardware*. O registro do espectro da irradiação realizada é salvo no formato próprio da Ortec, CHN.

Os espectros analisados no presente trabalho são os mesmos obtidos anteriormente^[18] para possibilitar uma comparação direta entre os resultados de k_0 , α e Q_0 obtidos com método desenvolvido no presente trabalho com aqueles obtidos com o método convencional.

O cálculo das eficiências de detecção para cada linha de emissão gama das fontes padrões medidas foi efetuado por meio do programa ALPINO^[85]. Este programa, elaborado em linguagem FORTRAN, calcula a atividade ou eficiência de detecção (segundo opções de entrada) para cada energia gama da fonte medida, diretamente a partir do espectro obtido. Além disso, este programa permite calcular (ou incluir nos cálculos) a atividade e a intensidade do pico de absorção total de energia N_p (com ou sem a subtração da radiação de fundo), determinar os limites dos canais do pico de interesse e correção do tempo morto.

O programa ALPINO utiliza um método de integração numérica para a área sob o pico de absorção total. O centroide é identificado por meio da calibração de canais em função da energia. As posições dos canais (K_i) que definem as regiões de contagem de fundo e de pico são dadas por:

- K_p – Canal do centroide;
- K_1 – Início da contagem de fundo;
- K_2 – Início do pico de absorção total;
- K_3 – Fim do pico de absorção total;
- K_4 – Fim da contagem de fundo.

A FIG. 4 apresenta um exemplo do método de integração numérica utilizado:

FIGURA 4 - Exemplo dos parâmetros utilizados no método de integração numérica da área sob o pico de absorção total^[18].

Adquiridos os dados da análise dos espectros desejado pelo MAESTRO, e com as informações de cada fonte padronizada de interesse e suas transições gama, criou-se um arquivo de dados de entrada para o ALPINO. O arquivo contém informações como tempo de medida, datas e horas iniciais (de referência) e de medida da fonte radioativa, canais de cada pico e largura meia altura, FWHM (caso necessário), meia vida, abundância absoluta do raio-gama considerado, massa, entre outros dados de processamento.

Utilizou-se o programa criado no CRPq, LOGFIT, para o cálculo da curva de eficiência após a execução do ALPINO para todas as fontes padronizadas de interesse. O LOGFIT executa um ajuste em escala log-log com as eficiências das fontes padrões obtidas pelo ALPINO e gera um arquivo de saída com os valores das eficiências para as energias gamas de interesse, que seriam, neste caso, as amostras. Este programa de ajuste aplica a metodologia de Matriz de Covariâncias. O ALPINO é mais uma vez executado, dessa vez para as amostras e não para as fontes padrões, com suas eficiências obtidas pelo LOGFIT incluídas no arquivo de dados.

É importante destacar que os valores das auto-blindagens para nêutrons térmicos e epitérmicos G_{th} e G_e , fator de cádmio F_{Cd} e a razão do fluxo de nêutrons térmicos e epitérmicos f , foram calculados por outros meios, conforme descrito na referência^[18]. Com todos os resultados adquiridos para cada

amostra e seu comparador foi possível criar os arquivos de dados de entrada para os códigos COVAR v4.1 e AKFIT v2.1. Ambos os códigos, apesar de utilizarem um arquivo de dados de entrada semelhante, não são compatíveis de execução um com o outro. Enquanto COVAR v4.1 calcula a taxa de contagem específica dos elementos com e sem cádmio $A_{sp,i}$ e $(A_{sp})_{Cd,i}$, e necessita do valor de α como dado de entrada, o AKFIT v2.1 utiliza as taxas de contagens específicas previamente calculadas e determina seu próprio valor de α .

3.4 Caracterização das amostras

Duas irradiações em diferentes períodos foram utilizadas no presente trabalho^[18]. A primeira irradiação foi realizada no ano de 2008, com os alvos ^{197}Au (liga de Al 0,10%), ^{94}Zr , ^{64}Zn , ^{45}Sc e ^{139}La (liga de Al 0,665%). A segunda irradiação foi realizada no ano de 2010, com os alvos ^{197}Au (liga de Al 0,13%), ^{94}Zr , ^{96}Zr , ^{64}Zn , ^{68}Zn , ^{45}Sc e ^{139}La , ^{59}Co (liga de Al 0,475%). As reações geradas para cada caso foram: $^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr}$, $^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$, $^{68}\text{Zn}(n,\gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$, $^{139}\text{La}(n,\gamma)^{140}\text{La}$, $^{45}\text{Sc}(n,\gamma)^{46}\text{Sc}$ e $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$. Os dados utilizados dos produtos das reações do ano de 2008 estão apresentados na TAB. 1; os valores em parênteses representam as incertezas nas casas decimais:

TABELA 1 – Dados característicos sobre probabilidade de emissão gama, meia-vida, espessura e concentração da liga de cada produto resultante das irradiações no ano de 2008^[86, 11].

Características das reações de 2008				
Produto- E_γ (keV)	I_γ (%)	$T_{1/2}$ (D)	x (fio - mm)	Liga (%)
^{198}Au				
411,8	95,62(6)	2,69 (3)	1	0,1
^{95}Zr				
724,2	44,27(13)	64,03(6)	0,096	100
756,7	54,38(22)			
^{65}Zn				
1115,5	50,22(11)	244,01(9)	0,9	100
^{46}Sc				
889,3	99,9837(3)	83,79(16)	0,13	100
1120,5	99,97(2)			
^{140}La				
328,7	20,8(3)	1,68 (21)	1	0,665
487,0	46,1(5)			
815,8	23,72(20)			
1596,2	95,40(5)			

Para os produtos das reações das irradiações no ano de 2010, os dados estão apresentados na TAB. 2; os valores em parênteses representam as incertezas nas casas decimais:

TABELA 2 - Dados característicos sobre probabilidade de emissão gama, meia-vida, espessura e concentração da liga das reações dos dados de 2010^[86, 11].

Características das reações de 2010				
Produto- E_γ (keV)	I_γ (%)	$T_{1/2}$ (D)	x (fio - mm)	Liga (%)
¹⁹⁸ Au				
411,8	95,62(6)	2,69(3)	0,51	0,13
⁹⁵ Zr				
724,2	44,27(13)	64,03(6)	0,25	100
756,7	54,38(22)			
⁶⁵ Zn				
1115,5	50,22(11)	244,01(9)	0,85	100
^{69m} Zn				
438,6	94,77(20)	0,57(2)	0,85	100
⁴⁶ Sc				
889,3	99,9837(3)	83,79(16)	0,13	100
1120,5	99,97(2)			
¹⁴⁰ La				
328,7	20,8(3)	1,68(21)	0,64	0,665
487,0	46,1(5)			
815,8	23,72(20)			
1596,2	95,40(5)			
⁶⁰ Co				
1173,2	99,85(3)	1923,95(22)	0,76	0,475
1332,5	99,9826(6)			

A TAB. 3 apresenta as massas (w) das reações com e sem cádmio irradiados nos anos de 2008 e 2010; os valores em parênteses representam as incertezas nas casas decimais:

TABELA 3 - Valores das massas e suas incertezas para cada reação nos anos de 2008 e 2010.

Produto (2008)	(w) _{Cd} (g) ^[18]	w (g) ^[18]	Produto (2010)	(w) _{Cd} (g) ^[18]	w (g) ^[18]
¹⁹⁸ Au	0,00960(20)	0,00800(20)	¹⁹⁸ Au	0,00610(10)	0,00600(10)
⁹⁵ Zr	0,00560(10)	0,00510(10)	⁹⁵ Zr	0,00470(9)	0,00410(8)
⁶⁵ Zn	0,2492(4)	0,2360(4)	⁶⁵ Zn	0,2492(5)	0,2368(5)
⁴⁶ Sc	0,01240(17)	0,00140(14)	^{69m} Zn	0,2492(5)	0,2368(5)
¹⁴⁰ La	0,00930(3)	0,00840(3)	⁴⁶ Sc	0,01290(20)	0,00090(3)
			¹⁴⁰ La	0,00540(10)	0,00530(10)
			⁶⁰ Co	0,0159(30)	0,0150(30)

3.4.1 Caracterização das fontes padronizadas e curva de eficiência

As fontes padronizadas utilizadas para a geração da curva de eficiência do detector foram ^{59}Co , ^{132}Ba , ^{136}Cs e ^{151}Eu , fornecidas pela Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA). As características do produto das reações das fontes, como meia-vida, transição gama considerada e sua probabilidade, atividade e a correção do efeito de soma em cascata estão representadas na TAB. 4:

TABELA 4 - Características das reações das fontes padronizadas utilizadas para o cálculo da curva de eficiência^[86,87].

Características das reações das fontes padrões			
Produto- E_γ (keV)	I_γ (%)	$T_{1/2}$ (D)	Atividade (kBq)
^{133}Ba			
276,4	7,13(6)	3862(15)	376,0(45)
302,85	18,31(11)		
356,02	62,05(6)		
^{152}Eu			
244,70	7,55(4)	4933(11)	404,0(65)
344,28	26,59(12)		
443,96	2,80(2)		
778,90	12,97(6)		
867,39	4,243(23)		
964,05	14,50(6)		
1112,10	13,41(6)		
1408,01	20,85(8)		
^{60}Co			
1173,20	99,85(3)	1923,95(22)	379,2(19)
1332,50	99,9826(6)		
^{137}Cs			
661,66	84,99(20)	1102(6)	406,5(4)

Em razão deste presente trabalho apresentar irradiações já efetuadas e analisadas em seus respectivos anos (2008 e 2010), optou-se aqui em apenas reproduzir os mesmos procedimentos realizados anteriormente, a fim de, em princípio, compreender todos os processos essenciais, facilitando o desenvolvimento dos códigos aqui propostos.

Executou-se o programa ALPINO, configurado para calcular as eficiências de cada fonte padrão. Incluiu-se, ao término das execuções, os valores das eficiências no programa LOGFIT, com objetivo de determinar a curva de eficiência do detector. Com o arquivo de saída obtido pelo LOGFIT adicionou-se

as eficiências de cada transição gama das amostras obtida pela curva. O programa ALPINO foi configurado não mais para calcular as eficiências, mas para ler os valores das eficiências incluídas nos arquivos de entrada de cada amostra, além de calcular suas atividades e as áreas dos picos de absorção total de cada transição gama considerada.

Os valores de F_{Cd} , G_{Th} e G_e foram adquiridos por meio de resultados já calculados pelo LMN antes do desenvolvimento do presente trabalho. Para os valores das energias de ressonância efetiva $\bar{E}_{r,i}$ de cada amostra, foi obtida pelo banco de dados eletrônico *Compilation of k_0 and Related Data for NAA*, da *International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC)*, em sua versão 4, apresentado em 2004^[88]. Para COVAR 4.1 ainda necessitou-se obter previamente os valores de Q_0 , f e α . Os valores de Q_0 também foram adquiridos pelo banco de dados eletrônico da IUPAC, enquanto f e α foram obtidos pelas referências de Dias *et al*^[9, 17]. Já para AKFIT v2.1, necessitou-se conhecer os valores das taxas de contagens específicas com e sem cádmio, $A_{Sp,i}$ e $(A_{Sp})_{Cd,i}$. Estes valores eram possíveis de serem encontrados por meio de um cálculo externo e, posteriormente, incluídos no arquivo de entrada ou por meio dos resultados obtidos pelo arquivo de saída do COVAR v4.1. Para que seja feita uma análise independente dos códigos, decidiu-se calcular $A_{Sp,i}$ e $(A_{Sp})_{Cd,i}$ externamente, ou seja, de modo manual. Os parâmetros explicitados e seus valores estão apresentados na TAB. 5. Os valores em parênteses representam as incertezas nas casas decimais.

TABELA 5 - Valores de fator de cádmio, correção de auto-blindagem para nêutrons térmicos e epitérmicos, energia de ressonância efetiva, razão entre fluxo térmico e epitérmico, alfa e Q_0 , para as reações de 2008 e 2010^[18].

Parâmetros das reações (2008 e 2010)							
Produto	F_{Cd}	G_{th}	G_e	$\bar{E}_{r,i}$	f	α	Q_0
¹⁹⁸ Au	0,9989(4)	1,0000	0,9808(4)	5,65(2)	49,7(19)	-0,001(31)	15,71(29)
⁹⁵ Zr	0,9968(7)	1,0000	0,9990(4)	6,26(25)×10 ³	49,7(19)	-0,001(31)	5,31(17)
⁶⁵ Zn	0,9928(19)	0,9924	0,9605(87)	2,56(26)×10 ³	49,7(19)	-0,001(31)	1,91(9)
^{69m} Zn	1,0000(50)	0,9993	0,9564(91)	590(59)	49,7(19)	-0,001(31)	2.56(8)
¹⁴⁰ La	1,0160(24)	1,0000	0,9981(4)	76(3)	49,7(19)	-0,001(31)	1,24(7)
⁶⁰ Co	0,9909(20)	1,0000	0,9971(6)	136(7)	49,7(19)	-0,001(31)	1,99(6)
⁴⁶ Sc	1,0260(50)	1,0000	0,9858(29)	5,13(26)×10 ³	49,7(19)	-0,001(31)	0,430(26)

As TAB. 6 e 7 apresentam os valores calculados no presente trabalho para as taxas de contagens específicas para amostras com e sem cádmio de cada transição gama nas irradiações realizadas nos anos de 2008 e 2010, respectivamente.

TABELA 6 - Valores das taxas de contagens específicas com e sem Cd para as reações de 2008.

Taxas de contagens específicas para as reações de 2008			
Produto- E_γ (keV)	$A_{sp}(s^{-1}g^{-1})$	$(A_{sp})_{cd}(s^{-1}g^{-1})$	
¹⁹⁸ Au			
411,8	6,78(5)×10 ⁹	1,690(20)×10 ⁹	
⁹⁵ Zr			
724,2	2,960(20)×10 ⁵	3,51(3)×10 ⁴	
756,7	3,550(20)×10 ⁵	3,94(3)×10 ⁴	
⁶⁵ Zn			
1115,5	1,121(10)×10 ⁷	4,98(3)×10 ⁵	
⁴⁶ Sc			
889,3	2,85(4)×10 ⁹	3,040(20)×10 ⁷	
1120,5	2,32(3)×10 ⁹	2,471(15)×10 ⁷	
¹⁴⁰ La			
328,7	1,874(10)×10 ⁸	5,48(4)×10 ⁶	
487,0	2,790(20)×10 ⁸	8,05(6)×10 ⁶	
815,8	8,74(4)×10 ⁷	2,780(20)×10 ⁶	
1596,2	1,890(12)×10 ⁸	5,54(4)×10 ⁶	

TABELA 7 - Valores das taxas de contagens específicas com e sem cádmio e razão de cádmio para as irradiações de 2010.

Taxas de contagens específicas para as reações de 2010		
Produto-E_γ (keV)	$A_{Sp}(s^{-1}g^{-1})$	$(A_{Sp})_{Cd}(s^{-1}g^{-1})$
¹⁹⁸ Au		
411,8	$1,0121(32) \times 10^{10}$	$2,399(6) \times 10^9$
⁹⁵ Zr		
724,2	$4,298(11) \times 10^5$	$3,890(3) \times 10^4$
756,7	$5,090(12) \times 10^5$	$4,667(4) \times 10^4$
⁶⁵ Zn		
1115,5	$1,632(4) \times 10^7$	$5,581(7) \times 10^5$
^{69m} Zn		
438,6	$2,97(4) \times 10^6$	$1,29(8) \times 10^5$
⁴⁶ Sc		
889,3	$4,458(15) \times 10^9$	$4,514(22) \times 10^7$
1120,5	$3,599(12) \times 10^9$	$3,682(18) \times 10^7$
¹⁴⁰ La		
328,7	$2,886(6) \times 10^8$	$6,92(3) \times 10^6$
487,0	$4,242(8) \times 10^8$	$1,122(3) \times 10^7$
815,8	$1,324(4) \times 10^8$	$3,209(20) \times 10^6$
1596,2	$2,866(6) \times 10^8$	$6,914(24) \times 10^6$
⁶⁰ Co		
1173,2	$3,95(4) \times 10^9$	$1,445(15) \times 10^8$
1332,5	$3,40(3) \times 10^9$	$1,280(13) \times 10^8$

4 RESULTADOS E DISCUSSÃO

4.1 Curva de eficiência do detector HPGe

A TAB. 8 apresenta os parâmetros obtidos no presente trabalho para o ajuste da curva de eficiência do Detector HPGe por meio do programa LOGFIT:

TABELA 8 - Dados do ajuste da curva de eficiência do detector HPGe realizado pelo programa LOGFIT.

Dados do ajuste LOGFIT					
Parâmetro	Valor	Matriz de covariância			
a_0	-5,984024	10,7091			
a_1	1,901061	-5,0709	2,4032		
a_2	-0,516355	0,7967	-0,3779	0,0595	
a_3	0,030199	-0,0415	0,0197	-0,0031	0,0002
χ^2_{red}	1,2				

Observa-se que o ajuste é um polinômio de grau 3 e o chi-quadrado reduzido foi de 1,2, indicando um ajuste dentro do aceitável. A curva de eficiência pode ser observada pela FIG. 5. Para ambas as irradiações, os valores das eficiências foram os mesmos, portanto, a curva da FIG. 5 é aplicável às irradiações de 2008 e 2010 e todas as eficiências calculadas estão apresentadas na TAB. 9.

FIGURA 5 - Curva de eficiência, em escala log-log, para o espectrômetro de HPGe em função da energia gama, obtida pelas fontes padrões fornecidas pela IUPAC.

Na TAB. 9 são apresentados os valores das eficiências das amostras de interesse, adquiridos pela curva obtida; os valores em parênteses representam as incertezas nas casas decimais:

TABELA 9 - Valores das eficiências das reações.

Eficiências (2008 e 2010)		
Produto	E_γ (keV)	Eficiência
^{198}Au	411,8	$1,271(7) \times 10^{-3}$
^{95}Zr	724,2	$7,21(5) \times 10^{-4}$
	756,7	$6,93(5) \times 10^{-4}$
^{65}Zn	1115,5	$4,900(21) \times 10^{-4}$
$^{69\text{m}}\text{Zn}$	438,6	$1,188(7) \times 10^{-3}$
^{46}Sc	889,3	$6,01(4) \times 10^{-4}$
	1120,5	$4,897(21) \times 10^{-4}$
^{140}La	328,7	$1,610(9) \times 10^{-3}$
	487,0	$1,064(6) \times 10^{-3}$
	815,8	$6,48(4) \times 10^{-4}$
	1596,2	$3,34(4) \times 10^{-4}$
^{60}Co	1173,2	$4,671(19) \times 10^{-4}$
	1332,5	$4,109(23) \times 10^{-4}$

4.2 Resultados do código COVAR v4.1

O exemplo de um resultado adquirido é apresentado na FIG. 6.

N	14		
ASP1	285037,400000	ASP2	28053,740000
ASP3	6,780285E+09	ASP4	1,688760E+09
FCDI(N)	9,968000E-01	FCDC(N)	9,999000E-01
Gthc(N)	9,999700E-01	Gthi(N)	9,999500E-01
Efc(N)	1,270000E-03	Efi(N)	7,210000E-04
K0(N)	8,887852E-05	Q0I(N)	5,652429
K02(N)	8,887852E-05		
K03(N)	8,932607E-05	FII(N)	49,700000
Gec(N)	9,808000E-01	Q0II(N)	5,310000
Q0alfac	15,737090	Gei(N)	9,090200E-01
Q0Ia(N)	5,607568	Q02(N)	5,603192
RCDI	10,160400	RCDC	4,014950
FC	46,530760	FI	49.672301

N	15		
ASP1	341021,400000	ASP2	33401,800000
ASP3	6,780285E+09	ASP4	1,688760E+09
FCDI(N)	9,968000E-01	FCDC(N)	9,999000E-01
Gthc(N)	9,999700E-01	Gthi(N)	9,999500E-01
Efc(N)	1,270000E-03	Efi(N)	6,930000E-04
K0(N)	1,106900E-04	Q0I(N)	5,622156
K02(N)	1,106900E-04		
K03(N)	1,111886E-04	FII(N)	49,700000
Gec(N)	9,808000E-01	Q0II(N)	5,310000
Q0alfac	15,737090	Gei(N)	9,090200E-01
Q0Ia(N)	5,577559	Q02(N)	5,573184
RCDI	10,209670	RCDC	4,014950
FC	46,530760	FI	49.672301

FIGURA 6 - Exemplo do resultado obtido na primeira execução do COVAR v4.1. Os números de N (14 e 15) referem-se aos índices atribuídos às transições gama de 724,2 keV e 756,7 keV, da reação $^{94}\text{Zr}(n, \gamma)^{95}\text{Zr}$.

As informações apresentadas na FIG. 6 referem-se às transições gama de 724,2 keV e 756,7 keV da reação $^{94}\text{Zr}(n, \gamma)^{95}\text{Zr}$. Os valores indicados em K0(N) são os parâmetros k_0 que foram obtidos pela EQ. (3.1), K02(N) e K03(N) foram obtidos pela EQ. (3.3), enquanto que, para o primeiro, os parâmetros f e $Q_{0,i}$ são calculados pelo próprio código e, para o segundo, os valores estão como dados de entrada. O valor calculado para f foi de 49,67(4), como indicado em FI com seu valor geral, estando de acordo com os dados adquiridos das irradiações

utilizadas neste trabalho e também com o valor de entrada, 49,7, indicado no campo FII.

Os valores de k_0 para as irradiações realizadas nos anos de 2008 e 2010 estão apresentadas nas TAB. 10 e 11.

TABELA 10 - Resultados de k_0 gerados por meio do COVAR v4.1 utilizando as EQ. (3.1) (Anterior) e a EQ. (3.3) incluída (Presente Trabalho), para os dados de 2008.

Valores de k_0 para os dados de 2008				
Produto	E_γ (keV)	k_0 (Anterior)	k_0 (Presente Trabalho)	k_0 (Literatura) ^[88]
⁹⁵ Zr	724,2	$8,89(13) \times 10^{-05}$	$8,93(14) \times 10^{-05}$	$8,99(10) \times 10^{-5}$
	756,7	$1,110(20) \times 10^{-04}$	$1,110(20) \times 10^{-04}$	$1,110(20) \times 10^{-4}$
⁶⁵ Zn	1115,5	$5,68(10) \times 10^{-03}$	$5,66(11) \times 10^{-03}$	$5,720(20) \times 10^{-3}$
¹⁴⁰ La	328,7	$2,827(37) \times 10^{-02}$	$2,828(44) \times 10^{-02}$	$2,870(3) \times 10^{-2}$
	487,0	$6,38(8) \times 10^{-02}$	$6,39(10) \times 10^{-02}$	$6,37(6) \times 10^{-2}$
	815,8	$3,28(4) \times 10^{-02}$	$3,27(5) \times 10^{-02}$	$3,320(20) \times 10^{-2}$
	1596,2	$1,37(4) \times 10^{-01}$	$1,38(7) \times 10^{-01}$	$1,340(10) \times 10^{-1}$
⁴⁶ Sc	889,0	1,197(23)	1,198(25)	1,220(5)
	1120,0	1,192(22)	1,193(25)	1,220(13)

TABELA 11 - Resultados de k_0 gerados por meio do COVAR v4.1 utilizando as EQ. (3.1) (Anterior) e a EQ. (3.3) incluída (Presente Trabalho), para os dados de 2010.

Valores de k_0 para os dados de 2010				
Produto	E_γ (keV)	k_0 (Anterior)	k_0 (Presente Trabalho)	k_0 (Literatura) ^[88]
⁹⁵ Zr	724,2	$8,85(9) \times 10^{-05}$	$8,88(12) \times 10^{-05}$	$8,99(10) \times 10^{-5}$
	756,7	$1,100(20) \times 10^{-04}$	$1,100(10) \times 10^{-04}$	$1,110(20) \times 10^{-4}$
⁶⁵ Zn	1115,5	$5,59(8) \times 10^{-03}$	$5,60(9) \times 10^{-03}$	$5,720(20) \times 10^{-3}$
^{69m} Zn	438,6	$3,93(10) \times 10^{-4}$	$3,94(10) \times 10^{-4}$	$3,980(20) \times 10^{-4}$
⁶⁰ Co	1173,2	1,328(18)	1,330(21)	1,320(5)
	1332,5	1,315(19)	1,322(22)	1,320(7)
¹⁴⁰ La	328,7	$2,88(3) \times 10^{-02}$	$2,87(4) \times 10^{-02}$	$2,87(3) \times 10^{-2}$
	487,0	$6,41(6) \times 10^{-02}$	$6,40(9) \times 10^{-02}$	$6,37(6) \times 10^{-2}$
	815,8	$3,35(4) \times 10^{-02}$	$3,35(5) \times 10^{-02}$	$3,320(20) \times 10^{-2}$
	1596,2	$1,340(20) \times 10^{-01}$	$1,340(20) \times 10^{-01}$	$1,340(10) \times 10^{-1}$
⁴⁶ Sc	889,0	1,217(12)	1,218(17)	1,220(5)
	1120,0	1,223(11)	1,224(17)	1,220(13)

A TAB. 12 apresenta os resultados de Q_0 calculados pelo COVAR v4.1 para as irradiações de 2008 e 2010:

TABELA 12 - Resultados de Q_0 gerados por meio do COVAR v4.1, para os dados de 2008 e 2010.

Valores de Q_0 para os dados de 2008 e 2010				
Ano	Produto	E_γ (keV)	Q_0	Q_0 (Literatura) ^[88]
2008	⁹⁵ Zr	724,2	5,63(15)	5,31(17)
		756,7		
	⁶⁵ Zn	1115,5	1,78(5)	1,91(9)
		328,7		
	¹⁴⁰ La	487,0	1,26(3)	1,24(7)
		815,8		
		1596,2		
	⁴⁶ Sc	889,0	0,485(14)	0,445(26)
		1120,0		
2010	⁹⁵ Zr	724,2	5,56(13)	5,31(17)
		756,7		
	⁶⁵ Zn	1115,5	1,97(4)	1,91(9)
		438,6		
	^{69m} Zn	438,6	2,67(18)	2,56(4)
		1173,2		
	⁶⁰ Co	1332,5	2,17(6)	1,99(6)
		328,7		
		487,0		
	¹⁴⁰ La	815,8	1,22(3)	1,24(7)
		1596,2		
		889,0		
	⁴⁶ Sc	889,0	0,497(17)	0,445(26)
		1120,0		

Não foram adicionados os valores de K02, que estão indicados na FIG. 6 pois sua criação possui a função de teste para verificar se o cálculo utilizado para o método anterior está correto, em razão de K02 ser uma extensão do mesmo. Por este motivo não foram criadas as derivadas parciais deste campo (K02) para calcular suas incertezas.

Pode-se observar pelas TAB. 10, 11 e 12 que os valores de k_0 calculados com o método anterior (indicado no campo K0 da FIG. 6) são ligeiramente maiores que os valores de k_0 do presente trabalho (indicado no campo K03) quando o parâmetro Q_0 , calculado pelo código COVAR v4.1, é menor que o Q_0 da literatura utilizado como referência (usado também como dado de entrada para o cálculo de K03), e menores quando o valor do Q_0 calculado é superior, e isso está de acordo com as matrizes de correlação entre k_0 e Q_0 , apresentadas no APÊNDICE C e D deste trabalho. O motivo das matrizes

estarem no APÊNDICE é por contemplarem todos os alvos utilizados, ou seja, 21 dados (excluindo Au), sendo assim uma extensa matriz quadrada com 42 linhas. Essa inversão de proporcionalidade entre os fatores k_0 e Q_0 pode ser explicada em razão do componente comparador que, para a determinação do k_0 , aparece no denominador da fração, enquanto na determinação do Q_0 aparece no numerador. Desta forma o aumento do comparador tende a diminuir o valor do k_0 , enquanto aumenta o valor do Q_0 . É compreensível, portanto, com base nesta afirmação, que o aumento do valor de Q_0 tende a diminuir o valor de k_0 e vice-versa.

A introdução do parâmetro Q_0 e f como dados de entrada adicionais podem ter contribuído para a uma flutuação nos resultados entre os resultados com o método anterior e o novo, principalmente Q_0 , visto que os valores calculados e os inseridos como dados de entrada possuem diferenças que podem causar uma ligeira variação no valor final. Os resultados apresentados nas TAB. 10 e 11 indicam que a inclusão da nova EQ. (3.3) acarreta um aumento na incerteza total no valor de k_0 , e isso se explica considerando a inclusão das incertezas dos novos parâmetros adicionados.

Os valores de k_0 com o método proposto no presente trabalho se comportaram próximos do valor de k_0 com o método anterior, podendo ser considerados estatisticamente iguais. As matrizes de correlação apresentadas nos APÊNDICES C e D se mostraram coerentes com o esperado. As correlações entre k_0 , tanto para o método novo quanto para o anterior, foram maiores para as correlações de isótopos iguais e menores para correlações de isótopos diferentes. Isso ocorre em virtude dos parâmetros correlacionados. Quando os isótopos são iguais, mais parâmetros associados são idênticos, o que favorece o aumento da correlação, por outro lado, para o caso dos isótopos serem diferentes, há menos parâmetros idênticos, ou seja, os isótopos podem possuir uma certa independência entre si, havendo, assim, uma correlação menor. No APÊNDICE D, a correlação entre k_0 e Q_0 é baixa ou nula, em razão de Q_0 ser um dado de entrada e não um parâmetro calculado, o que também explica as altas correlações entre Q_0 . Analisando o caso entre os parâmetros k_0 do método novo, as correlações possuíram uma intensidade moderada e positiva para elementos iguais, e fraca para os elementos diferentes, dentro do que se era esperado.

Com base nos resultados, não houve qualquer erro no código da inclusão da EQ. (3.3) e, apesar do aumento das incertezas, esta equação se comportou de maneira satisfatória, o que a torna como uma nova alternativa para comparar os resultados de k_0 pelo COVAR v4.1.

4.3 Resultados do código AKFIT v2.1

Na TAB. 13 são apresentados os resultados obtidos pelo código AKFIT v2.1 para os dados das irradiações dos anos de 2008:

TABELA 13 - Resultados dos dados das irradiações do ano de 2008 analisados separadamente.

Dados 2008 - Valores dos ajustes linear e não-linear						
			a	α	χ^2	χ^2_{red}
Aju. Linear e Não-Linear			25,14(8)	-0,0016(89)	7,48	1,07
Ano	Produto	Energia	k_0 (Linear e Não-Linear)		k_0 (Literatura) ^[88]	
2008	¹⁹⁸ Au	411	1		1	
	⁹⁵ Zr	724,2	8,94(14)×10 ⁻⁰⁵		8,99(10)×10 ⁻⁵	
		756,7	1,110(20)×10 ⁻⁰⁴		1,110(20)×10 ⁻⁴	
	⁶⁵ Zn	1115,5	5,63(9)×10 ⁻⁰³		5,720(20)×10 ⁻³	
		328,7	2,83(4)×10 ⁻⁰²		2,87(3)×10 ⁻²	
	¹⁴⁰ La	487	6,39(9)×10 ⁻⁰²		6,37(6)×10 ⁻²	
		815,8	3,28(5)×10 ⁻⁰²		3,320(20)×10 ⁻²	
		1596,2	1,360(20)×10 ⁻⁰¹		1,340(10)×10 ⁻¹	
	⁴⁶ Sc	889	1,199(24)		1,220(5)	
		1120	1,195(23)		1,220(13)	

A execução do AKFIT v2.1 obteve um valor para o parâmetro α de $0,0016 \pm 0,0089$, valor este compatível com zero e de acordo com as referências Dias *et. Al.*^[9]. Os valores de k_0 para os dois métodos de ajuste foram idênticos, o que era esperado, visto que o ajuste não-linear é um caso geral do ajuste linear. Isso também indicou que o algoritmo foi executado corretamente, com ambos os métodos chegando aos mesmos resultados. O chi-quadrado com valor próximo de 1 indica que o modelo de ajuste foi realizado satisfatoriamente.

A TAB. 14 a seguir apresenta os resultados de k_0 para os dados irradiados no ano de 2010:

TABELA 14 - Resultados dos dados das irradiações do ano de 2010 analisados separadamente.

Dados 2010 - Valores dos ajustes linear e não-linear						
			a	α	χ^2	χ^2_{red}
Aju. Linear e Não-Linear			25,54(6)	0,0035(67)	11,41	1,04
Ano	Produto	Energia	k_0 (Linear e Não-Linear)		k_0 (Literatura) ^[88]	
2010	¹⁹⁸ Au	411	1		1	
	⁹⁵ Zr	724,2	8,99(9)×10 ⁻⁰⁵		8,99(10)×10 ⁻⁵	
		756,7	1,120(10)×10 ⁻⁰⁴		1,110(20)×10 ⁻⁴	
	⁶⁵ Zn	1115,5	5,59(5)×10 ⁻⁰³		5,720(20)×10 ⁻³	
	^{69m} Zn	438,6	3,91(9)×10 ⁻⁰⁴		3,980(20)×10 ⁻⁴	
		328,7	2,88(3)×10 ⁻⁰²		2,87(3)×10 ⁻²	
	¹⁴⁰ La	487	6,42(6)×10 ⁻⁰²		6,37(6)×10 ⁻²	
		815,8	3,34(3)×10 ⁻⁰²		3,320(20)×10 ⁻²	
		1596,2	1,340(20)×10 ⁻⁰¹		1,340(10)×10 ⁻¹	
	⁶⁰ Co	1173,2	1,334(16)		1,320(5)	
		1332,5	1,326(18)		1,320(7)	
	⁴⁶ Sc	889	1,217(13)		1,220(5)	
		1120	1,223(12)		1,220(13)	

O modelo, para este caso, também se mostrou bem ajustado, como indicado pelo chi-quadrado reduzido. O valor de α foi de $0,0035 \pm 0,0067$. As diferenças entre os valores de k_0 ajustado e a literatura foram baixas. As TAB. 15 e 16 apresentam os resultados para os dados de 2008 e 2010 ajustados simultaneamente.

TABELA 15 - Comparação dos valores de a , α , χ^2 e $\chi^2_{reduzido}$ entre os ajustes linear e não-linear obtidos pelo código AKFIT v2.1.

Valores dos ajustes linear e não-linear				
	a	α	χ^2	χ^2_{red}
Aju. Linear e Não-Linear	25,41(5)	0,007(8)	22,2	1,11

TABELA 16 - Comparação dos valores k_0 entre os ajustes linear e não-linear obtidos pelo código AKFIT v2.1.

Dados 2008 e 2010 - Valores de k_0 para os dados de 2008 e 2010				
Ano	Produto	Energia	k_0 (Linear e Não-Linear)	k_0 (Literatura) ^[88]
2008	¹⁹⁸ Au	411	1	1
	⁹⁵ Zr	724,2	$8,96(13) \times 10^{-05}$	$8,99(10) \times 10^{-5}$
		756,7	$1,120(20) \times 10^{-04}$	$1,110(20) \times 10^{-4}$
	⁶⁵ Zn	1115,5	$5,65(8) \times 10^{-03}$	$5,720(20) \times 10^{-3}$
		328,7	$2,84(5) \times 10^{-02}$	$2,87(3) \times 10^{-2}$
	¹⁴⁰ La	487	$6,32(10) \times 10^{-02}$	$6,37(6) \times 10^{-2}$
		815,8	$3,24(6) \times 10^{-02}$	$3,320(20) \times 10^{-2}$
		1596,2	$1,36(3) \times 10^{-01}$	$1,340(10) \times 10^{-1}$
	⁴⁶ Sc	889	1,186(24)	1,220(5)
		1120	1,185(23)	1,220(13)
2010	¹⁹⁸ Au	411	1	1
	⁹⁵ Zr	724,2	$8,89(9) \times 10^{-05}$	$8,99(10) \times 10^{-5}$
		756,7	$1,100(10) \times 10^{-04}$	$1,110(20) \times 10^{-4}$
	⁶⁵ Zn	1115,5	$5,58(5) \times 10^{-03}$	$5,720(20) \times 10^{-3}$
		438,6	$3,93(9) \times 10^{-04}$	$3,980(20) \times 10^{-4}$
	¹⁴⁰ La	328,7	$2,89(3) \times 10^{-02}$	$2,87(3) \times 10^{-2}$
		487	$6,42(6) \times 10^{-02}$	$6,37(6) \times 10^{-2}$
		815,8	$3,33(3) \times 10^{-02}$	$3,320(20) \times 10^{-2}$
		1596,2	$1,38(3) \times 10^{-01}$	$1,340(10) \times 10^{-1}$
		1173,2	1,344(16)	1,320(5)
	⁶⁰ Co	1332,5	1,320(17)	1,320(7)
		889	1,237(13)	1,220(5)
	⁴⁶ Sc	1120	1,225(12)	1,220(13)

O modelo ajustado possuiu um chi-quadrado reduzido dentro do limite aceitável, sugerindo um bom ajuste. O valor de α foi de $0,007 \pm 0,008$. Os valores de k_0 foram semelhantes aos resultados obtidos quando analisando os dados de 2008 e 2010 separadamente.

As flutuações nos resultados obtidos para este caso estão relacionadas com os pontos de cada alvo de cada período de irradiação. A curva do modelo ajustado irá compreender todos os pontos e, para isso, poderá ter inclinações que irá afastá-la ou aproximá-la do valor referencial para obter o melhor resultado, tentando minimizar a soma dos quadrados das diferenças entre os valores estimados e todos os dados observados. Estas flutuações também podem ser notadas pelos gráficos dos resíduos dos dados de 2008, apresentados nas FIG. 10 e 12.

As FIG. 7 e 8 apresentam a comparação dos valores de k_0 dos dados de 2008 e 2010 analisados de modo separado:

FIGURA 7 - Resultados de k_0 para os dados de 2008 analisado pelo AKFIT v2.1. Quanto mais próximo de 1, melhor é o resultado.

FIGURA 8 - Resultados de k_0 para os dados de 2010 analisado pelo AKFIT v2.1. Quanto mais próximo de 1, melhor é o resultado.

A FIG. 9 apresenta a comparação dos valores de k_0 dos dados de 2008 e 2010 analisados simultaneamente:

FIGURA 9 - Resultados de k_0 para os dados de 2008 e 2010 analisados simultaneamente pelo AKFIT v2.1. Quanto mais próximo de 1, melhor é o resultado.

Pode-se observar que os valores de k_0 apresentaram comportamentos semelhantes para as situações nos quais os dados foram ajustados individualmente e em conjunto. Pelas FIG. 8 e 9 também é possível observar que os alvos tenderam à uma reta, próxima da unidade, sem pontos que se afastam significativamente.

Os resíduos dos ajustes estão apresentados nas FIG. 10, 11 e 12. Foi utilizado índices na FIG. 12 para representar os todos os alvos utilizados e assim ter espaço suficiente para todas as legendas. A representação de cada índice está apresentada na TAB. 17.

FIGURA 10 - Resíduos normalizados do ajuste dos dados de 2008 analisados separadamente.

FIGURA 11 - Resíduos normalizados do ajuste dos dados de 2010 analisados separadamente.

FIGURA 12 – Resíduos normalizados do ajuste com ambos os dados de 2008 e 2010 analisados simultaneamente.

TABELA 17 - Representação de cada índice da FIG. 11, com os alvos e suas respectivas transições gama.

Representação dos índices											
Índice	Prod.	Energia (keV)	Índice	Prod.	Energia (keV)	Índice	Prod.	Energia (keV)	Índice	Prod.	Energia (keV)
1	⁹⁵ Zr	724,2	12	⁶⁵ Zn	1115,5	23	¹⁴⁰ La	328,7	34	^{69m} Zn	438,6
2	⁹⁵ Zr	756,7	13	¹⁴⁰ La	328,7	24	¹⁴⁰ La	487,0	35	¹⁴⁰ La	328,7
3	⁶⁵ Zn	1115,5	14	¹⁴⁰ La	487,0	25	¹⁴⁰ La	815,8	36	¹⁴⁰ La	487,0
4	¹⁴⁰ La	328,7	15	¹⁴⁰ La	815,8	26	¹⁴⁰ La	1596,5	37	¹⁴⁰ La	815,8
5	¹⁴⁰ La	487,0	16	¹⁴⁰ La	1596,5	27	⁶⁰ Co	1173,2	38	¹⁴⁰ La	1596,5
6	¹⁴⁰ La	815,8	17	⁴⁶ Sc	889,3	28	⁶⁰ Co	1132,5	39	⁶⁰ Co	1173,2
7	¹⁴⁰ La	1596,5	18	⁴⁶ Sc	1120,5	29	⁴⁶ Sc	889,3	40	⁶⁰ Co	1132,5
8	⁴⁶ Sc	889,3	19	⁹⁵ Zr	724,2	30	⁴⁶ Sc	1120,5	41	⁴⁶ Sc	889,3
9	⁴⁶ Sc	1120,5	20	⁹⁵ Zr	756,7	31	⁹⁵ Zr	724,2	42	⁴⁶ Sc	1120,5
10	⁹⁵ Zr	724,2	21	⁶⁵ Zn	1115,5	32	⁹⁵ Zr	756,7			
11	⁹⁵ Zr	756,7	22	^{69m} Zn	438,6	33	⁶⁵ Zn	1115,5			

Os resíduos das FIG. apresentadas mostraram que os ajustes realizados estiveram dentro do aceitável, com todos os desvios padrão de cada ponto entre o intervalo (-2,2), ou seja, não houve pontos mal ajustados que possam ser considerados como *outliers*, o que corroboram com as informações das TAB. 13, 14, 15 e 16.

As matrizes de correlação foram iguais entre os ajustes linear e não-linear, o que era esperado já que são os mesmos dados. Pode-se verificar esta afirmação ao analisar o valor de λ , parâmetro utilizado no método de ajuste não-linear. Por ser um valor pequeno e, considerando $R^{-1} = V_A$, sendo V_A a matriz de

covariância utilizado no método de ajuste linear e a correlação dada por $V_{A(i,j)}/(\sigma_i * \sigma_j)$, a matriz $R(\lambda)^{-1}$ se torna a própria matriz R^{-1} . Desse modo, os dois métodos de ajuste exibiram os mesmos resultados.

A matriz (APÊNDICE E) exibiu um comportamento de fraca correlação para todos os alvos. Um fator que influenciou em uma flutuação maior da correlação foi o comparador ^{198}Au , igual para todos os alvos nos seus respectivos períodos de irradiação. Pode-se observar uma correlação positiva ligeiramente maior para isótopos iguais, porém, não pode ser considerada uma correlação moderada ou forte, diferentemente apresentado pela matriz de correlação gerado pelo COVAR v4.1. Isso se explica pela ausência das correlações dos parâmetros associados às taxas de contagens específicas $A_{sp,i}$ e $(A_{sp})_{cd,i}$, como o fator de saturação S , da Intensidade média do pico total de energia, N_p , e massa w das amostras, o que proporcionou menos fatores que influenciassem no aumento da correlação. Para isótopos diferentes, as correlações obtiveram valores positivos e baixos. Em alguns casos, como as correlações entre ^{95}Zr , ^{65}Zn e ^{140}La para as irradiações do ano de 2010, apesar de possuírem um valor maior em relação as demais correlações, ainda é um valor que pode ser considerado como uma correlação fraca. As matrizes das correlações dos dados de 2008 e 2010 analisados separadamente podem ser observadas no APÊNDICE F.

A correlação entre os parâmetros a e α foi forte e negativa, o que é previsto considerando que para o cálculo de α , dada pela EQ. (3.4), a é o coeficiente linear e α o coeficiente angular, ou seja, no valor de a é onde a reta intercepta o eixo Y e, conseqüentemente, influencia diretamente no valor de α . De acordo com a equação, quando se eleva o valor de a , a inclinação da reta α tende a diminuir para que se mantenha o valor de Y. Quando diminui o valor de a , o valor de α tende a aumentar para que se mantenha o resultado.

A correlação entre k_0 e α foi fraca, indicando uma independência entre os parâmetros, o que é justificável em razão de α ser um parâmetro de ajuste para Q_0 , não exercendo, portanto, uma dependência sobre o fator k_0 . As correlações de k_0 entre as irradiações de 2008 e 2010 foram baixas em todos os casos. Dado o fato de serem irradiações independentes, a correlação está de acordo com o previsto.

Realizou-se também uma comparação entre os valores de k_0 adquiridos analisando separadamente os dados de 2008 e 2010 pelo código AKFIT v2.1 e os valores de k_0 do código COVAR v4.1 com o método novo (campo K03 da FIG. 6), conforme apresentado nas TAB. 18 e 19:

TABELA 18 - Comparação entre os valores de k_0 do código COVAR v4.1 com o método novo e AKFIT v2.1 para os dados de 2008 analisado separadamente.

Valores de k_0 para os dados de 2008					
Ano	Produto	Energia	k_0 (COVAR V4.1)	k_0 (AKFIT v2.1)	k_0 (Literatura) [88]
2008	^{95}Zr	724,2	$8,93(14) \times 10^{-05}$	$8,94(14) \times 10^{-05}$	$8,99(10) \times 10^{-5}$
		756,7	$1,11(2) \times 10^{-04}$	$1,11(2) \times 10^{-04}$	$1,11(2) \times 10^{-4}$
	^{65}Zn	1115,5	$5,66(11) \times 10^{-03}$	$5,63(9) \times 10^{-03}$	$5,72(2) \times 10^{-3}$
		328,7	$2,83(4) \times 10^{-02}$	$2,83(4) \times 10^{-02}$	$2,87(3) \times 10^{-2}$
	^{140}La	487	$6,39(10) \times 10^{-02}$	$6,39(9) \times 10^{-02}$	$6,37(6) \times 10^{-2}$
		815,8	$3,27(5) \times 10^{-02}$	$3,28(5) \times 10^{-02}$	$3,32(2) \times 10^{-2}$
		1596,2	$1,38(7) \times 10^{-01}$	$1,36(2) \times 10^{-01}$	$1,34(1) \times 10^{-1}$
	^{46}Sc	889	1,198(25)	1,199(24)	1,220(5)
		1120	1,193(25)	1,195(23)	1,220(13)

TABELA 19 - Comparação entre os valores de k_0 do código COVAR v4.1 com o método novo e AKFIT v2.1 para os dados de 2010 analisado separadamente.

Valores de k_0 para os dados de 2010					
Ano	Produto	Energia	k_0 (COVAR V4.1)	k_0 (AKFIT v2.1)	k_0 (Literatura) [88]
2010	^{95}Zr	724,2	$8,88(12) \times 10^{-05}$	$8,99(9) \times 10^{-05}$	$8,99(10) \times 10^{-5}$
		756,7	$1,10(1) \times 10^{-04}$	$1,12(1) \times 10^{-04}$	$1,11(2) \times 10^{-4}$
	^{65}Zn	1115,5	$5,60(9) \times 10^{-03}$	$5,59(5) \times 10^{-03}$	$5,72(2) \times 10^{-3}$
		438,6	$3,94(10) \times 10^{-04}$	$3,91(9) \times 10^{-04}$	$3,98(2) \times 10^{-4}$
	^{140}La	328,7	$2,87(4) \times 10^{-02}$	$2,88(3) \times 10^{-02}$	$2,87(3) \times 10^{-2}$
		487	$6,40(9) \times 10^{-02}$	$6,42(6) \times 10^{-02}$	$6,37(6) \times 10^{-2}$
		815,8	$3,35(5) \times 10^{-02}$	$3,34(3) \times 10^{-02}$	$3,32(2) \times 10^{-2}$
		1596,2	$1,34(2) \times 10^{-01}$	$1,34(2) \times 10^{-01}$	$1,34(1) \times 10^{-1}$
	^{60}Co	1173,2	1,330(21)	1,334(16)	1,320(5)
		1332,5	1,322(22)	1,326(18)	1,320(7)
	^{46}Sc	889	1,218(17)	1,217(13)	1,220(5)
		1120	1,224(17)	1,223(12)	1,220(13)

Na TAB. 20 é apresentado a comparação dos k_0 com o método novo obtido pelo COVAR v4.1 com o obtido pelo AKFIT v2.1 analisando o ajuste simultâneo dos dados de 2008 e 2010:

TABELA 20 - Comparação entre os valores de k_0 do código AKFIT v2.1 com ajuste simultâneo dos dados e do código COVAR v4.1 com o método novo.

Valores de k_0 para os dados de 2008 e 2010					
Ano	Produto	Energia	k_0 (COVAR V4.1)	k_0 (AKFIT v2.1)	k_0 (Literatura) [88]
2008	⁹⁵ Zr	724,2	$8,93(14) \times 10^{-05}$	$8,96(13) \times 10^{-05}$	$8,99(10) \times 10^{-5}$
		756,7	$1,11(2) \times 10^{-04}$	$1,12(2) \times 10^{-04}$	$1,11(2) \times 10^{-4}$
	⁶⁵ Zn	1115,5	$5,66(11) \times 10^{-03}$	$5,65(8) \times 10^{-03}$	$5,72(2) \times 10^{-3}$
		328,7	$2,828(44) \times 10^{-02}$	$2,84(4) \times 10^{-02}$	$2,87(3) \times 10^{-2}$
	¹⁴⁰ La	487	$6,39(10) \times 10^{-02}$	$6,32(9) \times 10^{-02}$	$6,37(6) \times 10^{-2}$
		815,8	$3,27(5) \times 10^{-02}$	$3,24(5) \times 10^{-02}$	$3,32(2) \times 10^{-2}$
		1596,2	$1,38(7) \times 10^{-01}$	$1,36(2) \times 10^{-01}$	$1,34(1) \times 10^{-1}$
	⁴⁶ Sc	889	1,198(25)	1,186(24)	1,220(5)
		1120	1,193(25)	1,185(23)	1,220(13)
2010	⁹⁵ Zr	724,2	$8,88(12) \times 10^{-05}$	$8,89(9) \times 10^{-05}$	$8,99(10) \times 10^{-5}$
		756,7	$1,10(1) \times 10^{-04}$	$1,10(1) \times 10^{-04}$	$1,11(2) \times 10^{-4}$
	⁶⁵ Zn	1115,5	$5,60(9) \times 10^{-03}$	$5,58(5) \times 10^{-03}$	$5,72(2) \times 10^{-3}$
		^{69m} Zn	$438,6$	$3,94(10) \times 10^{-4}$	$3,93(9) \times 10^{-4}$
	¹⁴⁰ La	328,7	$2,87(4) \times 10^{-02}$	$2,89(3) \times 10^{-02}$	$2,87(3) \times 10^{-2}$
		487	$6,40(9) \times 10^{-02}$	$6,42(6) \times 10^{-02}$	$6,37(6) \times 10^{-2}$
		815,8	$3,35(5) \times 10^{-02}$	$3,33(3) \times 10^{-02}$	$3,32(2) \times 10^{-2}$
		1596,2	$1,34(2) \times 10^{-01}$	$1,38(3) \times 10^{-01}$	$1,34(1) \times 10^{-1}$
		⁶⁰ Co	1173,2	1,330(21)	1,344(16)
			1332,5	1,322(22)	1,320(17)
	⁴⁶ Sc	889	1,218(17)	1,237(13)	1,220(5)
		1120	1,224(17)	1,225(12)	1,220(13)

Observa-se que ambos os códigos utilizados exibiram valores aproximados, indicando que não houve divergências nos dados ou nos próprios códigos propostos no presente trabalho. Verificou-se também, pelas TAB. apresentadas, que o código AKFIT v2.1 obteve incertezas menores, o que pode sugerir um potencial de ser mais preciso.

Definiu-se, no presente trabalho, as médias de todos os métodos utilizados como os valores gerais de k_0 para cada elemento. Ou seja, realizou-se a média dos valores de k_0 por meio dos resultados obtidos pelos campos K0 e K03 do código COVAR v4.1 (FIG. 6) e dos resultados obtidos pelo AKFIT v2.1 por meio dos ajustes individuais e simultâneo dos dados analisados. Para os isótopos que estavam contidos em ambas as irradiações, realizou-se uma nova média entre os valores obtidos em cada período. O resultado é apresentado na TAB. 21:

TABELA 21 - Valores médios de k_0 calculados para os elementos analisados.

Produto	Energia	Valores de k_0	
		k_0 (Presente Trabalho)	k_0 (Literatura) ^[88]
⁹⁵ Zr	724,2	$8,92(12) \times 10^{-05}$	$8,99(10) \times 10^{-5}$
	756,7	$1,11(2) \times 10^{-04}$	$1,11(2) \times 10^{-4}$
⁶⁵ Zn	1115,5	$5,63(8) \times 10^{-03}$	$5,72(2) \times 10^{-3}$
^{69m} Zn	438,6	$3,93(9) \times 10^{-04}$	$3,98(2) \times 10^{-4}$
	328,7	$2,86(4) \times 10^{-02}$	$2,87(3) \times 10^{-2}$
¹⁴⁰ La	487	$6,39(8) \times 10^{-02}$	$6,37(6) \times 10^{-2}$
	815,8	$3,33(4) \times 10^{-02}$	$3,32(2) \times 10^{-2}$
	1596,2	$1,36(3) \times 10^{-01}$	$1,34(1) \times 10^{-1}$
⁶⁰ Co	1173,2	1,334(18)	1,320(5)
	1332,5	1,321(19)	1,320(7)
⁴⁶ Sc	889	1,209 (19)	1,220(5)
	1120	1,208 (18)	1,220(13)

Para o parâmetro α o valor médio obtido foi $0,0025 \pm 0,0083$. Pode-se evidenciar que todos os parâmetros calculados estão de acordo com os valores referenciais usados neste trabalho.

À nível de comparação, na TAB. 22 é apresentado os valores de ⁶⁵Zn da referência^[17, 18] e os obtidos no presente trabalho:

TABELA 22 - Comparação dos valores de k_0 e Q_0 para ⁶⁴Zn da literatura com os obtidos no presente trabalho.

Comparação de ⁶⁴ Zn				
Alvo	Parâm.	Ref. ^[17, 18]	Ref. ^[88]	Presente Trabalho
⁶⁴ Zn	k_0	$5,63(8) \times 10^{-3}$	$5,72(2) \times 10^{-3}$	$5,63(8) \times 10^{-3}$
	Q_0	1,69(6)	1,91(9)	1,88(5)

O valor de k_0 obtido para a irradiação de 2008 foi exatamente o mesmo em relação à referência^[18], entretanto, o valor de Q_0 foi maior, se aproximando da referência IUPAC utilizada.

5 CONCLUSÃO

O objetivo dos resultados apresentados neste trabalho procurou verificar a validade da construção do novo código incluído no COVAR v4.1 e do código AKFIT v2.1. Com atualização para COVAR v4.1, corrigindo-se algumas limitações da versão anterior (COVAR v3), como a limitação da análise de, no máximo, 20 alvos e a limitação das análises das correlações criando uma extensão para qualquer caso geral de arquivos de dados, criou-se um código mais completo e eficiente. Os valores obtidos pela nova equação incluída neste trabalho foram semelhantes aos resultados da equação existente na versão anterior, indicando que os cálculos estão em acordo com os resultados validados pelo código, sendo possível usá-lo como uma forma alternativa de análise, já que não se faz necessário a utilização das irradiações com cádmio, na condição de que se saibam os valores de f e $Q_{0,i}$ previamente.

A criação dos métodos linear e não linear de ajuste para o código AKFIT v2.1 possibilitou a determinação dos parâmetros α e k_0 de modo único e eficiente. Ambos os ajustes se mostraram coerentes com o previsto, obtendo resultados satisfatórios e com incertezas ligeiramente menores que o código COVAR v4.1. É interessante realizar novos testes.

As matrizes de correlação geradas neste trabalho foram importantes para se averiguar o comportamento dos dados, auxiliando na verificação de eventuais erros de análise ou de medida. Por meio delas foi possível verificar as correlações de cada parâmetro envolvido na AAN que foi utilizado.

Com base no trabalho realizado concluiu-se que não houve erros nos códigos desenvolvidos e todos os resultados estão dentro do esperado logicamente, conforme as informações impostas no arquivo de dados de entrada. Este estudo, além de aplicar toda a metodologia de análise por covariância, contribuiu para a melhoria dos dados nucleares para este tipo de aplicação. Os sucessos dos códigos mostraram a possibilidade dos seus usos de modo eficiente e confiável.

Em trabalhos futuros, sugere-se incluir mais parâmetros para as correlações e assim obter uma análise mais completa e detalhada dos dados para ambos os códigos. Sugere-se ainda para o AKFIT v2.1 a inclusão dos parâmetros $Q_{0,i}$ e f em seu código, pois, já possuindo um ajuste não-linear, torna-se viável suas inclusões, a fim de criar um código capaz de calcular os parâmetros essenciais do Método k_0 . Pretende-se também que tanto COVAR v4 quanto os ajustes únicos sejam incorporados em um só código, ou seja, criar um programa único que possua diferentes formas de obtenção do fator k_0 e os parâmetros associados, tornando-o um programa de uso padrão, manipulável e completo, podendo ser usado como referência para as determinações dos parâmetros necessários da AAN, sem a necessidade de recorrer a outros métodos de cálculos externos, como uso de planilhas e objetos afins.

APÊNDICES

Apêndice A

Listagem parcial do código COVAR v4.1, apresentando as atualizações realizadas na determinação das covariâncias entre os parâmetros k_0 e Q_0 e a inclusão da EQ. (3.3).

```

LEITURAS DAS LINHAS DO ARQUIVO E INCLUSÃO DE  $f$  (FII) E  $Q_0$  (Q0II)

READ(1,*)ID1(N),ERG1(N),N1(N),FZ1(N),FA1(N),D1(N),
+C1(N),S1(N),W1(N),GTHI(N),
+EFI(N),FCDI(N),Q0C(N),ERC(N),ALFA(N),GEI(N),ERI(N),FII(N),Q0II(N)
.
.
.
C   DERIVADAS EM RELAÇÃO AOS PARAMETROS DO K03
C   PRIMEIRO CONJUNTO
C
C   N1
DEL(N,3,1)=(C3(N)*D3(N)*EFC(N)*FA1(N)*FZ1(N)*(GEC(N)*Q0C(N)+FII(N)
+*GTHC(N))*S3(N)*W3(N))/(C1(N)*D1(N)*EFI(N)*FA3(N)*FZ
+3(N)*N3(N)*(GEI(N)*Q0II(N)+FII(N)*GTHI(N))*S1(N)*W1(N))
.
.
.
C   CÁLCULO DE K03 (EQ. 3.3)
K03(N)=(ASP1*(Gthc(N)*Fii(N) + Gec(N)*Q0alfac)*Efc(N) )/
+(ASP3*(GthI(N)*FII(N) + GeI(N)*Q0II(N))*Efi(N) )
.
.
.
C   CALCULO DA MATRIZ DE COVARIANCIA

DO 3020 NA=1,NN
DO 3015 NB=1,NN

DO 1110 I=1,3
DO 1510 J=1,3

COVAR(NA,NB,I,J) = 0
DO 1610 K=1,M2

IF (ID1(NA) .EQ. ID1(NB) .AND. ERG1(NA) .EQ. ERG1(NB)) THEN
PARC = DEL(NA,I,K)*DEL(NB,J,K)*RO(I,J,K)*SIG(NA,I,K)*SIG(NB,J,K)
ELSE IF (ID1(NA) .EQ. ID1(NB) .AND. ERG1(NA) .NE. ERG1(NB)) THEN
PARC = DEL(NA,I,K)*DEL(NB,J,K)*ROC(I,J,K)*SIG(NA,I,K)*SIG(NB,J,K)
ELSE
PARC = DEL(NA,I,K)*DEL(NB,J,K)*ROB(I,J,K)*SIG(NA,I,K)*SIG(NB,J,K)
ENDIF
COVAR(NA,NB,I,J) = COVAR(NA,NB,I,J) + PARC
GRAVAÇÃO DAS MATRIZES DE COVARIÂNCIA E CORRELAÇÃO

WRITE(6,*)

```

```
WRITE(6,*) 'MATRIZ DE COVARIANCIA ENTRE OS PARAMETROS Q0 E K0'
WRITE(6,*)
```

```
WRITE(6,4025)((((COVAR(NA,NB,I,J),J=1,2),
+NB=1,NN),NA,I=1,2),NA =1,NN)
```

```
WRITE(6,*)
WRITE(6,*) 'MATRIZ DE COVARIANCIA ENTRE OS PARAMETROS Q0 E K03'
WRITE(6,*)
```

```
WRITE(6,4025)((((COVAR(NA,NB,I,J),J=2,3),
+NB=1,NN),NA,I=2,3),NA =1,NN)
```

```
WRITE(6,*)
WRITE(6,*) 'MATRIZ DE CORRELAÇÃO ENTRE OS PARAMETROS Q0 E K0'
WRITE(6,*)
```

```
WRITE(6,4030)((((CORREL(NA,NB,I,J),J=1,2),
+NB=1,NN),NA,I=1,2),NA =1,NN)
```

```
WRITE(6,*)
WRITE(6,*) 'MATRIZ DE CORRELAÇÃO ENTRE OS PARAMETROS Q0 E K03'
WRITE(6,*)
```

```
WRITE(6,4030)((((CORREL(NA,NB,I,J),J=2,3),
+NB=1,NN),NA,I=2,3),NA =1,NN)
```



```

dYsdepsilon = -epsilon.^(-1);
.
.
.
// Covariâncias
for i=1:NGamas
    for j=i+1:NGamas
        if(isotopo(i)==isotopo(j))
            if(idouro(i)==idouro(j))
                Vy(i,j) = dYsdQ0(i).*dYsdQ0(j).*sigmaQ0(i).^2 + dYsdFcd(i).*dYsdFcd(j).*sigmaFcd(i).^2 +
dYsdGepi(i).*dYsdGepi(j).*sigmaGepi(i).^2;
                Vy(j,i) = Vy(i,j);
            end
        end
    end; // for j
end; // for i
.
.
.

// ----- Ajuste pelos mínimos quadrados
dimX=size(X);
NumeroDeParametros = dimX(1,2);
VyInv = inv(Vy);
Vpar = inv(X'*VyInv*X);
Par = Vpar*X'*VyInv*Y;
// --- Calcula as diferenças
Yaju=X*Par;
D=(Y-Yaju);

// Calcula o qui-quadrado
Qui2=D'*VyInv*D;

// Calcula o qui-quadrado reduzido
GrausDeLiberdade=NTotal-NumeroDeParametros;
Qui2Red=Qui2/GrausDeLiberdade;
.
.
.

//-----
// --- Resultados do ajuste
a = Par(1,1); Sigmaa=sqrt(Vpar(1,1));
alfa = Par(2,1); Sigmaalfa=sqrt(Vpar(2,2));
correlacao_alfa = Vpar(1,2)/(Sigmaa*Sigmaalfa);
.
.
.

// Começando o levenberg

Aa=grand(1,1,'unf',2, 30)
Aalfa=grand(1,1,'unf',0.0001, 0.1)
A2=[Aa;Aalfa]

for i=1:NGamas
    A2(i+2) = log(i + grand(1,1,'unf',1.001, 5))
end

Yexp=Y

R=X'*VyInv*X

//valores de lambda e parâmetros para o loop na hora de fazer a análise
chidif = 1;
lambda=0.000000001;

```

```

X2=0;
chi2=-1;
.
.
.

Yaju2=[YajuSup;YajuInftodos]
Datb=Yexp-Yaju2

Yy=Yexp-Yaju2
if chi2 == -1 then
    chi2=Datb'*inv(Vy)*Datb
end
end

RLambda = zeros(NGamas+2,NGamas+2);
.
.
.
DA=inv(RLambda)*X'*inv(Vy)*Yy;
Ynovo=X*DA;
D=Yy-Ynovo
chi2novo=D'*inv(Vy)*D
chidif = chi2novo - chi2;

if chidif >= 0
    lambda = lambda * 10;
    recacularY=0
else
    lambda = lambda / 10;
    Anovo = A2+DA

A2 = Anovo
chi2=chi2novo
recacularY = 1
end

if abs(chidif) < 0.001 then
if abs(chidif) > 0.0001 then
    break;
end
end
// pause;
end

expA=A2;
for i=1:NGamas
expA(i+2)=exp(expA(i+2))
end

Qui2Rednovo=chi2novo/GrausDeLiberdade;

```

Apêndices C, D, E e F

As matrizes apresentadas a seguir, por serem muito extensas, foram divididas em partes para que seja possível observá-las. A divisão foi realizada de acordo com o esquema apresentado na FIG. 13.

FIGURA 13 - Esquema da divisão realizada nas matrizes com suas partes definidas.

Na situação em que a matriz é menor, não foi necessário fazer muitas divisões, bastando em dividi-la na quantidade que for conveniente.

No Apêndice C é apresentado a matriz de correlações do código COVAR v4.1 para os parâmetros k_0 (K0) e Q_0 . No Apêndice D, apresenta-se a Matriz para a relação entre os parâmetros k_0 (K03) e Q_0 . No Apêndice E é apresentado a matriz de correlação entre os parâmetros a , α e k_0 de todos os elementos dos anos de 2008 e 2010 analisados simultaneamente. E no apêndice F estão apresentadas as Matrizes dos dados de 2008 e 2010 analisados separadamente.

Apêndice C

Parte 1x1																		
2010																		
2010		⁹⁵ Zr		⁹⁵ Zr		⁶⁵ Zn		^{69m} Zn		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		
		<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	
	⁹⁵ Zr	1000	-152	865	-145	329	-155	172	-50	445	-156	444	-158	411	-154	306	-158	
		-152	1000	-152	364	-120	428	-63	138	-162	432	-161	436	-150	425	-111	435	
	⁹⁵ Zr	865	-152	1000	-145	328	-155	172	-50	445	-156	443	-158	411	-154	306	-157	
		-145	364	-145	1000	-114	409	-60	132	-155	412	-154	417	-143	406	-106	415	
	⁶⁵ Zn	329	-120	328	-114	1000	-176	139	-40	361	-127	360	-128	334	-125	248	-128	
		-155	428	-155	409	-176	1000	-67	149	-170	459	-170	464	-157	452	-117	462	
	^{69m} Zn	172	-63	172	-60	139	-67	1000	-21	189	-67	188	-68	175	-66	130	-68	
		-50	138	-50	132	-40	149	-21	1000	-55	152	-55	153	-51	150	-38	153	
	¹⁴⁰ La	445	-162	445	-155	361	-170	189	-55	1000	-186	837	-186	843	-179	816	-180	
		156	432	-156	412	-127	459	-67	152	-186	1000	-183	252	-168	269	-125	255	
	¹⁴⁰ La	444	-161	443	-154	360	-170	188	-55	837	-183	1000	-184	844	-177	825	-179	
		-158	436	-158	417	-128	464	-68	153	-186	252	-184	1000	-169	257	-125	247	
	¹⁴⁰ La	411	-150	411	-143	334	-157	175	-51	843	-168	844	-169	1000	-164	861	-165	
		-154	425	-154	406	-125	452	-66	150	-179	269	-177	257	-164	1000	-121	263	
	¹⁴⁰ La	306	-111	306	-106	248	-117	130	-38	816	-125	825	-125	861	-121	1000	-123	
		-158	435	-157	415	-128	462	-68	153	-180	255	-179	247	-165	263	-123	1000	
	⁴⁶ Sc	321	-117	321	-112	261	-123	136	-40	353	-124	352	-126	326	-122	243	-125	
		-127	351	-127	335	-103	372	-55	123	-140	377	-139	381	-129	371	-96	379	
	⁴⁶ Sc	310	-113	310	-108	252	-119	132	-38	341	-120	340	-121	315	-118	234	-121	
		-125	345	-125	329	-101	366	-54	120	-137	370	-137	374	-127	365	-94	372	
	⁶⁰ Co	452	-165	452	-157	367	-173	192	-56	497	-174	495	-176	459	-172	341	-176	
		-159	440	-159	421	-129	476	-69	162	-175	484	-174	489	-162	477	-120	487	
	⁶⁰ Co	466	-170	466	-162	378	-178	198	-57	512	-180	510	-182	473	-177	352	-181	
		-152	421	-152	402	-123	455	-66	155	-167	463	-166	467	-154	456	-115	466	

		Parte 2x1															
		2010															
2008		⁹⁵ Zr		⁹⁵ Zr		⁶⁵ Zn		^{69m} Zn		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La	
		k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0
	⁹⁵ Zr	455	-204	455	-195	369	-215	193	-69	500	-217	498	-219	462	-214	343	-218
		-221	424	-221	405	-179	446	-94	144	-242	450	-242	455	-224	443	-166	453
	⁹⁵ Zr	463	-208	463	-198	375	-218	197	-70	508	-220	507	-222	470	-217	349	-222
		-229	439	-229	419	-185	462	-97	149	-251	466	-250	471	-232	460	-173	470
	⁶⁵ Zn	405	-181	405	-173	328	-191	172	-61	444	-192	443	-194	411	-190	305	-194
		-225	433	-225	414	-183	458	-96	150	-247	463	-247	468	-229	457	-170	466
	¹⁴⁰ La	493	-221	492	-211	399	-232	209	-75	541	-234	539	-237	500	-231	372	-236
		-238	459	-238	438	-193	493	-102	166	-261	500	-260	505	-241	493	-179	504
	¹⁴⁰ La	516	-231	516	-221	418	-243	219	-78	567	-245	565	-248	524	-242	389	-247
		-238	459	-238	438	-193	493	-102	166	-261	500	-260	505	-241	493	-179	504
	¹⁴⁰ La	502	-225	502	-215	407	-237	213	-76	551	-239	550	-241	510	-235	379	-240
		-233	449	-233	428	-189	476	-100	156	-256	481	-255	486	-237	474	-176	484
	¹⁴⁰ La	500	-224	499	-214	405	-236	212	-76	549	-237	547	-240	507	-234	377	-239
		-233	449	-233	428	-189	476	-100	156	-256	481	-255	486	-237	474	-176	484
	⁴⁶ Sc	487	-218	486	-208	395	-229	207	-74	534	-231	533	-234	494	-228	367	-233
		-233	448	-233	428	-189	476	-100	156	-256	481	-255	486	-237	474	-176	484
	⁴⁶ Sc	420	-188	420	-180	340	-198	178	-64	461	-200	460	-202	426	-197	317	-201
		-233	448	-233	428	-189	476	-100	156	-256	481	-255	486	-237	474	-176	484

Parte 1x2																	
2010										2008							
2010		⁴⁶ Sc		⁴⁶ Sc		⁶⁰ Co		⁶⁰ Co		⁹⁵ Zr		⁹⁵ Zr		⁶⁵ Zn		¹⁴⁰ La	
		k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0
	⁹⁵ Zr	321	-127	310	-125	452	-159	466	-152	376	-163	382	-166	317	-163	282	-151
		-117	351	-113	345	-165	440	-170	421	-140	397	-142	405	-118	398	-105	370
	⁹⁵ Zr	321	-127	310	-125	452	-159	466	-152	375	-163	382	-166	316	-163	282	-151
		-112	335	-108	329	-157	421	-162	402	-133	379	-135	386	-112	380	-100	353
	⁶⁵ Zn	261	-103	252	-101	367	-129	378	-123	305	-132	309	-135	257	-132	229	-123
		-123	372	-119	366	-173	476	-178	455	-147	418	-149	426	-124	422	-110	398
	^{69m} Zn	136	-55	132	-54	192	-69	198	-66	159	-69	162	-71	134	-70	120	-65
		-40	123	-38	120	-56	162	-57	155	-47	135	-48	138	-40	138	-35	135
	¹⁴⁰ La	353	-140	341	-137	497	-175	512	-167	412	-179	419	-183	348	-179	310	-166
		-124	377	-120	370	-174	484	-180	463	-148	421	-150	430	-125	426	-111	404
	¹⁴⁰ La	352	-139	340	-137	495	-174	510	-166	411	-178	418	-182	347	-179	309	-165
		-126	381	-121	374	-176	489	-182	467	-149	426	-152	434	-126	431	-112	409
	¹⁴⁰ La	326	-129	315	-127	459	-162	473	-154	381	-165	388	-169	321	-166	287	-153
		-122	371	-118	365	-172	477	-177	456	-146	415	-148	424	-123	420	-109	399
	¹⁴⁰ La	243	-96	234	-94	341	-120	352	-115	283	-123	288	-125	239	-123	213	-114
		-125	379	-121	372	-176	487	-181	466	-149	424	-151	433	-125	429	-112	407
	⁴⁶ Sc	1000	-107	914	-104	359	-127	370	-121	298	-129	303	-132	251	-130	224	-120
		-107	1000	-103	508	-142	390	-146	373	-120	343	-122	349	-101	346	-90	327
	⁴⁶ Sc	914	-103	1000	-101	346	-122	357	-117	288	-125	292	-127	242	-125	216	-116
		-104	508	-101	1000	-139	383	-144	366	-118	336	-120	343	-100	340	-89	321
	⁶⁰ Co	359	-142	346	-139	1000	-180	709	-172	419	-182	426	-186	353	-182	315	-168
		-127	390	-122	383	-180	1000	-185	233	-151	429	-153	438	-127	441	-113	436
	⁶⁰ Co	370	-146	357	-144	709	-185	1000	-176	432	-187	439	-191	364	-188	325	-174
		-121	373	-117	366	-172	233	-176	1000	-144	411	-146	419	-121	422	-108	417

Parte 2x2																	
2010										2008							
2008		⁴⁶ Sc		⁴⁶ Sc		⁶⁰ Co		⁶⁰ Co		⁹⁵ Zr		⁹⁵ Zr		⁶⁵ Zn		¹⁴⁰ La	
		k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0
	⁹⁵ Zr	361	-176	349	-173	508	-221	523	-212	1000	-233	925	-237	423	-228	377	-211
		-175	366	-169	359	-246	459	-254	439	-233	1000	-236	491	-192	471	-171	436
	⁹⁵ Zr	367	-179	354	-176	517	-224	532	-214	925	-236	1000	-241	430	-232	383	-215
		-181	379	-175	372	-255	476	-263	455	-237	491	-241	1000	-196	480	-175	445
	⁶⁵ Zn	321	-156	310	-154	452	-196	465	-187	423	-192	430	-196	1000	-212	318	-178
		-179	376	-173	369	-251	479	-259	458	-228	471	-232	480	-212	1000	-172	445
	¹⁴⁰ La	391	-191	377	-187	550	-239	567	-228	377	-171	383	-175	318	-172	1000	-504
		-189	404	-182	397	-265	535	-273	512	-211	436	-215	445	-178	445	-504	1000
	¹⁴⁰ La	409	-200	395	-196	576	-250	593	-239	389	-177	396	-180	328	-177	952	-520
		-189	404	-182	397	-265	535	-273	512	-211	436	-215	445	-178	445	-504	577
	¹⁴⁰ La	398	-194	385	-191	560	-243	577	-232	560	-255	569	-260	472	-255	671	-266
		-185	390	-179	383	-260	499	-268	477	-237	488	-240	498	-199	492	-201	383
	¹⁴⁰ La	396	-193	383	-190	558	-242	575	-231	556	-253	565	-258	469	-253	672	-264
		-185	390	-179	383	-260	499	-268	477	-237	488	-240	498	-199	492	-201	383
	⁴⁶ Sc	386	-188	373	-185	543	-235	560	-225	535	-243	544	-248	451	-243	402	-225
		-185	390	-179	383	-260	499	-268	477	-237	488	-240	498	-199	492	-178	463
	⁴⁶ Sc	333	-162	322	-159	469	-203	483	-194	439	-199	446	-203	370	-200	330	-184
		-185	390	-179	383	-260	499	-268	477	-237	488	-240	498	-199	492	-178	463

Parte 1x3											
2008											
2010		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		⁴⁶ Sc		⁴⁶ Sc	
		k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0
	⁹⁵ Zr	291	-151	419	-169	416	-169	401	-169	328	-169
		-108	370	-156	413	-155	413	-149	413	-122	413
	⁹⁵ Zr	291	-151	419	-169	416	-169	400	-169	328	-169
		-103	353	-149	394	-148	394	-142	394	-116	394
	⁶⁵ Zn	236	-123	340	-137	337	-137	325	-137	266	-137
		-114	398	-164	438	-162	438	-156	438	-128	438
	^{69m} Zn	124	-65	178	-73	177	-73	170	-73	139	-73
		-36	135	-53	144	-52	144	-50	144	-41	144
	¹⁴⁰ La	320	-166	461	-186	457	-186	440	-186	361	-186
		-115	404	-165	443	-164	443	-158	443	-129	443
	¹⁴⁰ La	319	-165	459	-185	456	-185	438	-185	359	-185
		-116	409	-167	448	-165	448	-159	448	-131	448
	¹⁴⁰ La	296	-153	426	-172	422	-172	407	-172	333	-172
		-113	399	-163	437	-161	437	-155	437	-127	437
	¹⁴⁰ La	220	-114	316	-128	314	-128	302	-128	248	-128
		-115	407	-166	446	-165	446	-159	446	-130	446
	⁴⁶ Sc	231	-120	333	-134	330	-134	318	-134	260	-134
		-93	327	-134	360	-133	360	-128	360	-105	360
	⁴⁶ Sc	223	-116	321	-130	319	-130	307	-130	251	-130
		-92	321	-132	353	-131	353	-126	353	-103	353
	⁶⁰ Co	325	-168	468	-189	464	-189	447	-189	366	-189
		-116	436	-168	460	-167	460	-160	460	-131	460
	⁶⁰ Co	335	-174	482	-194	479	-194	461	-194	378	-194
		-111	417	-160	440	-159	440	-153	440	-126	440

Parte 2x3											
2008											
2008		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		⁴⁶ Sc		⁴⁶ Sc	
		k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0
	⁹⁵ Zr	389	-211	560	-237	556	-237	535	-237	439	-237
		-177	436	-255	488	-253	488	-243	488	-199	488
	⁹⁵ Zr	396	-215	569	-240	565	-240	544	-240	446	-240
		-180	445	-260	498	-258	498	-248	498	-203	498
	⁶⁵ Zn	328	-178	472	-199	469	-199	451	-199	370	-199
		-177	445	-255	492	-253	492	-243	492	-200	492
	¹⁴⁰ La	952	-504	671	-201	672	-201	402	-178	330	-178
		-520	577	-266	383	-264	383	-225	463	-184	463
	¹⁴⁰ La	1000	-520	645	-207	644	-207	415	-183	340	-183
		-520	1000	-266	383	-264	383	-225	463	-184	463
	¹⁴⁰ La	645	-266	1000	-267	910	-267	597	-264	490	-264
		-207	383	-267	1000	-265	466	-252	511	-207	511
	¹⁴⁰ La	644	-264	910	-265	1000	-265	593	-262	486	-262
		-207	383	-267	466	-265	1000	-252	511	-207	511
	⁴⁶ Sc	415	-225	597	-252	593	-252	1000	-255	899	-255
		-183	463	-264	511	-262	511	-255	1000	-210	466
	⁴⁶ Sc	340	-184	490	-207	486	-207	899	-210	1000	-210
		-183	463	-264	511	-262	511	-255	466	-210	1000

Apêndice D

Parte 1x1																	
2010																	
2010		⁹⁵ Zr		⁹⁵ Zr		⁶⁵ Zn		^{69m} Zn		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La	
		k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0
	⁹⁵ Zr	1000	-5	764	-5	428	-10	138	-6	432	-11	436	-11	425	-11	435	-9
		-5	1000	-4	1000	-31	949	-26	629	-38	968	-38	967	-37	979	-38	960
	⁹⁵ Zr	764	-4	1000	-4	409	-9	132	-6	412	-11	417	-11	406	-10	415	-8
		-5	1000	-4	1000	-31	952	-26	617	-38	968	-38	968	-37	980	-38	962
	⁶⁵ Zn	428	-31	409	-31	1000	-47	149	-16	459	-29	464	-29	452	-28	462	-23
		-10	949	-9	952	-47	1000	-21	467	-31	954	-31	960	-30	966	-31	976
	^{69m} Zn	138	-26	132	-26	149	-21	1000	-1	152	-25	153	-25	150	-24	153	-20
		-6	629	-6	617	-16	467	-1	1000	-19	576	-20	547	-19	591	-20	553
	¹⁴⁰ La	432	-38	412	-38	459	-31	152	-19	1000	-14	6552	-13	569	-11	555	-7
		-11	968	-11	968	-29	954	-25	576	-14	1000	-12	999	-9	995	-7	939
	¹⁴⁰ La	436	-38	417	-38	464	-31	153	-20	652	-12	1000	-11	657	-9	647	-7
		-11	967	-11	968	-29	960	-25	547	-13	999	-11	1000	-9	996	-6	945
	¹⁴⁰ La	425	-37	406	-37	452	-30	150	-19	569	-9	657	-9	1000	-7	563	-5
		-11	979	-10	980	-28	966	-24	591	-11	995	-9	996	-7	1000	-5	967
	¹⁴⁰ La	435	-38	415	-38	462	-31	153	-20	555	-7	647	-6	563	-5	1000	-4
		-9	960	-8	962	-23	976	-20	553	-7	939	-7	945	-5	967	-4	1000
	⁴⁶ Sc	251	-27	235	-27	372	-22	123	-14	377	-26	381	-26	371	-25	379	-20
		-10	863	-9	856	-25	752	-21	896	-31	861	-31	840	-31	859	-31	785
	⁴⁶ Sc	245	-26	229	-26	366	-22	120	-14	370	-25	374	-25	365	-24	372	-20
		-9	887	-9	880	-25	787	-21	891	-30	875	-31	856	-30	880	-31	826
	⁶⁰ Co	440	-77	421	-77	476	-63	162	-40	484	-75	489	-74	477	-71	487	-59
		-11	931	-10	933	-29	932	-25	546	-36	965	-36	968	-35	970	-36	938
	⁶⁰ Co	421	-74	402	-74	455	-60	155	-38	463	-71	467	-71	456	-68	466	-57
		-11	929	-11	930	-29	914	-25	521	-36	986	-37	987	-36	975	-36	900

Parte 2x1																	
2010																	
2008		⁹⁵ Zr		⁹⁵ Zr		⁶⁵ Zn		^{69m} Zn		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La	
		k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0
	⁹⁵ Zr	424	-12	405	-12	446	-9	144	-6	450	-11	455	-11	443	-10	453	-8
		-9	779	-9	778	-24	762	-20	523	-29	866	-30	863	-29	850	-30	759
	⁹⁵ Zr	439	-11	419	-11	462	-9	149	-6	466	-10	471	-10	460	-10	470	-8
		-9	779	-9	779	-24	762	-20	524	-29	866	-30	863	-29	850	-30	760
	⁶⁵ Zn	433	-25	414	-25	458	-21	150	-13	463	-24	468	-24	457	-23	466	-19
		-6	714	-6	714	-17	735	-14	494	-20	830	-20	826	-20	814	-20	729
	¹⁴⁰ La	459	-65	438	-65	493	-53	166	-33	500	-62	505	-62	493	-60	504	-50
		-5	627	-5	628	-14	664	-12	376	-18	770	-18	770	-17	748	-18	652
	¹⁴⁰ La	459	-65	438	-65	493	-53	166	-33	500	-62	505	-62	493	-60	504	-50
		-5	610	-5	610	-14	643	-12	369	-18	758	-18	757	-17	733	-18	629
	¹⁴⁰ La	449	-31	428	-31	476	-25	156	-16	481	-30	486	-29	474	-28	484	-23
		-6	650	-6	650	-16	674	-13	410	-19	785	-20	783	-19	762	-20	661
	¹⁴⁰ La	449	-31	428	-31	476	-25	156	-16	481	-30	486	-30	474	-28	484	-23
		-6	652	-6	652	-16	677	-13	409	-19	786	-20	785	-19	764	-20	663
	⁴⁶ Sc	448	-31	428	-31	476	-26	156	-16	481	-30	486	-30	474	-28	484	-24
		-6	661	-6	661	-16	688	-13	412	-19	793	-20	792	-19	772	-20	676
	⁴⁶ Sc	448	-31	428	-31	476	-26	156	-16	481	-30	486	-30	474	-28	484	-24
		-6	698	-6	698	-16	734	-13	426	-19	817	-19	817	-19	804	-19	729

Parte 1x2																	
2010	2010								2008								
	⁴⁶ Sc		⁴⁶ Sc		⁶⁰ Co		⁶⁰ Co		⁹⁵ Zr		⁹⁵ Zr		⁶⁵ Zn		^{69m} Zn		
	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	<i>k</i> ₀	<i>Q</i> ₀	
⁹⁵ Zr	251	-10	245	-9	440	-11	421	-11	424	-9	439	-9	433	-6	459	-5	
	-27	863	-26	887	-77	931	-74	929	-12	779	-11	779	-25	714	-65	627	
⁹⁵ Zr	235	-9	229	-9	421	-10	402	-11	405	-9	419	-9	414	-6	438	-5	
	-27	856	-26	880	-77	933	-74	930	-12	778	-11	779	-25	714	-65	628	
⁶⁵ Zn	372	-25	366	-25	476	-29	455	-29	446	-24	462	-24	458	-17	493	-14	
	-22	752	-22	787	-63	932	-60	914	-9	762	-9	762	-21	735	-53	664	
^{69m} Zn	123	-21	120	-21	162	-25	155	-25	144	-20	149	-20	150	-14	166	-12	
	-14	896	-14	891	-40	546	-38	521	-6	523	-6	524	-13	494	-33	376	
¹⁴⁰ La	377	-31	370	-30	484	-36	463	-36	450	-29	466	-29	463	-20	500	-18	
	-26	861	-25	875	-75	965	-71	986	-11	866	-10	866	-24	830	-62	770	
¹⁴⁰ La	381	-31	374	-31	489	-36	467	-37	455	-30	471	-30	468	-20	505	-18	
	-26	840	-25	856	-74	968	-71	987	-11	863	-10	863	-24	826	-62	770	
¹⁴⁰ La	371	-31	365	-30	477	-35	456	-36	443	-29	460	-29	457	-20	493	-17	
	-25	859	-24	880	-71	970	-68	975	-10	850	-10	850	-23	814	-60	748	
¹⁴⁰ La	379	-31	372	-31	487	-36	466	-36	453	-30	470	-30	466	-20	504	-18	
	-20	785	-20	826	-59	938	-57	900	-8	759	-8	760	-19	729	-50	652	
⁴⁶ Sc	1000	-7	508	-7	390	-25	373	-26	366	-21	379	-21	376	-14	404	-12	
	-7	1000	-6	996	-64	794	-61	834	-9	753	-9	754	-20	720	-53	621	
⁴⁶ Sc	508	-6	1000	-6	383	-25	366	-25	359	-21	372	-20	369	-14	397	-12	
	-7	996	-6	1000	-62	815	-59	842	-9	751	-9	752	-20	719	-52	616	
⁶⁰ Co	390	-64	383	-62	1000	-3	233	-3	459	-60	476	-60	479	-41	535	-36	
	-25	794	-25	815	-3	1000	-3	943	-10	864	-10	864	-23	833	-61	788	
⁶⁰ Co	373	-61	366	-59	233	-3	1000	-2	439	-57	455	-57	458	-40	512	-35	
	-26	834	-25	842	-3	943	-2	1000	-11	871	-10	872	-24	844	-62	805	

Parte 2x2																	
2010									2008								
2008		⁴⁶ Sc		⁴⁶ Sc		⁶⁰ Co		⁶⁰ Co		⁹⁵ Zr		⁹⁵ Zr		⁶⁵ Zn		¹⁴⁰ La	
		k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0
	⁹⁵ Zr	366	-9	359	-9	459	-10	439	-11	1000	6	491	7	471	119	436	91
		-21	753	-21	751	-60	864	-57	871	6	1000	6	999	87	973	50	742
	⁹⁵ Zr	379	-9	372	-9	476	-10	455	-10	491	6	1000	7	480	122	445	93
		-21	754	-20	752	-60	864	-57	872	7	999	7	1000	88	973	51	750
	⁶⁵ Zn	376	-20	369	-20	479	-23	458	-24	471	87	480	88	1000	7	445	81
		-14	720	-14	719	-41	833	-40	844	119	973	122	973	7	1000	75	738
	¹⁴⁰ La	404	-53	397	-52	535	-61	512	-62	436	50	445	51	445	75	1000	-309
		-12	621	-12	616	-36	788	-35	805	91	742	93	750	81	738	-309	1000
	¹⁴⁰ La	404	-53	397	-52	535	-61	512	-62	436	50	445	51	445	75	577	-309
		-13	613	-12	605	-36	773	-35	796	79	717	81	724	69	703	-330	995
	¹⁴⁰ La	390	-25	383	-25	499	-29	477	-29	488	85	498	86	492	108	383	-19
		-14	649	-14	642	-40	797	-38	813	110	957	112	962	97	950	-31	790
	¹⁴⁰ La	390	-25	383	-25	499	-29	477	-30	488	85	498	86	492	108	383	-19
		-14	649	-14	643	-40	799	-38	814	111	958	114	964	98	953	-29	790
	⁴⁶ Sc	390	-26	383	-25	499	-29	477	-30	488	85	498	86	492	108	463	80
		-14	652	-14	648	-40	806	-38	819	118	962	120	969	105	963	68	790
	⁴⁶ Sc	390	-26	383	-25	499	-29	477	-30	488	85	498	86	492	108	463	80
		-14	665	-13	668	-39	836	-38	835	137	943	140	951	126	966	91	759

Parte 1x3											
2008											
2010		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		⁴⁶ Sc		⁴⁶ Sc	
		k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0
	⁹⁵ Zr	459	-5	449	-6	449	-6	448	-6	448	-6
		-65	610	-31	650	-31	652	-31	661	-31	698
	⁹⁵ Zr	438	-5	428	-6	428	-6	428	-6	428	-6
		-65	610	-31	650	-31	652	-31	661	-31	698
	⁶⁵ Zn	493	-14	476	-16	476	-16	476	-16	476	-16
		-53	643	-25	674	-25	677	-26	688	-26	734
	^{69m} Zn	166	-12	156	-13	156	-13	156	-13	156	-13
		-33	369	-16	410	-16	409	-16	412	-16	426
	¹⁴⁰ La	500	-18	481	-19	481	-19	481	-19	481	-19
		-62	758	-30	785	-30	786	-30	793	-30	817
	¹⁴⁰ La	505	-18	486	-20	486	-20	486	-20	486	-19
		-62	757	-29	783	-30	785	-30	792	-30	817
	¹⁴⁰ La	493	-17	474	-19	474	-19	474	-19	474	-19
		-60	733	-28	762	-28	764	-28	772	-28	804
	¹⁴⁰ La	504	-18	484	-20	484	-20	484	-20	484	-19
		-50	629	-23	661	-23	663	-24	676	-24	729
	⁴⁶ Sc	404	-13	390	-14	390	-14	390	-14	390	-14
		-53	613	-25	649	-25	649	-26	652	-26	665
	⁴⁶ Sc	397	-12	383	-14	383	-14	383	-14	383	-13
		-52	605	-25	642	-25	643	-25	648	-25	668
	⁶⁰ Co	535	-36	499	-40	499	-40	499	-40	499	-39
		-61	773	-29	797	-29	799	-29	806	-29	836
	⁶⁰ Co	512	-35	477	-38	477	-38	477	-38	477	-38
		-62	796	-29	813	-30	814	-30	819	-30	835

Parte 2x3											
2008											
2008		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		¹⁴⁰ La		⁴⁶ Sc		⁴⁶ Sc	
		k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0	k_0	Q_0
	⁹⁵ Zr	436	79	488	110	488	111	488	118	488	137
		50	717	85	957	85	958	85	962	85	943
	⁹⁵ Zr	445	81	498	112	498	114	498	120	498	140
		51	724	86	962	86	964	86	969	86	951
	⁶⁵ Zn	445	69	492	97	492	98	492	105	492	126
		75	703	108	950	108	953	108	963	108	966
	¹⁴⁰ La	577	-330	383	-31	383	-29	463	68	463	91
		-309	995	-19	790	-19	790	80	790	80	759
	¹⁴⁰ La	1000	-330	383	-31	383	-29	463	68	463	91
		-330	1000	-34	775	-34	774	68	767	68	715
	¹⁴⁰ La	383	-34	1000	-8	466	-6	511	104	511	127
		-31	775	-8	1000	-8	1000	95	997	95	950
	¹⁴⁰ La	383	-34	466	-8	1000	-6	511	104	511	127
		-29	774	-6	1000	-6	1000	97	998	97	954
	⁴⁶ Sc	463	68	511	95	511	97	1000	4	466	41
		68	767	104	997	104	998	4	1000	4	971
	⁴⁶ Sc	463	68	511	95	511	97	466	4	1000	41
		91	715	127	950	127	954	41	971	41	1000

Apêndice E

Correlações dos dados de 2008 e 2010 simultâneos															
Parte 1x1															
2010															
		<i>a</i>	α	⁹⁵ Zr	⁹⁵ Zr	⁶⁵ Zn	^{69m} Zn	¹⁴⁰ La	¹⁴⁰ La	¹⁴⁰ La	¹⁴⁰ La	⁴⁶ Sc	⁴⁶ Sc	⁶⁰ Co	⁶⁰ Co
2010	<i>a</i>	1000	-959	-55	-55,1	-63,2	-103	-63,2	-62,5	-57,3	-41,5	-113	-110	-26,6	-29,8
	α	-959	1000	22,9	23,2	28,1	66,7	31,4	30,9	28,6	20,6	78,4	77,3	-3,98	-4,3
	⁹⁵ Zr	-55	22,9	1000	307	353	124	338	336	305	223	242	228	281	313
	⁹⁵ Zr	-55,1	23,2	307	1000	355	125	340	338	306	224	243	229	282	314
	⁶⁵ Zn	-63,2	28,1	353	355	1000	144	394	391	355	260	281	265	326	364
	^{69m} Zn	-103	66,7	124	125	144	1000	138	137	124	90,7	106	100	113	126
	¹⁴⁰ La	-63,2	31,4	338	340	394	138	1000	376	341	249	269	254	313	349
	¹⁴⁰ La	-62,5	30,9	336	338	391	137	376	1000	339	248	268	252	311	347
	¹⁴⁰ La	-57,3	28,6	305	306	355	124	341	339	1000	225	243	229	282	315
	¹⁴⁰ La	-41,5	20,6	223	224	260	90,7	249	248	225	1000	178	167	206	230
	⁴⁶ Sc	-113	78,4	242	243	281	106	269	268	243	178	1000	215	222	248
	⁴⁶ Sc	-110	77,3	228	229	265	100	254	252	229	167	215	1000	209	233
	⁶⁰ Co	-26,6	-3,98	281	282	326	113	313	311	282	206	222	209	1000	468
	⁶⁰ Co	-29,8	-4,31	313	314	364	126	349	347	315	230	248	233	468	1000
2008	⁹⁵ Zr	-21	-30,2	17,9	17,8	19,5	20,1	17,7	17,5	16	11,6	18,8	18,1	17,1	19,1
	⁹⁵ Zr	-20,7	-32,3	18,4	18,3	20,1	20,7	18,2	18,1	16,4	12	19,3	18,6	17,7	19,7
	⁶⁵ Zn	-90,5	-97,1	66	65,6	72	74,7	65,4	64,9	59	43,1	70,1	67,5	62,9	70,1
	¹⁴⁰ La	-33,1	-6,51	14,5	14,4	15,8	17	14,5	14,3	13,1	9,53	16,2	15,6	13,4	15
	¹⁴⁰ La	-32,9	-6,45	14,4	14,3	15,8	16,9	14,4	14,3	13	9,48	16,1	15,5	13,4	14,9
	¹⁴⁰ La	-32,2	-6,37	14,1	14	15,4	16,5	14,1	14	12,7	9,28	15,7	15,2	13,1	14,6
	¹⁴⁰ La	-28,4	-5,39	12,4	12,3	13,5	14,5	12,3	12,2	11,2	8,13	13,8	13,3	11,5	12,8
	⁴⁶ Sc	77,8	-119	10,7	10,6	11,4	8,04	9,74	9,69	8,77	6,43	5,97	5,56	12,8	14,3
	⁴⁶ Sc	79,1	-121	11	10,8	11,6	8,23	9,95	9,9	8,96	6,57	6,12	5,71	13,1	14,5

		Correlações dos dados de 2008 e 2010 simultâneos								
		Parte 1x2								
		2008								
		⁹⁵ Zr	⁹⁵ Zr	⁶⁵ Zn	¹⁴⁰ La	¹⁴⁰ La	¹⁴⁰ La	¹⁴⁰ La	⁶⁰ Co	⁶⁰ Co
2010	<i>a</i>	-21	-20,7	-90,5	-33,1	-32,9	-32,2	-28,4	77,8	79,1
	<i>α</i>	-30,2	-32,3	-97,1	-6,51	-6,45	-6,37	-5,39	-119	-121
	⁹⁵ Zr	17,9	18,4	66	14,5	14,4	14,1	12,4	10,7	11
	⁹⁵ Zr	17,8	18,3	65,6	14,4	14,3	14	12,3	10,6	10,8
	⁶⁵ Zn	19,5	20,1	72	15,8	15,8	15,4	13,5	11,4	11,6
	^{69m} Zn	20,1	20,7	74,7	17	16,9	16,5	14,5	8,04	8,23
	¹⁴⁰ La	17,7	18,2	65,4	14,5	14,4	14,1	12,3	9,74	9,95
	¹⁴⁰ La	17,5	18,1	64,9	14,3	14,3	14	12,2	9,69	9,9
	¹⁴⁰ La	16	16,4	59	13,1	13	12,7	11,2	8,77	8,96
	¹⁴⁰ La	11,6	12	43,1	9,53	9,48	9,28	8,13	6,43	6,57
	⁴⁶ Sc	18,8	19,3	70,1	16,2	16,1	15,7	13,8	5,97	6,12
	⁴⁶ Sc	18,1	18,6	67,5	15,6	15,5	15,2	13,3	5,56	5,71
	⁶⁰ Co	17,1	17,7	62,9	13,4	13,4	13,1	11,5	12,8	13,1
	⁶⁰ Co	19,1	19,7	70,1	15	14,9	14,6	12,8	14,3	14,5
2008	⁹⁵ Zr	1000	345	307	351	348	336	272	239	246
	⁹⁵ Zr	345	1000	317	365	361	349	282	248	256
	⁶⁵ Zn	307	317	1000	326	323	312	252	233	240
	¹⁴⁰ La	351	365	326	1000	385	372	301	262	270
	¹⁴⁰ La	348	361	323	385	1000	368	298	260	267
	¹⁴⁰ La	336	349	312	372	368	1000	288	251	258
	¹⁴⁰ La	272	282	252	301	298	288	1000	203	208
	⁴⁶ Sc	239	248	233	262	260	251	203	1000	255
	⁴⁶ Sc	246	256	040	270	267	258	209	255	1000

Apêndice F

		Correlações dos dados de 2008 separados										
		a	α	⁹⁵ Zr	⁹⁵ Zr	⁶⁵ Zn	¹⁴⁰ La	¹⁴⁰ La	¹⁴⁰ La	¹⁴⁰ La	⁶⁰ Co	⁶⁰ Co
2008	a	1000	-969	-87.1	-102	-200	-115	-115	-112	-99.2	55	55.4
	α	-978	1000	2.96	1.48	21.5	20.5	20.4	19.9	17.9	-132	-134
	⁹⁵ Zr	-87.1	2.96	1000	348	349	308	306	300	264	216	220
	⁹⁵ Zr	-102	1.48	348	1000	453	431	429	421	370	300	307
	⁶⁵ Zn	-200	21.5	349	453	1000	449	447	438	385	323	330
	¹⁴⁰ La	-115	20.5	308	431	449	1000	446	437	384	304	311
	¹⁴⁰ La	-115	20.4	306	429	447	446	1000	435	382	302	309
	¹⁴⁰ La	-112	19.9	300	421	438	437	435	1000	374	296	303
	¹⁴⁰ La	-99.2	17.9	264	370	385	384	382	374	1000	260	266
	⁶⁰ Co	55	-132	216	300	323	304	302	296	260	1000	313
	⁶⁰ Co	55.4	-134	220	307	330	311	309	303	266	313	1000

		Correlações dos dados de 2010 separados													
		a	α	⁹⁵ Zr	⁹⁵ Zr	⁶⁵ Zn	^{69m} Zn	¹⁴⁰ La	¹⁴⁰ La	¹⁴⁰ La	¹⁴⁰ La	⁴⁶ Sc	⁴⁶ Sc	⁶⁰ Co	⁶⁰ Co
2010	a	1000	-930	-54.7	-54.9	-63.5	-113	-65	-64.3	-59,1	-42,9	-125	-123	-19,9	-22,3
	α	-930	1000	-7.59	-7.02	-4.32	42.3	3.27	2.99	3,32	2,06	59,1	59,2	-39,5	-43,9
	⁹⁵ Zr	-54.7	-7.59	1000	318	364	139	349	346	315	231	254	240	291	325
	⁹⁵ Zr	-54.9	-7.02	318	1000	365	139	350	348	316	232	254	240	292	326
	⁶⁵ Zn	-63.5	-4.32	364	365	1000	160	404	401	365	267	293	277	337	376
	^{69m} Zn	-113	42.3	139	139	160	1000	152	151	137	101	123	117	127	142
	¹⁴⁰ La	-65	3.27	349	350	404	152	1000	385	350	257	281	265	323	360
	¹⁴⁰ La	-64.3	2.99	346	348	401	151	385	1000	347	255	279	264	321	357
	¹⁴⁰ La	-59.1	3.32	315	316	365	137	350	347	1000	232	254	239	291	324
	¹⁴⁰ La	-42.9	2.06	231	232	267	101	257	255	232	1000	186	176	214	238
	⁴⁶ Sc	-125	59.1	254	254	293	123	281	279	254	186	1000	228	233	259
	⁴⁶ Sc	-123	59.2	240	240	277	117	265	264	239	176	228	1000	220	245
	⁶⁰ Co	-19.9	-39.5	291	292	337	127	323	321	291	214	233	220	1000	477
	⁶⁰ Co	-22.3	-43.9	325	326	376	142	360	357	324	238	259	245	477	1000

Apêndice G

Derivadas parciais para a montagem da matriz V_y . Para diminuir a quantidade de índices, abreviou-se as notações das grandezas:

$$\begin{aligned}
 E_i &= (\overline{E_{r,i}}), \\
 (A_i)_{Cd} &= (A_{sp,i})_{Cd}, \\
 (A_i) &= (A_{sp,i}), \\
 (A_{Au})_{Cd} &= (A_{sp,Au})_{Cd}, \\
 (A_{Au}) &= (A_{sp,Au}), \\
 k_{0i} &= k_{0,Au}(i), \\
 \varepsilon_i &= \varepsilon_{p,i}, \\
 \varepsilon_{Au} &= \varepsilon_{p,Au}, \\
 F_i &= F_{Cd,i}, \\
 F_{Au} &= F_{Cd,Au}, \\
 G_{ei} &= G_{ep,i}, \\
 G_{ti} &= G_{th,i}, \\
 G_{eAu} &= G_{ep,Au}, \\
 G_{tAu} &= G_{th,Au}.
 \end{aligned}$$

Covariâncias entre os elementos de Y^{sup} do mesmo isótopo:

$$\begin{aligned}
 V_y(Y_i^{sup}, Y_j^{sup}) &= \left(\frac{\partial Y_i^{sup}}{\partial Q_{0,i}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{sup}}{\partial Q_{0,j}} \right) \sigma_{Q_{0,i}}^2 + \\
 &+ \left(\frac{\partial Y_i^{sup}}{\partial F_i} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{sup}}{\partial F_j} \right) \sigma_{F_i}^2 + \left(\frac{\partial Y_i^{sup}}{\partial G_{ei}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{sup}}{\partial G_{ej}} \right) \sigma_{G_{ei}}^2 + \\
 &+ \left(\frac{\partial Y_i^{sup}}{\partial \varepsilon_i} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{sup}}{\partial \varepsilon_j} \right) cov(\varepsilon_i, \varepsilon_j),
 \end{aligned}$$

Se i e j são índices de transições gama do mesmo isótopo, o resultado é:

$$V_y(Y_i^{sup}, Y_j^{sup}) = \frac{\sigma_{Q_{0,i}}^2}{Q_{0,i}^2} + \frac{\sigma_{F_i}^2}{F_i^2} + \frac{\sigma_{G_{ei}}^2}{G_{ei}^2} + \frac{cov(\varepsilon_i, \varepsilon_j)}{\varepsilon_i \cdot \varepsilon_j}.$$

Caso contrário:

$$V_y(Y_i^{sup}, Y_j^{sup}) = 0$$

Covariâncias entre os elementos de Y^{sup} e os elementos de Y^{inf} da mesma transição gama:

$$V_y(Y_i^{sup}, Y_j^{inf}) = \left(\frac{\partial Y_i^{sup}}{\partial (A_i)_{Cd}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial (A_j)_{Cd}} \right) \sigma_{(A_i)_{Cd}}^2 + \\ + \left(\frac{\partial Y_i^{sup}}{\partial F_i} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial F_j} \right) \sigma_{F_i}^2 + \left(\frac{\partial Y_i^{sup}}{\partial \epsilon_i} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial \epsilon_j} \right) \sigma_{\epsilon_i}^2$$

Cujo resultado é:

$$V_y(Y_i^{sup}, Y_j^{inf}) = -\frac{\sigma_{(A_i)_{Cd}}^2}{(A_i)_{Cd} \cdot (A_i \cdot F_i - (A_i)_{Cd})} + \\ + \frac{\sigma_{F_i}^2}{F_i^2 \cdot (A_i \cdot F_i - (A_i)_{Cd})} + \frac{\sigma_{\epsilon_i}^2}{\epsilon_i^2}.$$

Covariâncias entre os elementos de Y^{sup} e os elementos de Y^{inf} do mesmo isótopo, mas de transições gama diferentes:

$$V_y(Y_i^{sup}, Y_j^{inf}) = \left(\frac{\partial Y_i^{sup}}{\partial F_i} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial F_j} \right) \sigma_{F_i}^2 + \left(\frac{\partial Y_i^{sup}}{\partial \epsilon_i} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial \epsilon_j} \right) cov(\epsilon_i, \epsilon_j)$$

Cujo resultado é:

$$V_y(Y_i^{sup}, Y_j^{inf}) = \frac{\sigma_{F_j}^2}{F_j^2 \cdot (A_j \cdot F_j - (A_j)_{Cd})} + \frac{cov(\epsilon_i, \epsilon_j)}{\epsilon_i \cdot \epsilon_j}.$$

Covariâncias entre os elementos de Y^{inf} do mesmo isótopo:

$$\begin{aligned}
 V_y(Y_i^{inf}, Y_j^{inf}) = & \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial (A_{Au})_{Cd}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial (A_{Au})_{Cd}} \right) \sigma_{(A_{Au})_{Cd}}^2 + \\
 & + \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial A_{Au}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial A_{Au}} \right) \sigma_{A_{Au}}^2 + \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial F_{Au}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial F_{Au}} \right) \sigma_{F_{Au}}^2 + \\
 & + \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial G_{tAu}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial G_{tAu}} \right) \sigma_{G_{tAu}}^2 + \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial \varepsilon_{Au}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial \varepsilon_{Au}} \right) \sigma_{\varepsilon_{Au}}^2 + \\
 & + \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial G_{ti}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial G_{ti}} \right) \sigma_{G_{ti}}^2 + \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial F_i} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial F_j} \right) \sigma_{F_i}^2 + \\
 & + \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial \varepsilon_i} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial \varepsilon_j} \right) cov(\epsilon_i, \epsilon_j),
 \end{aligned}$$

Cujo resultado é:

$$\begin{aligned}
 V_y(Y_i^{inf}, Y_j^{inf}) = & \frac{\sigma_{(A_{Au})_{Cd}}^2}{(A_{Au} \cdot F_{Au} - (A_{Au})_{Cd})^2} + \frac{\sigma_{A_{Au}}^2}{(A_{Au} - \frac{(A_{Au})_{Cd}}{F_{Au}})^2} + \\
 & + \frac{(A_{Au})_{Cd} \cdot \sigma_{F_{Au}}^2}{(A_{Au} \cdot F_{Au}^2 - (A_{Au})_{Cd} \cdot F_{Au})^2} + \frac{\sigma_{G_{tAu}}^2}{G_{tAu}^2} + \frac{\sigma_{\varepsilon_{Au}}^2}{\varepsilon_{Au}^2} + \frac{\sigma_{G_{ti}}^2}{G_{ti}^2} + \\
 & + \frac{(A_i)_{Cd} \cdot (A_j)_{Cd} \cdot \sigma_{F_i}^2}{F_i^2(A_i \cdot F_i - (A_i)_{Cd})(A_j \cdot F_i - (A_j)_{Cd})} + \\
 & + \frac{cov(\epsilon_i, \epsilon_j)}{\epsilon_i \cdot \epsilon_j},
 \end{aligned}$$

Covariâncias entre os elementos de Y^{inf} de isótopos diferentes:

$$\begin{aligned}
 V_y(Y_i^{inf}, Y_j^{inf}) = & \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial (A_{Au})_{Cd}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial (A_{Au})_{Cd}} \right) \sigma_{(A_{Au})_{Cd}}^2 + \\
 & + \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial A_{Au}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial A_{Au}} \right) \sigma_{A_{Au}}^2 + \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial F_{Au}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial F_{Au}} \right) \sigma_{F_{Au}}^2 + \\
 & + \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial G_{tAu}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial G_{tAu}} \right) \sigma_{G_{tAu}}^2 + \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial \varepsilon_{Au}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial \varepsilon_{Au}} \right) \sigma_{\varepsilon_{Au}}^2 + \\
 & + \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial \varepsilon_i} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial \varepsilon_j} \right) cov(\epsilon_i, \epsilon_j) + \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial \varepsilon_i} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial \varepsilon_{Au}} \right) cov(\epsilon_i, \epsilon_{Au}) + \\
 & + \left(\frac{\partial Y_i^{inf}}{\partial \varepsilon_{Au}} \right) \left(\frac{\partial Y_j^{inf}}{\partial \varepsilon_j} \right) cov(\epsilon_{Au}, \epsilon_j),
 \end{aligned}$$

Cujo resultado é:

$$\begin{aligned}
 V_y(Y_i^{inf}, Y_j^{inf}) = & \frac{\sigma_{(A_{Au})_{Cd}}^2}{(A_{Au} \cdot F_{Au} - (A_{Au})_{Cd})^2} + \frac{\sigma_{A_{Au}}^2}{(A_{Au} - \frac{(A_{Au})_{Cd}}{F_{Au}})^2} + \\
 & + \frac{(A_{Au})_{Cd} \cdot \sigma_{F_{Au}}^2}{(A_{Au} \cdot F_{Au}^2 - (A_{Au})_{Cd} \cdot F_{Au})^2} + \frac{\sigma_{G_{tAu}}^2}{G_{tAu}^2} + \frac{\sigma_{\varepsilon_{Au}}^2}{\varepsilon_{Au}^2} + \\
 & + \frac{cov(\epsilon_i, \epsilon_j)}{\epsilon_i \cdot \epsilon_j} + \frac{cov(\epsilon_i, \epsilon_{Au})}{\epsilon_i \cdot \epsilon_{Au}} + \frac{cov(\epsilon_{Au}, \epsilon_j)}{\epsilon_{Au} \cdot \epsilon_j}.
 \end{aligned}$$

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] GUINN, V. P., HOSTE, J., "Neutron Activation Analysis," *Elem. Anal. Biol. Mater.*, p. 382, 1980.
- [2] GUINN, V. P., "Nuclear activation analysis; 45 years after Geroge Hevesy's discovery," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 59, no. 2, pp. 309–314, 1980.
- [3] L'ANNUNZIATA, M. F., *Radioactivity: introduction and history*. Elsevier, 2007.
- [4] ROSSBACH, M., STOEPLER, M., BYRNE, A. R., "Prompt and delayed NAA techniques for the characterization of specimen bank materials," *Sci. Total Environ.*, vol. 139, no. 140, p. 411/419, 1993.
- [5] BEREZNAI, T., "Methods, problems and trends of standardization in multielement reactor neutron activation analysis," *Fresenius' Zeitschrift fur Anal. Chemie*, vol. 302, no. 5, pp. 353–363, 1980.
- [6] KUBEŠOVÁ, M., KUČERA, J., " k_0 standardization in neutron activation analysis at LVR-15 reactor in Ř e ž," Czech Technical University in Prague, 2012.
- [7] KAFALA, S. I., MACMAHON, T. D., "Comparison of neutron activation analysis methods," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 271, no. 2, pp. 507–516, Feb. 2007.
- [8] FRONTASYEVA, M. V., "Neutron activation analysis in the life sciences," *Phys. Part. Nucl.*, vol. 42, no. 2, pp. 332–378, Mar. 2011.
- [9] DIAS, M. S., CARDOSO, V., KOSKINAS, M. F., YAMAZAKI, I. M., "Determination of the neutron spectrum shape parameter α in k_0 NAA methodology using covariance analysis," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 68, no. 4–5, pp. 592–595, Apr. 2010.
- [10] DUNG, H. M., HIEN, P. D., "The application and development of k_0 -standardization method of neutron activation analysis at Dalat research reactor," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 257, no. 3, pp. 643–647, Sep. 2003.
- [11] DE CORTE, F., "The k_0 -Standardization Method: A move to the optimization of neutron activation analysis," Rijksuniversiteit Gent, 1987.
- [12] SMODIŠ, B., BUČAR, T., "Overall measurement uncertainty of k_0 -based neutron activation analysis," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 269, no. 2, pp.

311–316, Aug. 2006.

- [13] CRARY, M. A., MANN, G. D. C., GROHER, M. E., “Initial psychometric assessment of a functional oral intake scale for dysphagia in stroke patients,” *Arch. Phys. Med. Rehabil.*, vol. 86, no. 8, pp. 1516–20, Aug. 2005.
- [14] BIRGÜL, O., DIKŠIĆ, M., YAFFE, L., “A comparison of the statistical treatment of results using concentrations of elements determined by neutron activation and X-ray fluorescence analysis methods,” *J. Radioanal. Chem.*, vol. 55, no. 1, pp. 101–109, Mar. 1980.
- [15] BENEDIK, L., REPINC, U., “Evaluation of measurement uncertainty components associated with results of radiochemical neutron activation analysis for determination of uranium traces,” *Accredit. Qual. Assur.*, vol. 16, no. 12, pp. 637–642, Dec. 2011.
- [16] ROBOUCH, P., ARANA, G., EGUSKIZA, M., POMMÉ, S., ETXEBARRIA, N., “Uncertainty Budget for k_0 -NAA,” *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 245, no. 1, pp. 195–197, 2000.
- [17] DIAS, M. S., CARDOSO, V., KOSKINAS, M. F., YAMAZAKI, I. M., SEMMLER, R., MORALLES, M., ZAHN, G. S., GENEZINI, F. A., DE MENEZES, M. O., FIGUEIREDO, A. M. G., “Measurements of k_0 and Q_0 values for $^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$ and $^{68}\text{Zn}(n,\gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$ reactions with covariance analysis,” *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 69, no. 7, pp. 960–964, Jul. 2011.
- [18] CARDOSO, V., “Estudo das covariâncias envolvidas no método k_0 de análise por ativação neutrônica,” Universidade de São Paulo, 2011.
- [19] MORALLES, M., “Método k_0 , um procedimento de ajuste linear nos parâmetros para o cálculo simultâneo de α e k_0 ,” Relatório interno do Centro de Reator de Pesquisas (CRPq), IPEN-CNEN, São Paulo, 2010.
- [20] HELENE, O., *Metodos dos Minimos Quadrados*. São Paulo: Editora Livraria da Física, 2006.
- [21] KRANE, K. S., HALLIDAY, D., *Introductory nuclear physics*, vol. 465. Wiley New York, 1988.
- [22] KNOLL, G. F., *Radiation detection and measurement*, 4th ed. Michigan: John Wiley & Sons, 2010.
- [23] TERREMOTO, L. A. A., “Disciplina TNR5764 - Fundamentos de Tecnologia Nuclear - Reatores,” 2004. [Online]. Available: <http://stoa.usp.br/turin/files/>

- 1/16586/TNR5764-AP.pdf. [Accessed: 15-Feb-2017].
- [24] DE CORTE, F., MOENS, L., SORDO-EL HAMMAMI, K., SIMONITS, A., HOSTE, J., "Modification and generalization of some methods to improve the accuracy of α -determination in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal neutron spectrum," *J. Radioanal. Chem.*, vol. 52, no. 2, pp. 305–317, Sep. 1979.
 - [25] YÜCEL, H., KARADAG, M., "Experimental determination of the α -shape factor in the $1/E^{1+\alpha}$ epithermal-isotopic neutron source-spectrum by dual monitor method," *Ann. Nucl. Energy*, vol. 31, no. 6, pp. 681–695, 2004.
 - [26] FERREIRA JÚNIOR, F. A., "Medida da secção de choque térmica e da integral de ressonância da reação $^{41}\text{K} (n,\gamma) ^{42}\text{K}$," 2008. [Online]. Available:
<https://www.google.com.br/url?sa=t&rct=j&q=&esrc=s&source=web&cd=1&cad=rja&uact=8&ved=0ahUKEwi35Jvp05DSAhVi2oMKHS70DyEQFggcMAA&url=http%3A%2F%2Fwww.teses.usp.br%2Fteses%2Fdisponiveis%2F43%2F43134%2Ftde-03112008-104617%2Fpublico%2FFelisbertoAlves.pdf&usg=A>. [Accessed: 14-Feb-2017].
 - [27] BECKURTS, K.-H., WIRTZ, K., *Neutron physics*. Springer Science & Business Media, 2013.
 - [28] BLATT, J. M., WEISSKOPF, V. F., *Theoretical nuclear physics*. Springer Science & Business Media, 2012.
 - [29] GLENDENNING, N., *Direct nuclear reactions*. Elsevier, 2012.
 - [30] GIBSON, W. M., "The physics of nuclear reactions," 1980.
 - [31] HØGDAHL, O. T., "Neutron absorption in pile neutron activation analysis," Michigan. Univ., Ann Arbor. Michigan Memorial-Phoenix Project, 1962.
 - [32] DE CORTE, F., BELLEMANS, F., NEVE, P., SIMONITS, A., "The use of a modified Westcott-formalism in the k_0 -standardization of NAA: The state of affairs," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 179, no. 1, pp. 93–103, 1994.
 - [33] HOLDEN, N. E., "Temperature Dependence of the Westcott g-factor for Neutron Reactions in Activation Analysis," *Pure Appl. Chem.*, vol. 71, no. 12, pp. 2309–2315, Jan. 1999.
 - [34] WESTCOTT, C. H., WALKER, W. H., ALEXANDER, T. K., "Effective cross sections and cadmium ratios for the neutron spectra of thermal reactors," *Second United Nations Int. Conf. Peac. Uses At. Energy*, no. 1, 1958.

- [35] HAMIDATOU, L., RAMDHANE, M., "Characterization of neutron spectrum at Es-Salam Research Reactor using Hogdahl convention and Westcott formalism for the k_0 -based neutron activation analysis," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 278, no. 3, pp. 627–630, 2008.
- [36] VAN SLUIJS, R., JAĆIMOVIĆ, R., KENNEDY, G., "A simplified method to replace the Westcott formalism in k_0 -NAA using non- $1/v$ nuclides," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 300, no. 2, pp. 539–545, 2014.
- [37] WESTCOTT, C. H., "Effective cross section values for well-moderated thermal reactor spectra," *AECL--1101-REV*, 1970. [Online]. Available: http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/41/057/41057250.pdf. [Accessed: 21-Feb-2017].
- [38] SCHMIDT, P. F., GLASCOCK, M. D., "Applications and Problems of Parametric Counting," *J. Radioanal. Chem.*, vol. 72, no. 1, pp. 231–244, 1982.
- [39] SIMONITS, A., DE CORTE, F., MOENS, L., HOSTE, J., "Status and recent developments in the k_0 -standardization method," *J. Radioanal. Chem.*, vol. 72, no. 1–2, pp. 209–230, 1982.
- [40] DE CORTE, F., SIMONITS, A., BELLEMANS, F., FREITAS, M. C., JOVANOVIĆ, S., SMODIŠ, B., ERDTMANN, G., PETRI, H., DE WISPELAERE, A., "Recent advances in the k_0 -standardization of neutron activation analysis: Extensions, applications, prospects," *J. Radioanal. Nucl. Chem. Artic.*, vol. 169, no. 1, pp. 125–158, 1993.
- [41] YAVAR, A., SARMANI, S., WOOD, A. K., ZAINAL, N. S., KHOO, K. S., "Development and implementation of Hogdahl convention and Westcott formalism for k_0 -INAA application at Malaysian Nuclear Agency reactor," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 291, no. 2, pp. 521–527, 2012.
- [42] HAMIDATOU, L., SLAMENE, H., AKHAL, T., ZOURANE, B., "Concepts, Instrumentation and Techniques of Neutron Activation Analysis," in *Imaging and Radioanalytical Techniques in Interdisciplinary Research - Fundamentals and Cutting Edge Applications*, InTech, 2013.
- [43] VERHEIJKE, M. L., "Relation between the Hogdahl convention and the modified Westcott formalism for (n, α) reactions with a pure $1/v_n$ cross-section behavior," *J. Radioanal. Nucl. Chem. Artic.*, vol. 183, no. 2, pp. 293–299, 1994.

- [44] BLAAUW, M., BODE, P., DE BRUIN, M., "An alternative convention describing the (n, α) -reaction rate suited for use in the k_0 -method of NAA," *J. Radioanal. Nucl. Chem. Artic.*, vol. 152, no. 2, pp. 435–445, 1991.
- [45] RYVES, T. B., "A new thermal neutron flux convention," *Metrologia*, vol. 5, no. 4, p. 119, 1969.
- [46] STOUGHTON, R. W., HALPERIN, J., "Effective Cutoff Energies for Boron, Cadmium, Gadolinium, and Samarium Filters," *Eff. Cutoff Energies Boron, Cadmium, Gadolinium, Samarium Filters*, vol. 15, no. 3, pp. 314–324, 1963.
- [47] HANCOCK, R., "Neutron Activation Analysis," in *Encyclopedia of Scientific Dating Methods*, Dordrecht: Springer Netherlands, 2013, pp. 1–2.
- [48] PINO, F., SAJO-CASTELLI, A. M., BARROS, H., VERMAERCKE, P., SNEYERS, L., SAJO BOHUS, L., MACKOWIAK DE ANTCZAK, M. M., ANTCZAK, A., " k_0 -INAA of Venezuelan ceramics and complete statistical analysis to establish their provenance," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 298, no. 2, pp. 1257–1272, Nov. 2013.
- [49] GLASCOCK, M. D., "Neutron Activation Analysis (NAA): Applications in Archaeology BT - Encyclopedia of Global Archaeology," C. Smith, Ed. New York, NY: Springer New York, 2014, pp. 5239–5247.
- [50] BALLA, M., KEOMLEY, G., ROSNER, G., "Neutron activation analysis for provenance studies of archaeological ceramics," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 141, no. 1, pp. 7–16, 190AD.
- [51] CILIBERTO, E., SPOTO, G., *Modern analytical methods in art and archaeology*. John Wiley & Sons Canada, 2000.
- [52] NETZEL, D. A., STANLEY, C. W., RATHBURN, D. W., "A neutron activation method for soil removal measurements: A comparison of the reflectance method and the neutron activation method," *J. Am. Oil Chem. Soc.*, vol. 41, no. 10, pp. 678–683, Oct. 1964.
- [53] KEHAYIAS, J. J., "Evaluation of new pharmaceuticals using in vivo neutron inelastic scattering and neutron activation analysis," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 244, no. 1, pp. 219–224, 2000.
- [54] DUTOV, A. G., KOMAR, V. A., SHIRYAEV, S. V., SMAKHTIN, L. A., "Neutron-activation analysis of the impurity composition of gallium arsenide based semiconductor structures," *Semiconductors*, vol. 31, no. 4, pp. 415–417, Apr. 1997.

- [55] JACÍMOVIĆ, R., LAZARU, A., MIHAJLOVI, D., ILI, R., "Determination of major and trace elements in some minerals by k_0 -instrumental neutron activation analysis," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 253, no. 3, pp. 427–434, 2002.
- [56] LAZARUS, C. L., LOGEMANN, J. A., PAULOSKI, B. R., COLANGELO, L. A., KAHRILAS, P. J., MITTAL, B. B., PIERCE, M., "Swallowing Disorders in Head and Neck Cancer Patients Treated With Radiotherapy and Adjuvant Chemotherapy," *Laryngoscope*, vol. 106, no. 9, pp. 1157–1166, Sep. 1996.
- [57] MADDOCK, R. S., MEINKE, W. W., *Activation Analysis; Nuclear Chemical Research; Radiochemical Separations*, 1st ed. Michigan: University of Michigan, 1959.
- [58] FRANCO, M. B., SABINO, C. de V. S., "Determinação dos Parmâmetros Nucleares α , f e Temperatura de Nêutrons no Reator Triga Mark I IPR R1," 2011.
- [59] KIM, J. I., "Monostandard activation analysis: evaluation of the method and its accuracy," *J. Radioanal. Chem.*, vol. 63, no. 1, pp. 121–144, 1981.
- [60] SIMONITS, A., DE CORTE, F., HOSTE, J., "Single Comparator Methods in Reactor Neutron Activation Analysis," *J. Radioanal. Chem.*, vol. 24, pp. 31–46, 1975.
- [61] GIRARDI, F., GUZZI, G., PAULY, J., "Reactor Neutron Activation Analysis by the Single Comparator Method.," *Anal. Chem.*, vol. 37, no. 9, pp. 1085–1092, Aug. 1965.
- [62] DE CORTE, F., SPEECKE, A., HOSTE, J., "Reactor neutron activation analysis by a triple comparator method," *J. Radioanal. Chem.*, vol. 3, no. 3–4, pp. 205–215, Sep. 1969.
- [63] DE CORTE, F., SIMONITS, A., *Vade Mecum for k_0 - Users*, 3rd ed. Geleen: DSM Research, 1994.
- [Online]. Available:
https://www.ipen.br/biblioteca/cd/inac/2002/ENAN/E02/E02_365.PDF.
 [Accessed: 12-Apr-2017].
- [64] DE CORTE, F., HAMMAMI, K. S.-E., MOENS, L., SIMONITS, A., WISPELAERE, A., HOSTE, J., "The accuracy and precision of the experimental α -determination in the $1/E1+\alpha$ epithermal reactor-neutron spectrum," *J. Radioanal. Chem.*, vol. 62, no. 1–2, pp. 209–255, Mar. 1981.

- [65] KODELI, I., TRKOV, A., "Validation of the IRDF-2002 dosimetry library," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 577, no. 3, pp. 664–681, Jul. 2007.
- [66] TSOULFANIDIS, N., *Measurement and detection of radiation*. CRC press, 2013.
- [67] DIAS, M. S., TAKEDA, M. N., KOSKINAS, M. F., "Cascade summing corrections for HPGe spectrometers by the Monte Carlo method," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 56, no. 1–2, pp. 105–109, 2002.
- [68] GONÇALVES, I. F., MARTINHO, E., SALGADO, J., "Monte Carlo calculation of epithermal neutron resonance self-shielding factors in foils of different materials," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 56, no. 6, pp. 945–951, 2002.
- [69] MARTINHO, E., GONÇALVES, I. F., SALGADO, J., "Universal curve of epithermal neutron resonance self-shielding factors in foils, wires and spheres," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 58, no. 3, pp. 371–375, 2003.
- [70] MARTINHO, E., SALGADO, J., GONÇALVES, I. F., "Universal curve of the thermal neutron self-shielding factor in foils, wires, spheres and cylinders," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 261, no. 3, pp. 637–643, 2004.
- [71] BLAAUW, M., "The confusing issue of the neutron capture cross-section to use in thermal neutron self-shielding computations," *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. A*, vol. 356, no. 2–3, pp. 403–407, 1995.
- [72] TAYLOR, J., *Introduction to error analysis, the study of uncertainties in physical measurements*, 2nd ed., vol. 1. Colorado, 1997.
- [73] KUBEŠOVÁ, M., KUČERA, J., "How to calculate uncertainties of neutron flux parameters and uncertainties of analysis results in k_0 -NAA?," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 293, no. 1, pp. 87–94, Jul. 2012.
- [74] KUČERA, J., BODE, P., STEPANEK, V., "The 1993 ISO Guide to the expression of uncertainty in measurement applied to NAA," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 245, no. 1, pp. 115–122, 2000.
- [75] YOUNES, N., ROBOUCH, P., "A Web tool for calculating k_0 -NAA uncertainties," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 257, no. 3, pp. 665–667, 2003.
- [76] KUBEŠOVÁ, M., KUČERA, J., "Comparison of Kayzero for Windows and k_0 -IAEA software packages for k_0 standardization in neutron activation analysis," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel.*

Spectrometers, Detect. Assoc. Equip., vol. 654, no. 1, pp. 206–212, Oct. 2011.

- [77] ROSSBACH, M., BLAAUW, M., BACCHI, M. A., LIN, X., “The k_0 -IAEA program,” *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 274, no. 3, pp. 657–662, 2007.
- [78] IAEA, “ k_0 -IAEA manual,” *IAEA-Vienna*, 2014. [Online]. Available: <http://www-naweb.iaea.org/napc/iachem/K0-IAEA.html>. [Accessed: 24-Apr-2017].
- [79] EUROPEAN COMPUTER MANUFACTURERS ASSOCIATION, “ECMA Standard on FORTRAN,” 1965. [Online]. Available: http://www.ecma-international.org/publications/files/ECMA-ST-WITHDRAWN/ECMA-9_1st_Edition_April_1965.pdf. [Accessed: 06-Jul-2017].
- [80] ORENGO, G., *Fortran 95: Curso básico*, 1st ed. Santa Maria-RS, 2016.
- [81] GNU, “GNU Fortran,” 2017. [Online]. Available: <https://gcc.gnu.org/fortran/>. [Accessed: 06-Jul-2017].
- [82] CYGWIN, “Cygwin Project,” 2017. [Online]. Available: <https://www.cygwin.com/>. [Accessed: 06-Jul-2017].
- [83] ECLIPSE COMMUNIT, “Eclipse,” 2017. [Online]. Available: <https://www.eclipse.org/org/>. [Accessed: 06-Jul-2017].
- [84] SCILAB ENTERPRISES, “Scilab,” 2017. [Online]. Available: <http://www.scilab.org/scilab/about>. [Accessed: 06-Jul-2017].
- [85] DIAS, M. S., “Programa Alpino V. 1 - Manual do Usuário.” Centro do Reator de Pesquisas, IPEN-CNEN, São Paulo, 2001.
- [86] BÉ, M. M., CHISTÉ, V., DULIEU, D., BROWNE, E., CHECHEV, V., KUZMENKO, N., HELMER, R., NICHOLSS, A., SCHONFIELD, E., DERSCH, R., Monographic BIPM-5-Table of Radionuclides. Volumes 1 e 2, 2004
- [87] IAEA – Calibration Certificate, Reference date: 1/01/1981
- [88] IUPAC, DE CORTE, F., KOLOTOV, V. P., “Compilation of k_0 and Related Data for NAA, versão 4,” *International Union of Pure and Applied Chemistry. Acces Electronic Database*, 2002. [Online]. Available: <http://old.iupac.org/projects/2001/2001-075-1-500.html>. [Accessed: 05-May-2017].