

INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR

ALESSANDRO MARIANO DOMINGUES

ANÁLISE POR ATIVAÇÃO NEUTRÔNICA INSTRUMENTAL PARA  
QUANTIFICAÇÃO DE FERRO EM FEIJÃO UTILIZANDO O REATOR ARGONAUTA

Rio de Janeiro

2019

ALESSANDRO MARIANO DOMINGUES

**ANÁLISE POR ATIVAÇÃO NEUTRÔNICA INSTRUMENTAL PARA  
QUANTIFICAÇÃO DE FERRO EM FEIJÃO UTILIZANDO O REATOR  
ARGONAUTA**

Dissertação de Mestrado apresentada ao Programa de Pós-graduação em Ciência e Tecnologia Nucleares do Instituto de Engenharia Nuclear como parte dos requisitos necessários para a obtenção do Grau de Mestre em Ciências e Tecnologia Nucleares.

Orientadora: D.Sc Maria de Lourdes Moreira

Co-orientador: D.Sc César Marquez Salgado

Rio de Janeiro

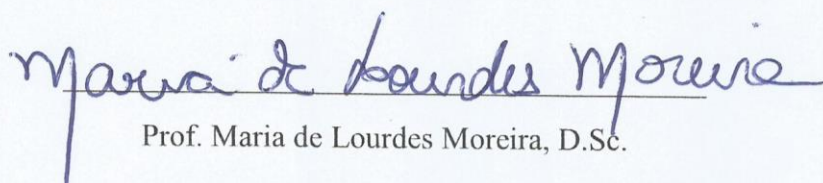
2019

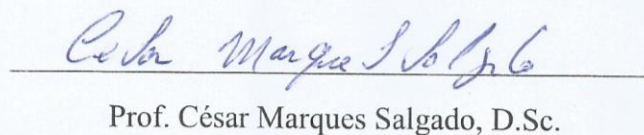
ANÁLISE POR ATIVAÇÃO NEUTRÔNICA INSTRUMENTAL PARA  
QUANTIFICAÇÃO DE FERRO EM FEIJÃO UTILIZANDO O REATOR ARGONAUTA

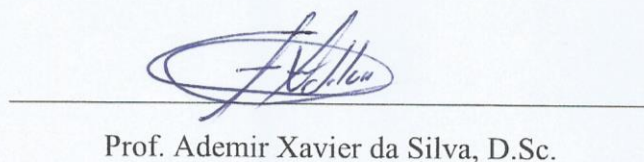
Alessandro Mariano Domingues

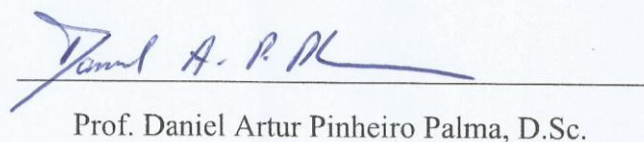
DISSERTAÇÃO SUBMETIDA AO CORPO DOCENTE DO PROGRAMA DE  
PÓSGRADUAÇÃO EM CIÊNCIA E TECNOLOGIA NUCLEARES DO INSTITUTO DE  
ENGENHARIA NUCLEAR COMO PARTE DOS REQUISITOS NECESSÁRIOS PARA A  
OBTENÇÃO DO GRAU DE MESTRE EM CIÊNCIA E TECNOLOGIA NUCLEARES.

Aprovada por:

  
Prof. Maria de Lourdes Moreira, D.Sc.

  
Prof. César Marques Salgado, D.Sc.

  
Prof. Ademir Xavier da Silva, D.Sc.

  
Prof. Daniel Artur Pinheiro Palma, D.Sc.

RIO DE JANEIRO, RJ – BRASIL

MAIO DE 2019

## FICHA CATALOGRÁFICA

DOMN Domingues, Alessandro Mariano

Análise por Ativação Neutrônica Instrumental para quantificação de ferro em feijão utilizando o Reator Argonauta / Alessandro Mariano Domingues. – Rio de Janeiro: CNEN/IEN, 2019.

xiv, 67 f. : il.; 31 cm

Orientadores: Maria de Lourdes Moreira

César Marques Salgado.

Dissertação (Mestrado em Ciência e Tecnologia Nucleares) – Instituto de Engenharia Nuclear, PPGIEN, 2019.

1. Análise por Ativação Neutrônica. 2. Reator Argonauta. 3. HPGe. 4. Detecção de radiação gama. 5. LabSOCS.

*Dedico esse trabalho aos meus pais,  
por todo incentivo e apoio.*

## AGRADECIMENTOS

À Deus, pela força que me concede para trilhar o caminho que escolhi.

Aos meus pais, Miguel Firme Domingues e Maria José Mariano Domingues, pelo amor e apoio.

À minha digníssima companheira Sara S. Fernandes Ramos.

À professora Maria de Lourdes, pela orientação prestada, confiança e liberdade de trabalho.

Ao professor Rogério Chaffin, pela amizade, apoio e por me apresentar de forma completa e inequívoca a Análise por Ativação Neutrônica.

À professora Luciana Carvalheira, pela amizade, por acompanhar meu trabalho e por todas as dicas importantíssimas. Uma parceria que desejo manter, sem dúvidas trará muitos frutos nos próximos trabalhos.

Aos meus amigos Carol e Jardel, pela força, treinamento jedi de mente e escrita, por toda contribuição nesse trabalho.

Ao professor Ademir Xavier, pela amizade, por acompanhar de perto todo o meu desenvolvimento acadêmico.

Ao professor Julio Cezar Suita, sendo responsável por uma enorme contribuição no meu desenvolvimento teórico e experimental em diversos tipos de detectores de radiação.

À dona Cláudia e ao Miguel, por toda ajuda e atenção. A contribuição de vocês vai além da secretaria, é o pilar de segurança para todos os alunos do PPGIEN.

À toda equipe da divisão de radioproteção do IEN.

À toda equipe do Laboratório de Análise Ambiental e Simulação Computacional LAASC/PEN/COPPE.

À toda equipe do Reator Argonauta que me acolheu e possibilitou o presente estudo.

*“A vida é uma gigantesca biblioteca com muitos livros que precisam ser abertos e lidos. Há livros bons e ruins. Os bons sempre deverão ser lidos. Os ruins, nem sempre conseguiremos evitar. A diferença, no entanto, estará na qualidade do leitor. De livros ruins, podemos reescrever boas histórias”*

*(Eugênio Cunha)*

Análise por Ativação Neutrônica Instrumental para quantificação de ferro em feijão utilizando o reator Argonauta

Alessandro Mariano Domingues

## RESUMO

A importância do ferro na nutrição humana salienta a necessidade de quantificar a concentração em alimentos. Esse estudo consiste em avaliar a possibilidade de quantificar a presença de ferro no feijão preto, utilizando o Reator Argonauta. Para a determinação quantitativa do ferro as análises foram divididas em quatro etapas, contagem prévia da amostra com o detector Germânio Hiperpuro (HPGe), simulação da eficiência absoluta de contagens, ativação neutrônica no canal de irradiação J9 do Reator Argonauta e contagem da amostra ativada utilizando o detector Germânio Hiperpuro. A eficiência absoluta do detector HPGe para o porta amostras utilizado em todas as análises foi obtida por simulações no software LabSOCS Canberra. A ativação neutrônica foi dividida em duas etapas, ativação de 2 horas e ativação por 12 horas com sessões de 2 horas por dia. A primeira etapa teve como objetivo a identificação de regiões interferentes, determinando a ausência de fotopicos na região de interesse do espectro gama, respectivamente nas proximidades das energias 1099 keV e 1291 keV, fotopicos do isótopo de ativação  $^{59}\text{Fe}$ . Assim como o espectro de ativação, o levantamento do espectro de radiação de fundo (*background*) não apresentou contagens nas áreas demarcadas para a análise de ferro. A segunda etapa, com 12 horas de ativação, forneceu dados em repetidas contagens para o cálculo de massa de Fe na amostra de feijão preto. Os cálculos de concentração de ferro no feijão preto pelo método comparativo com resultados que variam de 69 à 142 ppm com intervalos de erro de até 4 ppm, provam a possibilidade de aplicação da Análise por Ativação Neutrônica Instrumental utilizando o reator de pesquisas Argonauta IEN/CNEN.

PALAVRAS-CHAVE: Análise por Ativação Neutrônica, espectrometria gama, HPGe, Labsocs



Instrumental Neutron Activation Analysis in iron quantification in beans using the Argonauta reactor

Alessandro Mariano Domingues

### **ABSTRACT**

The importance of iron in human nutrition emphasizes the need to quantify its concentration in food. This study consists in evaluating the possibility of quantifying the presence of iron in black beans, using the Argonauta Reactor. For the quantitative determination of the iron the analyzes were divided in four phases, pre-counting of sample with the High-Purity Germanium detector (HPGe), simulation of the absolute efficiency from countings, neutronic activation in the J9 irradiation channel of the Argonauta Reactor, and counting the activated sample using the High-Purity Germanium detector. The absolute efficiency of the HPGe detector, for the sample port used in all analyzes, was obtained by simulations in the LabSOCS Canberra software. The neutronic activation was divided in two phases, 2-hour activation, and 12-hour activation with 2-hour sessions per day. The first phase had as objective the identification of interfering regions, determining the absence of photopics in the interest region of the gamma spectre, respectively in the proximity of 1099 keV and 1291 keV energies, photopics of the activation isotope  $^{59}\text{Fe}$ . Just like the activation spectre, the survey of the bottom body radiation, background, did not present countings in the delineated areas for the iron analysis. The second phase, with 12-hour activation, provided data in multiple countings for the mass calculation for iron in the Black bean sample. The concentration calculations for iron in black beans by the comparative method with results of 69 to 142 ppm and error intervals maximum of 4 ppm, create proof for the possibility of application of the Instrumental Neutron Activation Analysis, using the research reactor Argonauta IEN/CNEN.

**KEYWORDS:** Neutron Activation Analysis, gamma spectrometry, HPGe, Labsocs.

## LISTA DE ILUSTRAÇÕES

- FIGURA 1 – Feijão preto, imagem recortada do site da Embrapa. <https://www.embrapa.br/>
- FIGURA 2 - Mapa de emissão gama do  $^{59}\text{Fe}$
- FIGURA 3 - Espectro gama do  $^{59}\text{Fe}$
- FIGURA 4 - Núcleo do Reator Argonauta, manual do reator
- FIGURA 5 - Segmento interior opcional
- FIGURA 6 - Óxido de ferro tipo 3, Óxido de ferro III com 98% de pureza.
- FIGURA 7 - Balança de precisão com amostra de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$
- FIGURA 8 - Porta amostra simulado utilizando o software LabSOCS
- FIGURA 9 - Espectro de radiação de fundo para a amostra feijão preto
- FIGURA 10 - Espectro de radiação de fundo para a amostra  $\text{Fe}_2\text{O}_3$
- FIGURA 11 - Espectro gama da amostra feijão preto, irradiado por 2 horas
- FIGURA 12 - Espectro gama da amostra  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , irradiado por 2 horas
- FIGURA 13 - Gráfico de eficiência simulada com amostra na posição vertical
- FIGURA 14 - Gráfico de eficiência simulada com amostra na posição horizontal
- FIGURA 15 - Gráfico do intervalo de confiança para a quantidade de massa de ferro no feijão referente a dados para a energia 1099 keV do  $^{59}\text{Fe}$
- FIGURA 16 - Gráfico do intervalo de confiança para a quantidade de massa de ferro no feijão referente a dados para a energia 1291 keV do  $^{59}\text{Fe}$
- FIGURA 17 - Gráfico do intervalo de confiança para a concentração de ferro no feijão, referente a dados para a energia 1099 keV do  $^{59}\text{Fe}$
- FIGURA 18 - Gráfico do intervalo de confiança para a concentração de ferro no feijão, referente a dados para a energia 1291 keV do  $^{59}\text{Fe}$
- FIGURA 19 - Gráfico do intervalo de confiança para a quantidade de massa de ferro no feijão corrigida, referente a dados para a energia 1099 keV do  $^{59}\text{Fe}$
- FIGURA 20 - Gráfico do intervalo de confiança para a quantidade de massa de ferro no feijão corrigida, referente a dados para a energia 1291 keV do  $^{59}\text{Fe}$
- FIGURA 21 - Gráfico do intervalo de confiança para a concentração de ferro no feijão corrigida, referente a dados para a energia 1099 keV do  $^{59}\text{Fe}$

FIGURA 22 - Gráfico do intervalo de confiança para a concentração de ferro no feijão corrigida, referente a dados para a energia 1291 keV do  $^{59}\text{Fe}$

FIGURA 23 - Gráfico de comparação para concentração de ferro em feijão preto

## LISTA DE TABELAS

TABELA 1 – Barras de controle

TABELA 2 – Fontes utilizadas na calibração em energia do sistema de detecção

TABELA 3 – Área dos fotopicos para a espectrometria gama de radiação de fundo na amostra de feijão preto

TABELA 4 – Área dos fotopicos para a espectrometria gama de radiação de fundo na amostra  $\text{Fe}_2\text{O}_3$

TABELA 5 – Espectrometria de raios gama da amostra de feijão preto irradiado por 2 horas

TABELA 6 – Espectrometria de raios gama da amostra de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  irradiado por 2 horas

TABELA 7 – Área de contagem dos fotopicos no padrão  $\text{Fe}_2\text{O}_3$

TABELA 8 – Área de contagem dos fotopicos na amostra feijão preto

TABELA 9 – Eficiência simulada para a amostra na posição vertical com separador

TABELA 10 – Eficiência simulada para a amostra na posição horizontal sobreposta no detector.

TABELA 11 – Contagens por segundo para o  $\text{Fe}_2\text{O}_3$

TABELA 12 – Contagens por segundo para o feijão preto

TABELA 13 – Contagens por segundo com correção para o  $\text{Fe}_2\text{O}_3$

TABELA 14 – Contagens por segundo com correção para o feijão preto

TABELA 15 – Fator de decaimento do padrão  $\text{Fe}_2\text{O}_3$

TABELA 16 – Fator de decaimento da amostra feijão preto

TABELA 17 – Massa e concentração de ferro em 5,9086 g de feijão preto

TABELA 18 – Intervalos de confiança e média amostral em  $\mu\text{g}$  para os dados relacionados ao fotopico 1099 keV

TABELA 19 – Intervalos de confiança e média amostral em  $\mu\text{g}$  para os dados relacionados ao fotopico 1291 keV

TABELA 20 – Intervalos de confiança e média amostral em ppm para os dados relacionados ao fotopico 1099 keV

TABELA 21 – Intervalos de confiança e média amostral em ppm para os dados relacionados ao fotopico 1291 keV

TABELA 22 – Massa e concentração de ferro em 5,9086 g de feijão preto com correção de auto-absorção gama

TABELA 23 – Intervalos de confiança e média amostral em  $\mu\text{g}$  para os dados relacionados ao fotopico 1099 keV com correção

TABELA 24 – Intervalos de confiança e média amostral em  $\mu\text{g}$  para os dados relacionados ao fotopico 1291 keV com correção

TABELA 25 – Intervalos de confiança e média amostral em ppm para os dados relacionados ao fotopico 1099 keV com correção

TABELA 26 – Intervalos de confiança e média amostral em ppm para os dados relacionados ao fotopico 1291 keV com correção

## LISTA DE SIGLAS E ABREVIACOES

AAN	Anlise por Ativao Neutrnica
LAASC	Laboratrio de Anlise Ambiental e Simulao Computacional
LDRAN	Laboratrio de desenvolvimento de radioistopos obtidos por ativao neutrnica
IEN	Instituto de Engenharia Nuclear
CNEN	Comisso Nacional de Energia Nuclear
COPPE	Instituto Alberto Luiz Coimbra de Ps-Graduao e Pesquisa de Engenharia
PEN	Programa de Engenharia Nuclear
UFRJ	Universidade Federal do Rio de Janeiro
IEAE	International Atomic Energy Agency
(n, $\alpha$ )	reao de absoro de nutron e emisso de partcula alfa
(n, $\gamma$ )	reao de absoro de nutron e emisso de gama
(n,p)	reao de absoro de nutron e emisso de prton
HPGe	High Purity Germanium
LabSOCS	Laboratory Sourceless Calibration Software
CPS	Contagens por segundo
CPSC	Contagens por segundo corrigida
ppm	parte por milho
u.m.a	unidade de massa atmica

## LISTA DE SÍMBOLOS

$\alpha$	Partícula alfa
$\Phi$	Fluxo de nêutrons
$\Phi_t$	Fluxo de nêutrons térmicos
$\sigma$	Seção de choque microscópica
$m_{\text{Fe}}$	Massa de ferro
$m_{\text{cFe}}$	Massa de ferro calculada com correção de auto-absorção gama
$E_{\text{abs}}$	Eficiência absoluta
eV	Elétron-volt
keV	quiloelétron-volt
MeV	Megaelétron-volt
kg/ha	quilograma por hectares
b	barn
Z	Número atômico
t	Tempo
$t_{1/2}$	Tempo de meia-vida
$t_i$	Tempo de irradiação
$t_d$	Tempo de espera
p	Próton
n	Nêutron
$N_A$	Número de Avogadro

## SUMÁRIO

CAPÍTULO 1 - Introdução .....	15
1.1 Relevância do estudo realizado .....	15
1.2 Objetivo.....	16
1.3 Objetivos específicos.....	16
1.4 Revisão bibliográfica .....	16
CAPÍTULO 2 – Fundamentos teóricos .....	20
2.1 Leguminosas .....	20
2.1.1 Phaseolus Vulgaris L. ....	20
2.2 Interação dos nêutrons com o núcleo .....	20
2.3 Seção de choque nuclear .....	21
2.4 Análise por Ativação Neutrônica .....	22
2.5 Reações de interferências .....	25
2.5.1 Interferências espectrais .....	25
2.5.2 Interferências de primeira ordem .....	26
2.5.2 Interferências de segunda ordem .....	26
2.6 Espectrometria Gama .....	26
2.6.1 Detector semicondutor Germânio Hiperpuro .....	26
2.6.2 Blindagem .....	27
2.6.3 Decaimento e espectro radioativo dos núclídeos de interesse .....	28



2.7 Reator Argonauta .....	29
2.7.1 Principais características .....	30
2.7.2 Controle do Reator .....	31
2.7.3 Desligamento .....	31
2.7.4 Descrição do sistema hidráulico .....	32
2.7.5 Canal de irradiação .....	32
2.7.6 Instrumentação de controle .....	33
CAPÍTULO 3 – Materiais e métodos.....	34
3.1 Equipamentos e material empregado .....	34
3.2 Material de referência com certificado de pureza .....	34
3.3 Radiação de fundo e possíveis contaminantes .....	36
3.4 Eficiência de detecção .....	36
3.5 Calibração em energia do sistema de aquisição.....	37
3.6 Métodos utilizados .....	38
3.6.1 Preparo de amostras .....	38
3.6.2 Ativação de 2 horas .....	38
3.6.3 Ativação de 12 horas .....	39
3.7 Cálculo de desvio percentual para curva de eficiência .....	39
3.8 Incerteza do cálculo de massa por comparação .....	39
3.9 Incerteza do cálculo corrigido de massa por comparação .....	40

CAPÍTULO 4 – Resultados e Discussões .....	41
4.1 Espectros de radiação de fundo .....	41
4.2 Estudo de reações de interferência, ativações de 2 horas .....	43
4.3 Espectrometria de raios gama das amostras irradiadas por 12 horas .....	46
4.4 Eficiência simulada .....	48
4.5 Contagens por segundo .....	51
4.6 Contagens por segundo com correção de auto-absorção gama .....	52
4.7 Fator de decaimento do padrão, $D_p$ , e fator de decaimento da amostra, $D_a$ .....	53
4.8 Concentração de ferro no feijão .....	53
4.9 Concentração de ferro no feijão com correção de auto-absorção gama .....	57
CAPÍTULO 5 – CONCLUSÕES.....	64
CAPÍTULO 6 – PERSPECTIVAS FUTURAS.....	66
7 - REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	67
APÊNDICE A .....	71
APÊNDICE B .....	81

## CAPÍTULO 1

### Introdução

#### 1.1 Relevância do estudo realizado

A capacidade de determinar a concentração ou diferenciar os elementos químicos, é um tema em constante avanço e responsável pelo desenvolvimento em diversas áreas, direta ou indiretamente. Técnicas para esse fim variam de acordo com a precisão e confiabilidade da medida, a análise por ativação neutrônica está entre as principais por exibir resultados precisos e confiáveis [1].

A técnica analítica nuclear, análise por ativação neutrônica, pode ser empregada juntamente com padrões de elementos com alta pureza certificada ou utilizando o conhecimento de todas as características do fluxo de nêutrons térmicos na posição que a amostra recebe o feixe responsável pela ativação [2]. Os fatores limitantes da técnica estão relacionados com o tempo de exposição ao fluxo de nêutrons, intensidade do fluxo, eficiência e capacidade de diferenciação de picos do detector usado.

Dentre os detectores normalmente utilizados para a espectrometria gama na aplicação da técnica ativação neutrônica, o mais usado é o Germânio Hiperpuro (HPGe), por possuir elevada resolução, evitando resultados equivocados durante a etapa de diferenciação de picos do espectro energético. O presente trabalho foi realizado em colaboração com o Laboratório de Análises Ambientais e Simulação Computacional (LAASC) do PEN/COPPE/UFRJ, que possui um detector Germânio Hiperpuro de 30% de eficiência relativa e sua resolução é de 1,8 keV no pico de 1332 keV do  $^{60}\text{Co}$ , viabilizando assim a diferenciação dos picos em um espectro de ativação neutrônica.

A verificação da possibilidade de fazer uso do reator de pesquisa Argonauta IEN/CNEN para determinação de concentrações de elementos, possibilita uma nova linha de pesquisa no Instituto de Engenharia Nuclear. O apoio ao desenvolvimento de pesquisas utilizando a análise por ativação neutrônica, será de grande contribuição para a formação de alunos do programa de Pós Graduação PPGIEN. A parceria firmada para o desenvolvimento do presente trabalho entre o laboratório LAASC e o reator Argonauta, é uma oportunidade para alunos do Programa de Engenharia Nuclear COPPE/UFRJ ter contato com a técnica Análise por Ativação Neutrônica (AAN).

## 1.2 Objetivo

O presente trabalho tem como objetivo aplicar a técnica de análise por ativação neutrônica instrumental utilizando o reator Argonauta e verificar se é possível ativar e aferir a concentração de ferro em amostras de feijão preto. Utilizando uma amostra de referência de óxido de ferro III com pureza de 98%, amostra de feijão preto, balança de precisão e o detector Germânio Hiperpuro.

## 1.3 Objetivos específicos

- Apresentar por tabelas a verificação dos espectros de radiação de fundo e dos espectros de interferência espectral para nuclídeos de baixa meia vida.
- Determinar a eficiência de detecção através do software LabSOCS
- Representar a diferença de resultados para cálculos com correção de auto-absorção e sem correção.

## 1.3 Revisão bibliográfica

Rutherford afirmava que os nêutrons tinham massa igual à dos prótons, confirmando a teoria de massa semelhante entre nêutrons e prótons James Chadwick em 1932 aferiu a massa dos nêutrons consolidando assim sua descoberta. A primeira ativação nuclear aconteceu dois anos depois, em 1934, Irène Joliot-Curie e seu marido Frédéric Joliot bombardearam núcleos de átomos de alumínio, boro e magnésio com partículas alfa gerando os primeiros nuclídeos produzidos artificialmente. Em 1936 o pesquisador George de Hevesy juntamente com sua assistente Hilde Levi, irradiaram óxidos de terras raras com uma fonte de Ra(Ba), os tornando radioativos, através da experiência de ativação observaram que elementos presentes em uma amostra poderiam ser analisados quantitativamente e qualitativamente, marcando o início da técnica Análise por Ativação Neutrônica [3].

Para a aplicação da técnica Análise por Ativação Neutrônica é necessário um sistema de espectrometria de raios gama com alta resolução, normalmente faz-se o uso do detector Germânio Hiperpuro HPGe [4, 5], em alguns trabalhos encontramos o uso do detector Iodeto de Sódio dopado com Tálcio NaI(Tl) [6]. A escolha do detector é de acordo com a pureza do material a ser aferido pois fotopicos sobrepostos impossibilitará uma medida adequada, esse fenômeno é denominado interferência espectral [7, 8].

J. Datta e colaboradores utilizaram a Análise por Ativação Neutrônica para determinar a concentração de elementos em verduras. As amostras foram coletadas diretamente de campos agrícolas em Kolkata, Índia. O tratamento das amostras foi feito com água purificada

e destilada, passando por uma secagem à 65°C e moídas para virar um pó homogêneo. Após o tratamento, as amostras foram irradiadas com um fluxo de nêutrons de  $10^{12}$  neutrons.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> por um período de 3 horas, para isótopos de meia-vida baixa, e 24 horas, para isótopos de meia-vida longa, no reator CIRUS em BARC, Mumbai. As contagens foram feitas em um detector Germânio Hiperpuro HPGe com eficiência relativa de 45% e resolução de 1,9 keV na energia 1332 keV do <sup>60</sup>Co. O método utilizado para determinação de massa dos elementos foi o de comparação com um padrão. Os autores concluíram que a concentração de Cr achada estava de 2 à 3 vezes maior que a recomendada para consumo humano [9].

Bitewlign A. (et al) aplicaram a Análise por Ativação Neutrônica para determinar a existência de elementos que possam estar causando problemas de saúde na Ethiopia, a suspeita vem de vários casos de deficiências nos residentes. As amostras examinadas foram de água, solo, cultivos e carvão, coletadas do vilarejo de Awdarda no distrito de Chilga, norte de Gondar, área administrativa da Ethiopia. As ativações foram feitas no reator LVR-15 no Centro de pesquisa Rez, com fluxo de  $3,2 \times 10^{13}$  térmico,  $1,1 \times 10^{13}$  epitérmico e  $1,1 \times 10^{13}$  neutrons cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> rápido. Os resultados indicaram forte contaminação nos cereais de Awdarda por elementos terrígenos providos possivelmente de escavações e sedimentos de carvão, destacando-se alto nível de alumínio nos cereais [10].

Leonardo Alves da Costa apresentou uma dissertação que trabalha nas interferências primárias na Análise por Ativação Neutrônica para determinar concentração de alumínio, magnésio, manganês e sódio. Em sua dissertação é apontado o cálculo de concentração baseado na incidência de nêutrons térmicos com a reação  ${}^nA(n_t, \gamma) {}^{n+1}A$ , mas as interações de interferência  ${}^nA(n_t, \gamma) {}^nB$ , para alguns nuclídeos devem ser consideradas e participar do resultado final [7].

K. K. Sivasankara Pillay (et al) relata níveis no mercúrio em amostras, de peixe, tecidos cerebrais humano, plâncton/algas e sedimentos, analisadas por ativação neutrônica e espectrometria de raios gama utilizando Iodeto de Sódio dopado com Tálcio de 10x10 cm. As dificuldades relatadas são sobre perda de mercúrio em alguns processos de preparação de amostras como a liofilização. O fluxo de nêutrons que as amostras foram submetidas foi de  $5 \times 10^{12}$  neutrons cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> por duas horas no reator do Centro de Pesquisas Nucleares situado em Nova Iorque. A conclusão dos autores foi baseada no cuidado que deve ser tomado no preparo de amostras para determinação de mercúrio e que o erro relativo ao procedimento foi inferior a 5 parte por milhão (ppm) [6].

Edson Gonçalves Moreira [11] desenvolveu um estudo de composição química de materiais metálicos utilizando a técnica Análise por Ativação Neutrônica, foram determinados os teores dos elementos As, Co, Cr, Cu, Mn, Mo, Ni, V e W em amostras de aço e ferro e As, Br, Co, Cr, K, Eu, Fe, La, Mn, Mo, Na, Nd, U, Th, Sb, Sc, Sm, Tb, V, W, e Yb em amostras de silício e ferro-silício. A precisão da técnica foi verificada por comparação dos valores encontrados com os materiais de referência, apresentando uma discrepância de 10% para a maior parte dos elementos. As amostras foram irradiadas por um fluxo de  $10^{11}$  nêutron  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ , posicionadas por estação pneumática de numeração 4 do Reator Nuclear IEA-R1 do IPEN CNEN, os tempos de exposição das amostras foram variados de acordo com o nuclídeo alvo, 30 segundos para nuclídeos de meia-vida curta, 30 minutos ou 8 horas para nuclídeos de meia-vida longa. A espectrometria de raios gama foi feita por detector de Germânio Hiperpuro de eficiência relativa 25% e resolução de 1,8 keV no pico de 1332 keV do  $^{60}\text{Co}$ .

Para determinar a concentração de ferro em amostras a AAN não é aplicada apenas por intermédio de reatores, alguns trabalhos também são baseados em fontes de nêutrons isotópicas, como o caso do AKSOY e colaboradores [12] que fizeram uso de uma fonte de Amerício-Berílio  $^{241}\text{Am-Be}$  para obter nêutrons térmicos e ativar amostras de ferro e aço, a análise feita por Narkhede e Turel [13], utilizou-se de uma fonte de Califórnio  $^{252}\text{Cf}$ . Da mesma forma que os anteriores, Gangadharan e colaboradores [14] aplicaram a AAN de uma forma diferenciada, através de um gerador de nêutrons rápidos de 14 MeV e utilizando alvos de Al, Fe, K, P, Ni, Nb, Mn, Mo, Si e W para serem ativados e contabilizados.

Existem estudos aplicando a AAN por simulação computacional utilizando o Método de Monte Carlo, Tahir fez uma aplicação simulada utilizando o código MCNP para estudar a integridade de poços de petróleo em todas as suas estruturas e cimentação. Uma fonte de nêutrons rápidos de 14 MeV foi simulada e seus levantamentos sugerem que a técnica é viável pois pode ser feita a partir de valores absolutos dos picos de energia obtidos experimentalmente [15].

Teruya elaborou uma dissertação visando a aplicação da AAN para a determinação de elementos essenciais e tóxicos em subprodutos agroindustriais utilizados na alimentação animal. Os elementos analisados foram Ca, Cl, K, Mg, Na, Co, Cr, Cu, Fe, Mn, Mo, Se, V, Zn, As, Cd, Sc, Ta, Th e U, em amostras de subprodutos agroindustriais de origem animal e vegetal. A conclusão do autor é que as concentrações estão abaixo do limite considerado tóxico e os elementos essenciais estão no limite considerado normal [16].

Aguiar estudou a aplicação do método AAN para determinar elementos em unhas humanas, utilizando o reator nuclear IEA-R1m que possibilita fluxo de nêutrons de

$10^{12}$  neutrons  $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ . As aquisições gama foram feitas com um detector Germânio Hiperpuro. Para garantir a exatidão dos resultados, uma comparação foi realizada com materiais biológicos de referência certificados pelo National Institute of Standards and Technology, USA. Testes estatísticos de análise de variância, ANOVA, e o teste F a um nível de significância de 5% foram aplicados para aumentar a confiabilidade dos dados obtidos. Os elementos encontrados nas análises foram Br, Cl, Cr, Cu e Fe para unhas dos pés de crianças e Cr, Cl, Cu, K, Mg e Se para unhas de adultos [17].

Na conferência mundial de tecnologia, inovação e empreendedorismo, no ano de 2015 em São Petersburgo, Rússia, Shulyakova (et al), relatou novos desenvolvimentos e aplicações para a técnica AAN. Avanços no desenvolvimentos de fontes de nêutrons, limitações de emissores naturais com intensidade de  $10^7$  n/s, geradores de nêutrons de deutério-deutério, deutério-trítio, foram alguns pontos de crescimento tecnológico relatado. A proposta passada ao fim do relato é colimar a aplicação que existe apenas em laboratório com o cotidiano [18].

Ali I.A. (et al) utilizou a AAN e fluorescência de raios-x para determinar a concentração de Fe, Mg, e Zn em amostras de Mg-Zn ferrite. As amostras a serem irradiadas por um fluxo de nêutrons térmicos foram separadas em dois grupos, de longo e curto tempo de irradiação. Utilizando o cálculo direto sem a necessidade de usar um padrão de referência, a precisão foi comparada com a fluorescência de raios-x, ambas as técnicas apresentaram alta precisão [19].

## CAPÍTULO 2

### Fundamentos teóricos

#### 2.1 Leguminosas

Os principais feijoeiros cultivados no Brasil são das famílias de leguminosas *Phaseolus Vulgaris* e *Vigna Unguiculata*. Por ser um país de dimensões continentais e possuir uma área plantada de 61 milhões de hectares para diversas culturas, existe uma variedade expressiva superior a vinte tipos de feijões, ocupando 1.027,1 mil hectares de área plantada. O feijão com maior produtividade é o preto, baseando-se na produção da primeira safra de 2018, trabalhando com a estimativa de produção em kg/ha, o feijão preto consegue ultrapassar o somatório dos feijões de cores, com números impressionantes, 1.823 kg/ha de feijão preto contra 1.779 kg/ha dos demais feijões, excluindo o feijão Caupi que fica em terceiro com 416 kg/ha [20].

##### 2.1.1 *Phaseolus Vulgaris L.*

A leguminosa *Phaseolus Vulgaris L.* é conhecida por possuir grãos de feijão do tipo comum, dominante no cultivo nacional. Representada no presente trabalho com os feijões preto, é considerada uma espécie com notável concentração de ferro. Em um trabalho feito por Mechi, a concentração de ferro em feijão preto teve uma variação de  $108,3 \pm 5,6$  ppm à  $126,3 \pm 9,0$  ppm em um total de cinco resultados. Não foram encontrados estudos sobre a variação de concentração de Fe por localidade [21].



**Figura 1:** Feijão preto

#### 2.2 Interação dos nêutrons com o núcleo

Os nêutrons são classificados de acordo com sua energia cinética [22, 23]. São chamados de nêutrons térmicos os que possuem energia menor que 0,1 eV, epitérmicos ficam entre 0,1 eV e 1 eV, ressonantes com energias de 1 eV até 1 keV, intermediários entre 1 keV e 1 MeV, acima de 1 MeV estão os nêutrons rápidos. Pelo fato do nêutron ter carga elétrica



nula, não é afetado por interação eletroestática, portanto, a sua interação com o núcleo possui dependência das energias supracitadas e características do núcleo alvo.

As reações nucleares possíveis da interação do nêutron com o núcleo são resultados de colisão e reação interna do núcleo alvo [22], sendo elas:

- **Espalhamento Elástico Ressonante:** quando o nêutron possui energia cinética correspondente a diferença entre a energia de ligação do núcleo composto e o primeiro estado excitado do núcleo composto. O decaimento do núcleo composto excitado é por emissão de um nêutron com energia cinética igual ao do nêutron incidente.
- **Espalhamento Elástico Potencial:** o nêutron sofre interação com o campo potencial do núcleo e é espalhado, sem haver absorção pelo núcleo. O balanço de energia final é composto de parte da energia cinética com o núcleo e parte com o nêutron espalhado.
- **Espalhamento Inelástico:** o nêutron incidente é absorvido e forma um núcleo composto, ao decair o núcleo emite um nêutron e fótons. O balanço de energia final depende de quantos fótons emitidos, do recuo do núcleo e do nêutron emitido.
- **Captura radioativa ou captura gama:** o nêutron incidente é absorvido e forma um núcleo composto no estado excitado. O decaimento desse núcleo é através de emissão de fótons. Essa é a reação nuclear mais importante para a Análise por Ativação Neutrônica.
- **Ejeção de partículas carregadas:** o nêutron incidente é absorvido e forma um núcleo composto no estado excitado. O decaimento desse núcleo é através de emissão de partículas carregadas, alfa ou beta, podem também ser acompanhadas de fótons.
- **Fissão:** o nêutron incidente é absorvido e forma um núcleo composto no estado excitado, essa formação é de alta instabilidade, ocasionando assim o rompimento do núcleo em dois ou mais pedaços instáveis. Para o átomo de  $^{235}\text{U}$ , existe a ejeção de dois à quatro nêutrons por fissão.
- **Ejeção de nêutrons:** o nêutron incidente é absorvido e forma um núcleo composto no estado excitado. O decaimento desse núcleo é através de emissão de nêutrons, podendo ser acompanhado por fótons quando a energia do nêutron incidente é maior que a energia do nêutron emitido mais a energia cinética de recuo do núcleo.

### 2.3 Seção de choque nuclear

A descrição exemplificada feita por Lamarsh [23], elucida de forma simples o pensamento sobre seção de choque nuclear. Consideremos um alvo com área  $A$  e espessura  $X$

que contem  $N$  átomos por volume, para finalizar as condições de contorno iremos considerar que essa superfície é homogênea e plana. Um feixe de nêutrons unidirecional com intensidade invariável  $I$  colide com nossa placa imaginária perpendicularmente, o que observamos dessa colisão tem dependência direta com a intensidade  $I$  e a densidade atômica. Obviamente a espessura do material  $X$  e a área  $A$  irá contribuir, esse é o motivo de tornar invariável essas grandezas. Para finalizar o raciocínio, se  $I$ ,  $N$ ,  $A$  e  $X$  são constantes, a única coisa que pode modificar a interação é o tipo de átomo, em resumo, a seção de choque microscópica é a chance de interação do átomo com o feixe específico de nêutrons [22]. A unidade de seção de choque é barns, onde um barn equivale a  $10^{-24} \text{ cm}^2$  [24], em alguns livros é mencionada como seção de choque microscópica e representada pela letra  $\sigma$ .

$$\sigma \equiv \frac{\text{taxa de interação}}{INAX} \quad (1)$$

A Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA) [25] elaborou um aplicativo cujo nome é Isotope Browser, com download grátis disponível na Google Play, que possibilita a visualização da carta de nuclídeos, uma tabela periódica onde os elementos são gavetas contendo todos os isótopos. A seção de choque térmica e integral de seção de choque de ressonância para nêutrons epitérmicos e rápidos de todos os nuclídeos estão catalogados, além de informações adicionais separadas por isótopos radioativos e estáveis.

## 2.4 Análise por Ativação Neutrônica

Técnica criada na década de trinta do século passado [3], a Análise por Ativação Neutrônica consiste em bombardear o núcleo atômico do elemento em questão, ativando-o, e coletando as emissões de fótons para contabilizar proporcionalmente a quantidade do elemento analisado. A discriminação é feita pelo fato de cada elemento ter sua própria energia de emissão de fótons.

Existem tipos diferentes de análises através de ativação:

- Análise por Ativação Neutrônica;
- Análise por Ativação Neutrônica com raios gama prontos;
- Análise por Ativação com Nêutrons Rápidos;
- Análise por Ativação Neutrônica Instrumental, (utilizada no presente trabalho);
- Análise por ativação com nêutrons rápidos pulsados;
- Análise por Ativação com Nêutrons Rápidos/Térmicos Pulsados;

- Análise Radioquímica por Ativação com Nêutrons.

As inovações na técnica estão relacionadas a soluções de problemas de grandes empresas. Durante o simpósio da sociedade de petro-físicos e analistas de registros de poços, realizado em *Long Beach*, Califórnia, foi apresentado um protótipo de analisador que utiliza um gerador de nêutrons pulsados e detectores gama e de nêutrons. O protótipo utiliza a Análise por Ativação Neutrônica com nêutrons rápidos de 14 MeV, gerando resultados por taxa de termalização de nêutrons, espalhamento inelástico e produção de radiação gama pronto e gama atrasado, determinando o perfil do poço petrolífero perfurado [26].

O presente trabalho utiliza a Análise por Ativação Neutrônica, com raios gamas atrasados provenientes de elementos ativados, pela vertente do método comparativo. Consiste em irradiar duas amostras ao mesmo tempo, sob o mesmo fluxo de nêutrons. Uma amostra deve ser de um material de referência com certificado de pureza do elemento a ser quantificado, a outra deve ser o objeto de estudo. Esse tipo de análise só depende da pureza do material de referência e da capacidade de ativação do feixe de nêutrons usado. Por efeito de simplificação o material de referência com certificado de pureza será chamado de amostra padrão e será representado nas equações e resultados com a letra p. A equação 2 promove a comparação de contagens por segundo com correção de decaimento e as respectivas massas do elemento em questão, por proporção direta.

$$m_{ea} = m_{ep} \cdot \frac{CPS_a D_p}{CPS_p D_a} \quad (2)$$

$$D_i = e^{-\lambda t_a} \quad (3)$$

$$\lambda = \frac{\ln(2)}{t_{1/2}} \quad (4)$$

onde,

i= a, p

$m_{ep}$ = Massa do elemento na amostra,

$m_{ea}$ = Massa do elemento no padrão,

$CPS_a$ = Contagens por segundo na amostra,

$CPS_p$ = Contagens por segundo no padrão,

$D_p$ = Fator de decaimento do padrão,

$D_a$ = Fator de decaimento da amostra,

$t_d$ = Intervalo de tempo entre a saída do irradiador e início da espectrometria de raios gama (tempo de espera),

$\lambda$ = Constante de decaimento radioativo.

Utilizando os valores de eficiência absoluta simulada para cada amostra, a aplicação da Análise por Ativação Neutrônica com correção da auto-absorção gama da amostra foi feita por intermédio da equação 2.4.4.

$$m_{ea} = m_{ep} \cdot \frac{CPSC_a D_p}{CPSC_p D_a} \quad (5)$$

$$CPSC_i = \frac{N}{E_{abs} t_c} \quad (6)$$

onde,

i= a, p

$CPSC_i$ =  $CPS_i$  corrigida

N= Número de contagens

$E_{abs}$ = Eficiência absoluta

Quando não há um padrão para comparação, faz-se uso da equação 7, que exige o conhecimento preciso do fluxo de nêutrons térmicos.

$$w = \frac{\lambda M A}{\varphi a \sigma N_a P_e E_{abs} (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} (1 - e^{-\lambda t_c})} \quad (7)$$

onde,

w= massa (g),

M= Massa atômica do nuclídeo ativo (g),

A= Área de contagem da espectrometria de raios gama,

$a$ = Abundância isotópica do elemento alvo em seu estado natural,

$\sigma$ = Seção de choque microscópica de absorção gama para nêutrons térmicos,

$\phi$ = Fluxo de nêutrons térmicos ,

$t_{1/2}$ = Tempo de meia-vida do elemento ativo,

$N_a$ = Número de Avogadro,

$E_{abs}$ = Eficiência absoluta do detector para o fotopico selecionado,

$P_e$ = Probabilidade de emissão gama do elemento ativo,

$t_i$ = Tempo de irradiação,

$t_d$ = Intervalo de tempo entre a saída do irradiador e início da espectrometria de raios gama (tempo de espera),

$t_c$ = Tempo de contagem, espectrometria de raios gama,

## **2.5 Reações de interferências**

As reações de interferências são do tipo primeira ordem, segunda ordem e espectral. São relacionadas muitas das vezes a reações indesejáveis, passíveis de equívoco, que de alguma forma pode proporcionar resultados duvidosos e imprecisos. Auto-blindagem da amostra por elemento de alta seção de choque também é considerado como reação de interferência por Costa [7].

### **2.5.1 Interferências espectrais**

As interferências espectrais são encontradas durante a espectrometria gama. Quando o detector usado tem resolução incapaz de diferenciar fotopicos próximos, o resultado é um fotopico único com informações de dois ou mais elementos, impossibilitando análise correta. A solução usada para o problema é um estudo de todos os isótopos possíveis para a região do fotopico e aplicar um plano elaborado de aquisições com lacunas temporais determinadas, provando por decaimento quais núclídeos compõem o fotopico selecionado. Pelo risco eminente de interferências espectrais, a Análise por Ativação Neutrônica é normalmente feita com detectores de alta resolução, com poder de diferenciação de picos de até 1,8 keV utilizando como referência a energia 1332 keV [7].

### 2.5.2 Interferências de primeira ordem

O fluxo de nêutrons de um reator de pesquisa é composto por nêutrons térmicos, epitérmicos e rápidos. Quando esse fluxo irradia uma amostra, existe a possibilidade de dois tipos distintos de interação formar o mesmo tipo de nuclídeo. Exemplificando, a interação por nêutrons rápidos com  $^{56}\text{Fe}$  gera o  $^{56}\text{Mn}$ , reação  $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$ , por outro lado, a interação por nêutrons térmicos com o  $^{55}\text{Mn}$  gera o  $^{56}\text{Mn}$ , reação  $^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$ . Como podemos observar, prever todas as possíveis reações é fundamental [7] [11].

A seção de choque para as reações de interferências são em maioria menor que a de captura, além de serem dependentes do fluxo de nêutrons rápidos [27], que costuma ser baixo em reatores moderados, cujo objetivo é termalizar os nêutrons mantendo as fissões e a criticalidade.

### 2.5.3 Interferências de segunda ordem

Com ocorrência de menor probabilidade que as interferências primárias, a interferência de segunda ordem é uma modificação na quantidade do nuclídeo alvo de interesse, através de uma ativação seguida de um decaimento. Exemplificando, para a determinação de Cobalto ativamos o  $^{59}\text{Co}$  e obtemos o  $^{60}\text{Co}$ , reação  $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$ , então a quantidade de  $^{59}\text{Co}$  só modifica quando é transformada em  $^{60}\text{Co}$ . Com a interferência de segunda ordem, quando a amostra tem  $^{58}\text{Fe}$ , qualquer contaminante de ferro tem 0,28% desse isótopo, é possível acontecer a reação de ativação,  $^{58}\text{Fe}(n,\gamma)^{59}\text{Fe}$ , depois um decaimento beta,  $^{59}\text{Fe} \rightarrow \beta \rightarrow ^{59}\text{Co}$ , modificando assim a quantidade de Cobalto, esse novo  $^{59}\text{Co}$  ainda pode participar da ativação e virar  $^{60}\text{Co}$ , reação  $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$  [7][11].

## 2.6 Espectrometria Gama

### 2.6.1 Detector semicondutor Germânio Hiperpuro

A detecção de radiação ionizante é o resultado da interação de partículas em algum meio sensível a esta radiação. Existem vários materiais que podem ser utilizados para a detecção de radiação ionizante, sendo os detectores mais utilizados aqueles que utilizam regiões sensíveis a base de gás, os detectores cintiladores, semicondutores e os detectores termoluminescentes. Para o presente trabalho, foi utilizado um detector semicondutor, que funciona a partir do princípio da excitação de elétrons, que passam das bandas de valência para a banda de condução dando origem ao processo de detecção [28].

A principal vantagem do detector semicondutor está na energia média necessária para criar um par elétron-buraco que é cerca de 10 vezes menor do que a energia para criar um par elétron-íon, processo este utilizado nos detectores a gás, resultando numa maior resolução em energia. A energia média para criar um par elétron-buraco a 77 K, é de 3,76 eV para o silício e de 2,96 eV para o germânio. O grande número de pares criados proporciona duas vantagens aos detectores semicondutores sob o ponto de vista da resolução: diminui a flutuação estatística e a influência do ruído eletrônico, levando a uma melhor relação sinal-ruído [28].

O sistema de aquisição de espectrometria de raios gama:

1. Detector;
2. Fonte de alta tensão com limite de 5000 V;
3. Amplificador. Além de amplificar, também dá forma ao pulso (gaussiana, semi-gaussiana e etc.) de subida rápida vindo do pré-amplificador;
4. Analisador multicanal (MCA – *Multichannel Analyser*);
5. Blindagem preferivelmente construída de chumbo para o detector com uma cavidade adequada para acomodar as amostras;
6. Microcomputador para instalação do MCA e do *software* de gerenciamento para armazenamento dos dados.

### 2.6.2 Blindagem

Existem blindagens padrões para uso em espectrometria de raios gama de amostras ambientais de baixa atividade, a radiação de fundo do ambiente deve ser minimizada para não interferir na medida da amostra [29]. Essas blindagens são fabricadas com chumbo, mas outros materiais de número atômico menor também fazem parte da blindagem para absorver os raios X derivados da interação dos raios gamas com o chumbo, diminuindo a sua incidência no detector.

A espessura de chumbo utilizada na blindagem depende da atenuação desejada para um dado raio gama. Para aplicações ambientais, 10 cm de chumbo são suficientes para atenuar satisfatoriamente os raios gama com energia de até 2 MeV [30].

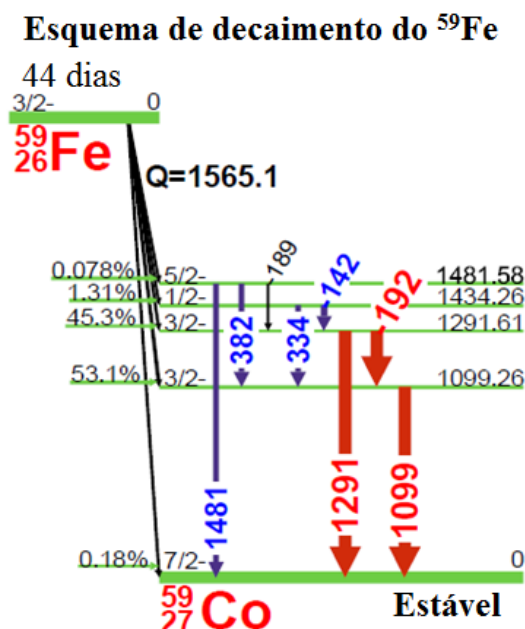
Atenção especial deve ser dada à blindagem do detector para garantir os cuidados supracitados. A blindagem ideal deve utilizar chumbo envelhecido, assim denominado, por ser isento de impurezas radioativas, principalmente aquelas provenientes de precipitações de testes nucleares.

Para blindagens com alto fator de atenuação, principalmente em relação às radiações do meio ambiente devem-se usar três camadas metálicas na sua composição. A primeira camada externa é constituída de chumbo (blocos ou peça fundida) com 5 cm a 10 cm de espessura, uma segunda camada de revestimento interno com espessura cerca de 5 mm de cádmio, e uma terceira de cobre ou alumínio, com cerca de 2 mm de espessura.

A função da camada de cobre é atenuar os raios X característicos emitidos pela fluorescência do chumbo, com energias entre 72 keV a 87 keV, devido às interações com as radiações externas. A camada de cádmio é para atenuar estas radiações do chumbo que, por sua vez, emitem raios X característicos com energias entre 22 keV e 27 keV. Esses raios X característicos são atenuados pelo cobre, que emitem raios X característicos de 8 keV, com muito baixa intensidade [31].

### 2.6.3 Decaimento e espectro radioativo do nuclídeo de interesse

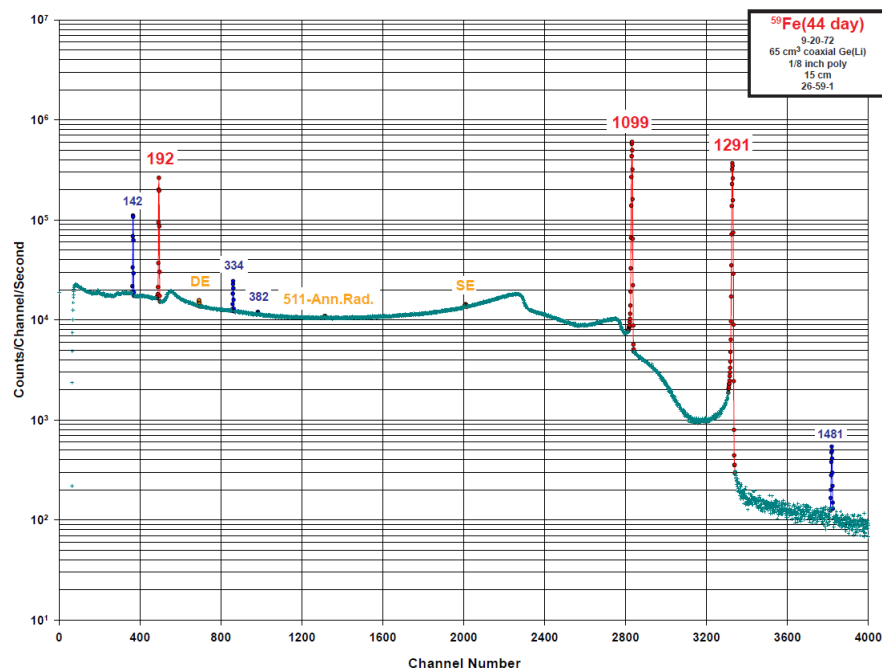
Após serem ativados, nuclídeos decaem espontaneamente emitindo fótons e partículas de energia conhecida. O  $^{59}\text{Fe}$  é o nuclídeo produzido com a ativação neutrônica do  $^{58}\text{Fe}$ . Como ilustrado na figura 2, decai para o  $^{59}\text{Co}$  e tem diferentes probabilidades de emissão gama, totalizando quatro energias distintas.



**Figura 2:** Mapa de emissão gama do  $^{59}\text{Fe}$

As setas em vermelho representadas na figura 2 indicam as energias de maior probabilidade de emissão gama, energia 1099 keV e 1291 keV, respectivamente 53,1% e 45,3% de chance de emissão. O espectro gama para essas energias está representado na figura 3.





**Figura 3:** Espectro gama do  $^{59}\text{Fe}$

## 2.7 Reator Argonauta

O projeto *Nuclear Assembly for University Training* do Argonne National Laboratory, USA, construiu um reator de estudos cujo nome é Argonaut. Em 1960 a Comissão Nacional de Energia Nuclear formalizou um contrato com a empresa CBV Ltda, para adaptar a planta original do Argonaut, iniciando assim, o projeto do Reator Argonauta. Com a construção a partir de 1964, a inauguração foi feita em 1965 com a presença do Sr. Presidente da República Marechal Castello Branco. O registro da primeira criticalidade do reator é de 20 de fevereiro de 1965.

O objetivo desse projeto era fortalecer a pesquisa em Física de Reatores, dar treinamento e promover estudos em ciências e tecnologias nucleares, pois a principal característica dessa planta é a segurança. A flexibilidade em sua geometria interna para disposição dos elementos combustíveis torna-se um atrativo para estudos de configurações no posicionamento de elementos combustíveis que chegue a criticalidade.

O máximo de potência alcançável para esse projeto é de 10kW, mas é licenciado para operar a 1kW para um período de 1 hora e 500W em operação contínua. Normalmente sendo utilizado com potência de 340W. Com essa baixa potência de operação o combustível não tem uma grande variação em sua temperatura, possibilitando um método eficaz de desligamento por retirada de moderador. O elemento combustível possui urânio enriquecido no isótopo

$^{235}\text{U}$ , fabricados em São Paulo, pelo Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares IPEN-CNEN.

### 2.7.1 Principais características

Potência licenciada:	1 kW até 1 hora e 500 W contínuo.
Potência usual:	até 340 W.
Tipo de combustível:	$\text{U}_3\text{O}_8$ , com urânio enriquecido a 19,91% em $^{235}\text{U}$ .
Massa crítica atual:	2.113,44 g de $^{235}\text{U}$ .
Massa operativa atual:	2.136,21 g de $^{235}\text{U}$ .
Carregamento atual:	4 elementos (NORMAL) com 17 placas ( $\cong 20,0 \text{ g } ^{235}\text{U}$ ); 2 elementos (EMX) com 11 placas ( $\cong 20,0 \text{ g } ^{235}\text{U}$ ) + 6 placas ( $\cong 10,0 \text{ g } ^{235}\text{U}$ ); 2 elementos (EGP) com 7 placas ( $\cong 10,0 \text{ g } ^{235}\text{U}$ ) + $\frac{1}{2}$ prisma de grafita.
Arranjo do núcleo	Dois cilindros de alumínio, colocados concentricamente, de modo a formar um anel cilíndrico: <ul style="list-style-type: none"> <li>• diâmetro interno do cilindro menor: 603,2 mm;</li> <li>• diâmetro interno do cilindro maior: 904,4 mm;</li> <li>• altura: 1165 mm</li> </ul>
Moderador	Água deionizada entre as placas, e cunhas de grafita entre os elementos combustíveis.
Refletor	Vertical: água (superior 234 mm e inferior 235 mm). Radial e Azimutal: grafita.
Blindagem Biológica	Blocos de concreto comum empilhados em torno do refletor. A blindagem do topo é constituída de um escudo de concreto revestido com chapa de aço, possuindo um tampão circular para permitir acesso ao núcleo.
Partida	Manual, até a potência programada

Criticalidade                      Devido a atuais complicações no sistema de controle fino de temperatura do moderador o reator encontra dificuldades em se manter ligado por mais de 2 horas.

### 2.7.2 Controle do Reator

O Reator Argonauta possui 6 barras, sendo 3 Barras de Segurança e 3 Barras de Controle (grosseira, aproximada e precisa), localizadas em canais existentes no refletor, no entorno do núcleo, com as seguintes características:

**Tabela 1:** Barras de controle

	Segurança (1)	Segurança (2)	Segurança (3)	Controle Aproximado	Controle Grosseiro	Controle Preciso
Material	Cádmio	Cádmio	Cádmio	Cádmio	Cádmio	Cádmio
Dimensões (mm)	178x178x 0,76	178x178x 0,76	178x178x 0,76	178x178x 0,76	178x178x 0,76	178x178x 0,76
Reatividade (% $\Delta$ k/k)	<0,001%	2,46%	<0,001%	<0,001%	1,64%	0,34%

As barras deslocam-se verticalmente, acionadas por motor elétrico e obtém-se, no caso das barras de controle, informação de suas posições através da mesa de controle. As barras de segurança não tem indicação de posição na mesa de controle, apenas a indicação “BARRA FORA” ou “BARRA DENTRO”. Quando desacopladas da embreagem magnética, caem por gravidade.

### 2.7.3 Desligamento

Automático:

- Baixo nível de água;
- Temperatura, efeito Doppler;
- Alto nível de radiação gama nos monitores de área;

Manual:

- Mesa de controle: 2 botões
- Poço do reator: 1 botão

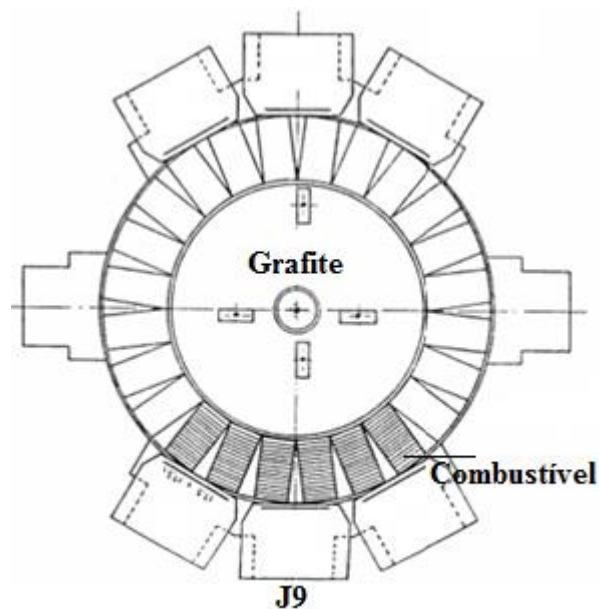
- Coluna térmica externa: 1 botão
- Topo do reator: 1 botão

#### 2.7.4 Descrição do sistema Hidráulico

O reator é equipado com Tanque, tubulação e válvula de dreno, sendo capaz de escoar toda a água do núcleo em 13 segundos, cessando assim a moderação e apagando o reator. O tanque de dreno está localizado em um poço em um nível inferior ao do núcleo, para ser possível escoar a água sem a necessidade de bombas. Ao voltar para o tanque a água é filtrada e deionizada.

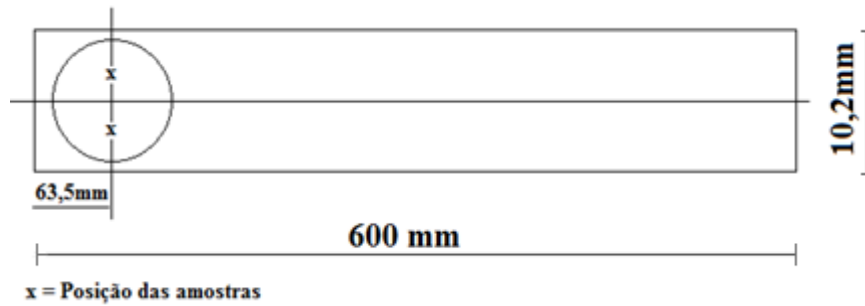
#### 2.7.5 Canal de Irradiação

O canal J9 é onde são realizados os experimentos no Reator Argonauta, ativação de radiotraçadores, neutronografia, determinação de seção de choque de elementos. Equipado com um filtro móvel de cádmio e um detector do tipo proporcional BF3. Com um fluxo de nêutrons térmicos da ordem de  $10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  na posição de irradiação de amostras. Nove canais existem em uma janela que permite inserir amostras muito próximas do arranjo de elementos combustíveis, o de melhor posicionamento e mais usado é o J9.



**Figura 4:** Núcleo do Reator Argonauta

A disposição dos elementos combustíveis está representada pela região hachurada. Com o auxílio de um bloco de grafite chamado de “Segmento interior opcional”, figura 5, amostras são acomodadas a uma distância fixa de 63,5 mm do núcleo.



**Figura 5:** Segmento interior opcional

### 2.7.6 Instrumentação de controle

Operando com detectores tipo BF3 e com amplificadores de pulsos, o controle do reator é feito em uma sala a parte por um modulo de controle. É equipado com monitor gama (LABGEAR) do tipo câmara de ionização, para indicar o nível de radiação gama no núcleo do reator. A temperatura do moderador também é monitorada, com 5 termopares do tipo K (CHROMEL/ALUMEL) distribuídas em alturas diferentes no núcleo do reator e no tanque de dreno. O sistema de segurança é baseado em desligar o reator por falta de moderação ou queda de barras de controle.

## CAPÍTULO 3

### Materiais e Métodos

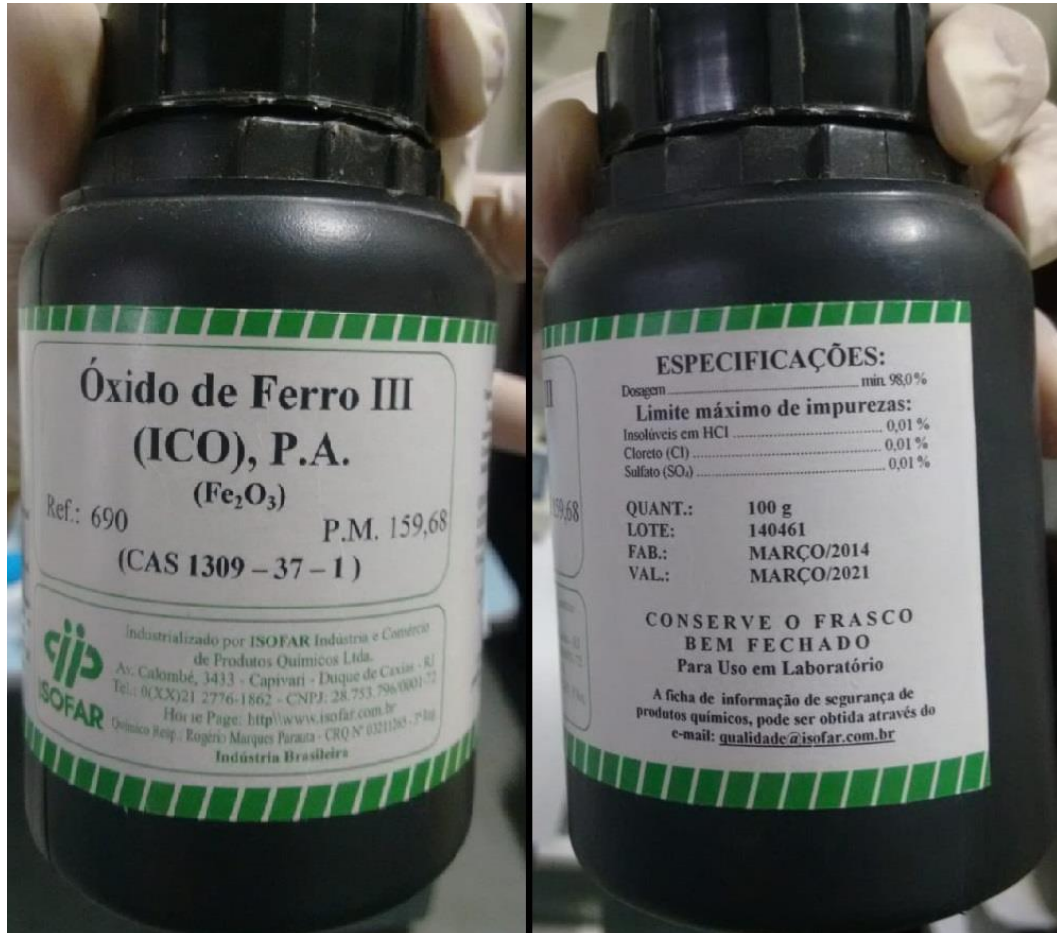
#### 3.1 Equipamentos e material empregado

- Equipamentos de proteção individual: Foram usadas luvas descartáveis, dosímetro digital, pinça, castelo de chumbo, etiquetas de indicação para presença de material radioativo, balde selado e etiquetado próprio para transporte de amostras.
- Porta amostra: Modelo padrão usado no Reator Argonauta, com tampa e envolvido com plástico pvc.
- Fontes de calibração: Foram usadas fontes de  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{22}\text{Na}$  e  $^{40}\text{K}$ .
- Amostra padrão de Fe:  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  com 98% de pureza certificado.
- Feijão: As amostra de feijão foi cedida pelo laboratório LAASC-COPPE-UFRJ.
- Suporte para amostras: Um suporte separador com graduação tipo gaveta foi usado para diminuir o tempo morto nas contagens de núclídeos com meia-vida baixa.
- Paquímetro de metal calibrado (0,02mm)
- Detector Germânio Hiperpuro Canberra com eficiência relativa ao  $\text{NaI(Tl)}(3''\times 3'')$  de 30%, resolução de 1,8 keV no pico 1332 keV do  $^{60}\text{Co}$ .
- Balança Gehaka com quatro casas decimais de precisão e tempo de pré aquecimento de 30 minutos.
- Seguimento interior opcional do canal J9, Reator Argonauta: Peça rotacional de encaixe com distância do núcleo de 63,5 mm, usinada para o desenvolvimento do presente trabalho.
- Microcomputador: Instalados todos os softwares referente a espectrometria de raios gama
- Software Genie 2000
- Software LabSOCS
- Detector de presença de radiação para determinação de dose, proteção radiológica: AD6150 Monitor Rm15359.
- Compactador manual de amostras
- Fichas de controle de processo

#### 3.2 Material de referência com certificado de pureza

O padrão de comparação para a determinação a concentração de ferro escolhido foi óxido de ferro III  $\text{F}_2\text{O}_3$ , disponibilizado pelo Laboratório de Desenvolvimento de

Radioisótopos Obtidos por Ativação Neutrônica (LDRAN) do Reator Argonauta. Todo o processo de preparo da amostra padrão foi acompanhado por profissionais da Comissão Nacional de Energia Nuclear.



**Figura 6:** Óxido de ferro tipo 3

Como indicado na figura 6, a pureza certificada é de 98,0%, com cada contaminante em concentração 0,01%, onde a lista de contaminantes, cloreto e sulfato, serão verificados quanto a possível contribuição para interferências de primeira ordem, segunda ordem ou espectrais.

A pesagem do padrão de Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> foi feita no mesmo dia de separação e compactação da fração a ser irradiada. Uma balança de precisão foi usada como mostra a figura 7.



**Figura 7:** Balança de precisão com amostra de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$

Dois padrões foram criados para possibilitar duas etapas distintas de irradiações sem interferência de resquício de elementos ativos, evitando assim, possível cálculo de acúmulo de atividade com um demorado levantamento radioativo.

### 3.3 Radiação de fundo e possíveis contaminantes

A radiação de fundo, chamada de *background* ou BG, é um dos elementos fundamentais para a confiabilidade da medida realizada. Todos os materiais e amostras usados passaram pelo processo de contagem no detector HPGe com o tempo de 8 horas (28800 segundos), uma contagem adicional de 8 horas foi feita para o porta amostra vazio após ativação neutrônica de 12 horas, provando não existir elementos contaminantes. Todos os materiais submetidos a espectrometria gama estão representados com seus respectivos valores de contagens em tabelas no Apêndice A do presente trabalho. As energias de interesse no espectro gama, 846 keV, 1099 keV, 1291 keV e 1810 keV, aparecem com contagem de área nula, fornecida pelo software Genie 2000 Canberra, indicando a ausência de contaminantes ou interferentes espectrais nas energias supracitadas.

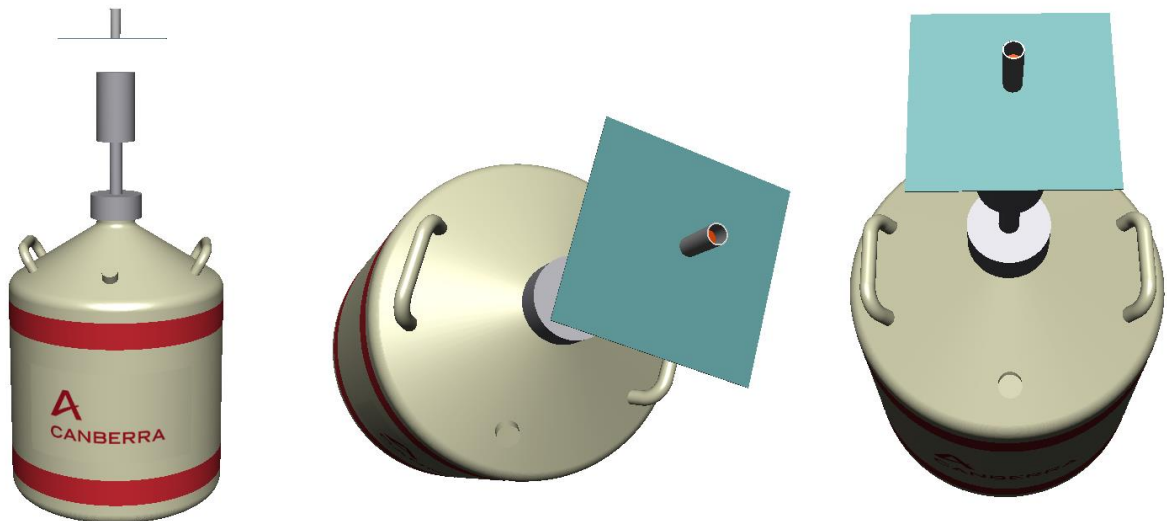
### 3.4 Eficiência de detecção

A eficiência de detecção absoluta do detector HPGe para as amostras foi obtida através de simulação com o software LabSOCS, validado através de comparação com padrões



do programa de intercomparação (PNI) do Instituto de Radioproteção e Dosimetria IRD-CNEN e simulação através do software MCNP do *Los Alamos National Laboratory* [32].

O porta amostra foi desenhado com precisão de 0,02 mm no software Labsocs, onde foi simulado com todas as características disponíveis. Para o caso do padrão de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , foi feita uma construção molecular da mostra, considerando agentes contaminantes e porcentagem de cada elemento separadamente. Outros dados fornecidos ao sistema de simulação foram massa e altura que atinge no interior do recipiente, gerando assim dados até da compactação. A figura 8 mostra a construção do padrão Óxido de ferro III em diferentes ângulos.



**Figura 8:** Porta amostra simulado

A amostra de feijão preto também foi simulada para evitar erros com auto-absorção gama por diferença de densidade com o padrão  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ . A previsão feita foi de uma discrepância considerável devido a diferença entre as duas matrizes.

### 3.5 Calibração em energia do sistema de aquisição

A calibração em energia foi realizada com o auxílio do programa Gamma Analysis do Genie 2000, responsável pelo controle e armazenamento dos dados adquiridos pelo multicanal DSA 1000, que faz um ajuste linear quando duas linhas de energia são definidas e um ajuste quadrático se três ou mais linhas de energia são definidas.

A calibração em energia do sistema foi feita utilizando fontes radioativas certificadas, totalizando um número de 5 pontos experimentais que correspondem aos picos energéticos

dos radionuclídeos dispostos na Tabela 2.

**Tabela 2:** Fontes utilizadas na calibração em energia do sistema de detecção.

Radionuclídeos	Energias (keV)
$^{137}\text{Cs}$	661,7
$^{60}\text{Co}$	1173,2 – 1332,5
$^{22}\text{Na}$	1274,5
$^{40}\text{K}$	1460,8

As fontes de calibração foram escolhidas de acordo com a faixa de energia de interesse. Para uma diferenciação de picos precisa, utilizando todo o potencial do detector, a calibração foi focalizada entre as energias 661,7 keV e 1460,8 keV. Deixando os picos referentes ao  $^{59}\text{Fe}$ , respectivamente 1099 keV e 1291 keV, bem definidos e sem desvios no espectro. Eliminando assim, a necessidade de confirmação do radionuclídeo por decaimento radioativo.

### 3.6 Métodos utilizados

#### 3.6.1 Preparo de amostras

A amostra de feijão foi doada pelo Laboratório de Análise Ambiental e Simulação Computacional PEN-COPPE-UFRJ, destinada ao Reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear IEN-CNEN, chegou em formato de pó e devidamente lacrada, ainda em equilíbrio secular. Foi feita a abertura e transferência para o recipiente padrão de irradiação. A transferência de recipiente obedece as práticas de controle de qualidade do reator Argonauta, onde todas as amostras passam por compactação e pesagem. Como a ativação neutrônica é um procedimento que cria isótopos radioativos, as amostras foram lacradas e envoltas com plástico pvc.

#### 3.6.2 Ativação de 2 horas

A primeira etapa de ativação foi concluída com as amostras,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  e feijão preto, irradiadas durante 2 horas com o reator crítico à 340W. O padrão de óxido de ferro III e a amostra de feijão preto foram irradiadas na operação de numeração 6118, de 02/10/2018, com

início às 09:20, horário que alcançou a criticalidade 09:50 e término 11:50 da manhã. Totalizando 2 horas de irradiação a um fluxo de nêutrons da ordem de  $10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ .

É importante comentar sobre o tempo de “rampa”, ao qual a nuvem de nêutrons do núcleo do reator torna-se mais densa culminando na criticalidade com o fluxo desejado. Esse tempo de espera não oferece influência sobre o resultado, o método comparativo independe do tempo que o reator demora para ficar crítico, importando apenas que as amostras sejam irradiadas juntas.

Uma tentativa de cálculo para determinação de  $^{56}\text{Fe}$  através da ativação por interferência seria possível com uma ativação simultânea de um padrão de Manganês, pois a possibilidade de um somatório de ativação do  $^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$  com interferência do  $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$  poderia ser quantificado. Pelo método usado não apresentar dados suficientes para determinar a contribuição de cada tipo de ativação, esse caminho foi descartado.

### 3.6.3 Ativação de 12 horas

As ativações de 12 horas foram divididas para serem feitas de 2 em 2 horas diariamente. O método foi possível de ser usado pelo fato da meia-vida do nuclídeo alvo ser de aproximadamente 44 dias, minimizando assim os erros relacionados ao decaimento radioativo. Fazendo uso dos dados obtidos na primeira etapa de ativação, para a determinação do  $^{59}\text{Fe}$  não foi encontrado um isótopo responsável por interferência de primeira, segunda ordem ou espectral. Liberando a amostra para ser colocada no detector. Porém, o critério de espera para o decaimento dos nuclídeos de meia-vida curta foi usado, com o objetivo de limpar o espectro e aproveitar possíveis fotopicos de outros metais existentes no feijão.

## 3.7 Cálculo de Desvio percentual para curva de eficiência

O cálculo do desvio percentual para a eficiência absoluta, entre a curva de ajuste e o resultado simulado é feito pelo software Genie 2000 e é apresentado na tabela de resultados de eficiência simulada. O desvio não excede a faixa de erro apresentado para cada energia, sendo assim, não contribui para resultados equivocados, seu cálculo obedece a equação 8:

$$Desvio = \left| \frac{E_{Simulada} - E_{Ajuste}}{E_{Simulada}} \right| \times 100 \quad (8)$$

## 3.8 Incerteza do cálculo de massa por comparação

Para o cálculo de massa por comparação, o erro associado foi feito a partir da Equação 9.

$$\delta m_{ea}^2 = \left( \frac{CPS_a D_p}{CPS_p D_a} \right)^2 \delta m_{ep}^2 + \left( \frac{m_{ep} D_p}{CPS_p D_a} \right)^2 \delta CPS_a^2 + \left( \frac{m_{ep} CPS_a D_p}{CPS_p^2 D_a} \right)^2 \delta CPS_p^2 \quad (9)$$

onde,

$\delta m_{ea}$  = Incerteza da massa de ferro calculada,

$\delta m_{ep}$  = Incerteza da massa de ferro padrão,

$\delta CPS_a$  = Incerteza da contagem por segundo da amostra,

$\delta CPS_p$  = Incerteza da contagem por segundo do padrão de ferro.

### 3.9 Incerteza do cálculo corrigido de massa por comparação

Para propagar o erro da massa corrigida calculada, a equação 9 foi usada e a CPS de cada amostra foi substituída pela CPSC e seu respectivo erro. A equação 10 descreve a propagação de erros para o parâmetro CPSC.

$$\delta CPSC^2 = \left( \frac{1}{t_c E_{abs}} \right)^2 \delta CPS^2 + \left( \frac{CPS}{t_c E_{abs}^2} \right)^2 \delta E_{abs}^2 \quad (10)$$

onde,

$\delta CPSC$  = Incerteza da contagem por segundo corrigida,

$\delta CPS$  = Incerteza da contagem por segundo,

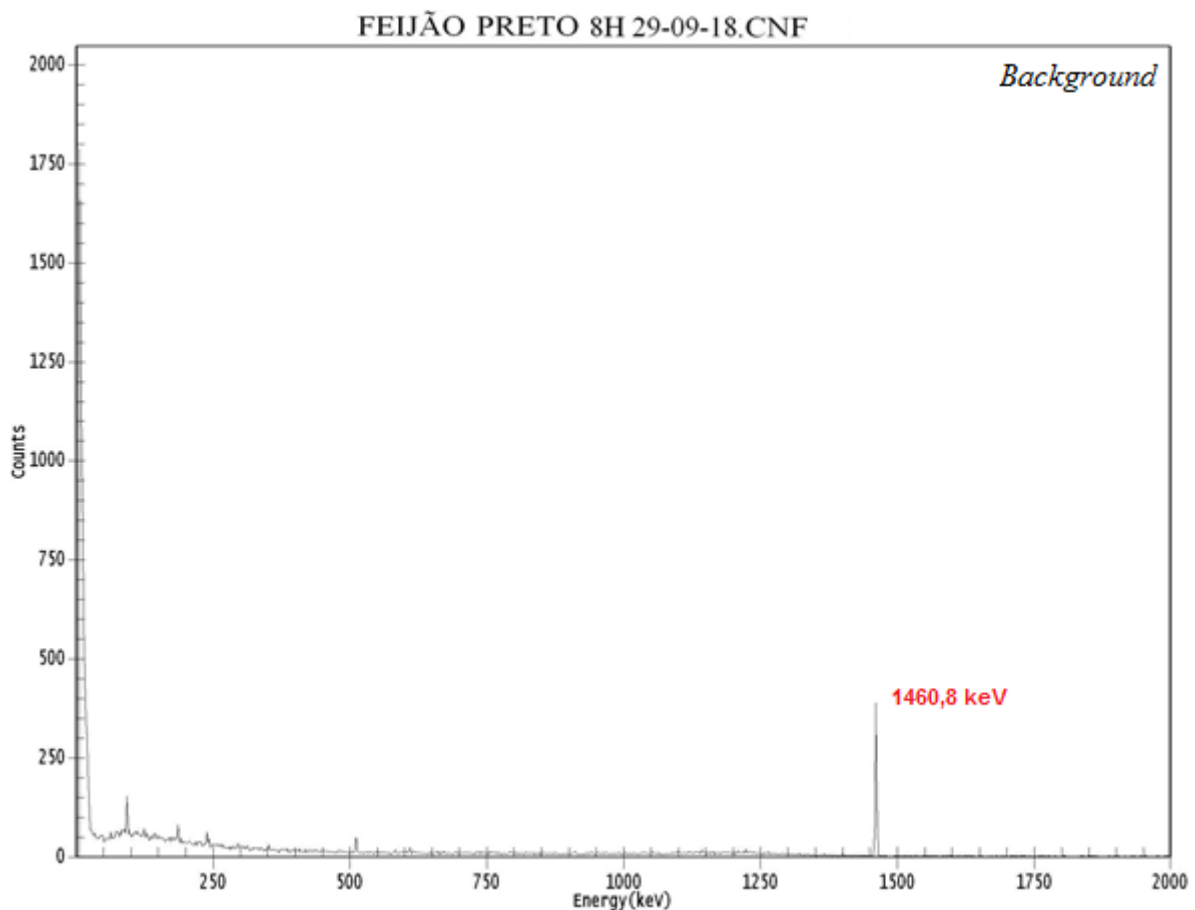
$\delta E_{abs}$  = Incerteza da eficiência absoluta simulada.

## CAPÍTULO 4

### Resultados e Discussões

#### 4.1 Espectros de radiação de fundo

O espectro de radiação de fundo, *background*, foi obtido por espectrometria gama com contagens de 8 horas e com a amostra em equilíbrio secular. A importância da amostra estar em equilíbrio secular durante a aferição da radiação de fundo é dada pela possibilidade de atingir o equilíbrio após o tempo de espera entre o preparo da amostra e a espectrometria gama pós irradiação, a ordem de eventos para concluir todas as etapas de análise faz com que a amostra entre facilmente no equilíbrio secular responsável pelo aparecimento de radioisótopos de cadeias radioativas. A figura 9 apresenta o espectro de radiação de fundo para o feijão preto.



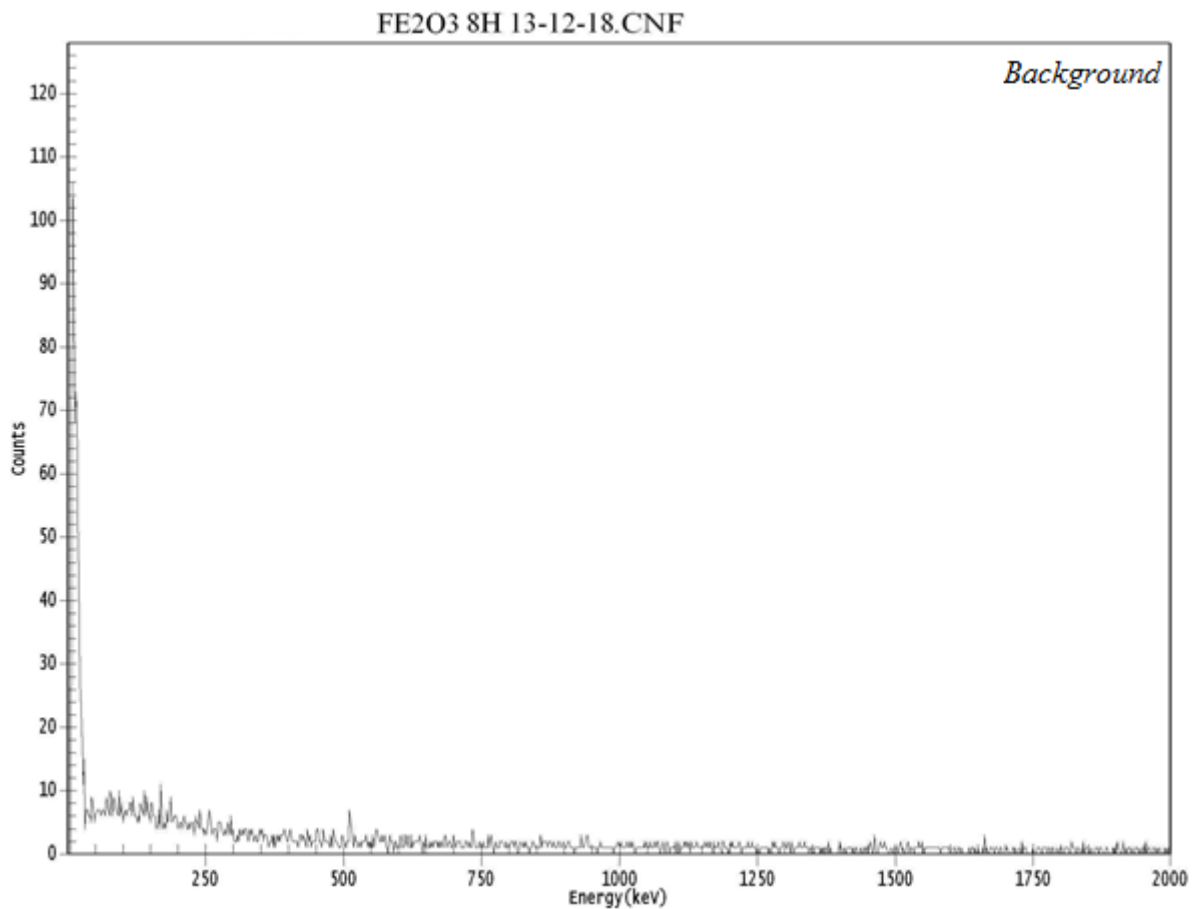
**Figura 9:** Espectro de radiação de fundo para a amostra feijão preto

Através da Tabela 3, os fotopicos que aparecem no espectro gama da Figura 9 estão explicitados como de área de contagem, onde observa-se a ausência de contagens para o  $^{59}\text{Fe}$ .

**Tabela 3:** Área dos fotopicos para a espectrometria gama de radiação de fundo na amostra feijão preto

Nuclídeo	Energia keV	Área	Erro %
<sup>56</sup> Mn	846,8	0	-
<sup>59</sup> Fe	1099	0	-
<sup>59</sup> Fe	1291	0	-
<sup>40</sup> K	1460	3094	1,83
<sup>56</sup> Mn	1810,7	0	-

A amostra de óxido de ferro também passou pela espectrometria gama com contagem de 8 horas para determinar a radiação de fundo, por ser uma amostra de alta pureza espera-se um espectro de radiação de fundo limpo, sem apresentação de fotopicos relacionados a outros elementos que não sejam os isótopos de ferro e oxigênio. A figura 10 apresenta o espectro de radiação de fundo do Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.



**Figura 10:** Espectro de radiação de fundo para a amostra Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Assim como apresentado na Tabela 3, a Tabela 4 apresenta contagem nula para o  $^{59}\text{Fe}$  nas energias 1099 keV e 1291 keV. Ressaltando a contagem nula referente ao  $^{40}\text{K}$ , resultado esperado devido a pureza da amostra  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .

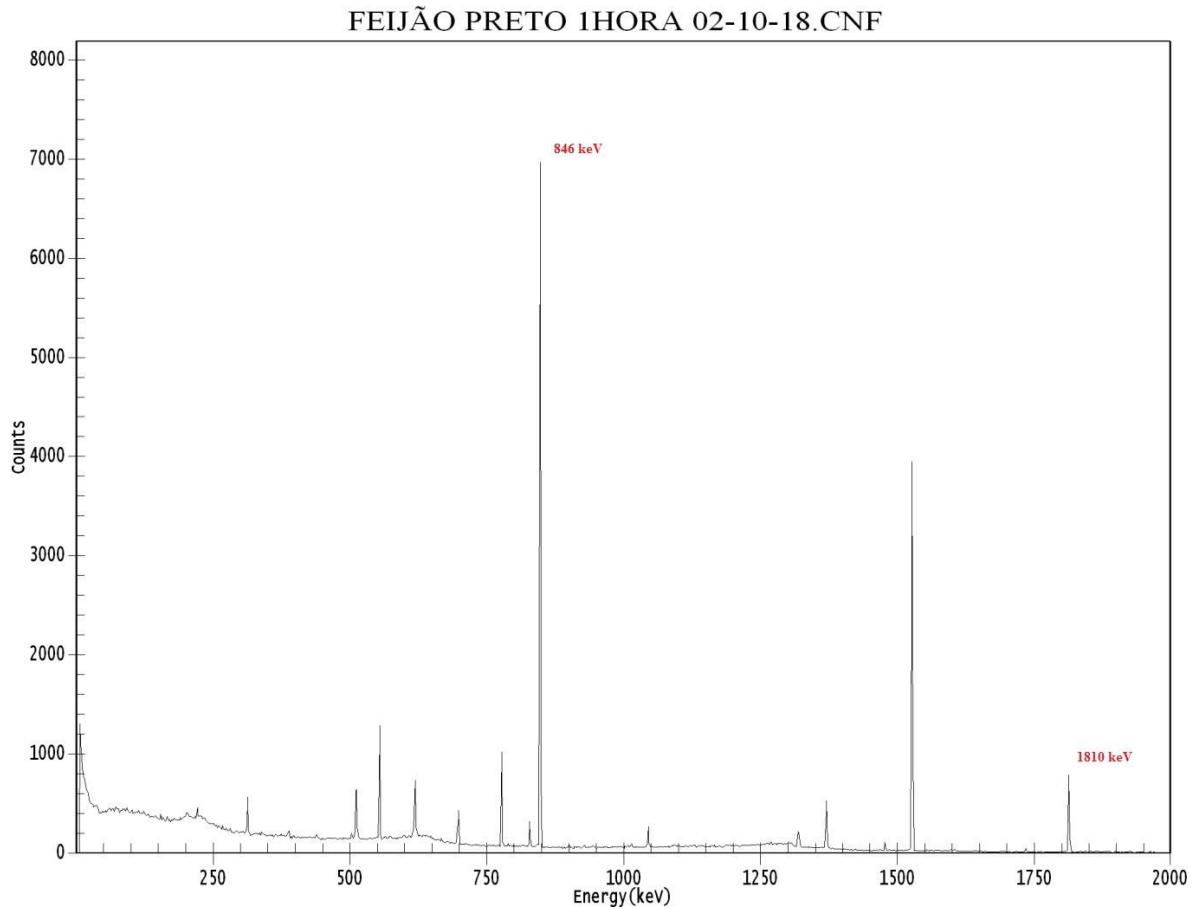
**Tabela 4:** Área dos fotopicos para a espectrometria gama de radiação de fundo na amostra

$\text{Fe}_2\text{O}_3$			
Nuclídeo	Energia keV	Área	Erro %
$^{56}\text{Mn}$	846,8	0	-
$^{59}\text{Fe}$	1099	0	-
$^{59}\text{Fe}$	1291	0	-
$^{40}\text{K}$	1460	0	-
$^{56}\text{Mn}$	1810,7	0	-

#### 4.2 Estudo de reações de interferência, ativações de 2 horas.

Identificar possíveis reações de interferência de primeira ordem, segunda ordem e interferência espectral, para a determinação de Fe nas amostras ativas é etapa para gerar confiabilidade nos resultados obtidos.

Para mapear regiões de interferência, espectros gama com contagens de 1 hora das amostras e as áreas de contagens dos principais fotopicos estão apresentadas abaixo. Começando pelo espectro gama do feijão preto, Figura 11.



**Figura 11:** Espectro gama da amostra feijão preto, irradiado por 2 horas

O espectro apresenta uma variedade de fotopicos, revelando regiões problemáticas e provando que a resolução do detector permite uma análise limpa na maior parte do espectro. A configuração utilizada para essa espectrometria gama foi com a amostra na posição vertical e um separador posicionado de forma a centralizar a amostra em relação a região sensível do detector.

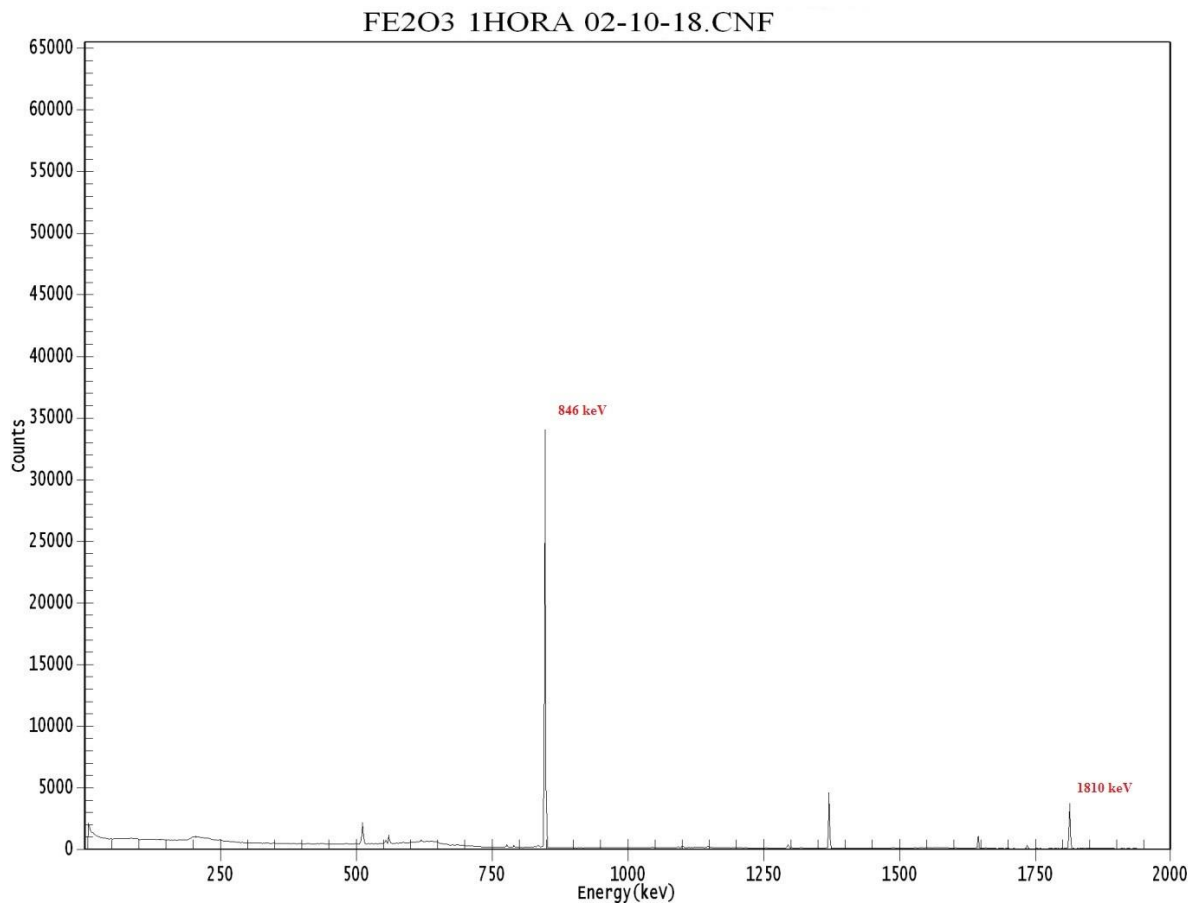
Utilizando o software Genie 2000 para a espectrometria gama, as regiões que apresentam fotopicos foram selecionadas e avaliadas, as áreas sob as curvas foram anotadas e o radionuclídeo responsável catalogado de acordo com a energia de emissão gama. Para o espectro do feijão preto, os dados estão representados separados por energia, em keV, na Tabela 5.



**Tabela 5:** Espectrometria de raios gama da amostra de feijão preto irradiado por 2 horas

Nuclídeo	Energia keV	Área	Erro %
$^{56}\text{Mn}$	846,8	48413	0,47
$^{82}\text{Br}$	1044	1532	3,4
$^{59}\text{Fe}$	1099	0	-
$^{59}\text{Fe}$	1291	0	-
$^{59}\text{Mn}$	1810,7	6537	1,29

Por intermédio da tabela 5 é possível verificar a grande influência do  $^{56}\text{Mn}$ , 846,8 keV e 1810,7 keV, provido de ativação do  $^{55}\text{Mn}$  e por interferência do  $^{56}\text{Fe}$ . A afirmativa pode ser comprovada através da visualização da Figura 10, espectro de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , onde aparece os mesmos fotopicos do  $^{56}\text{Mn}$ , com intensidade distinta, mesmo se tratando de uma amostra com 98% de dominância de ferro e oxigênio.

**Figura 12:** Espectro gama da amostra  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , irradiado por 2 horas

O padrão  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  não apresenta em seu certificado algum traço ou contaminação de manganês, observando a tabela 6 e a figura 12 é perceptível dois fotopicos nas energias características do  $^{56}\text{Mn}$ , comprovando assim, a ativação por interferência do isótopo  $^{56}\text{Fe}$ .

**Tabela 6:** Espectrometria de raios gama da amostra de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  irradiado por 2 horas

Nuclídeo	Energia keV	Área	Erro %
Mn-56	846,8	246567	0,2
Mn-56	1810,7	33563	0,57

A afirmação sobre o fotopico do isótopo  $^{56}\text{Mn}$  no feijão preto ser parcialmente originado de reações de interferência, é uma conclusão por observação do espectro do padrão  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , que participou das mesmas condições de irradiação e não possui o manganês como contaminante mas apresenta o fotopico do isótopo  $^{56}\text{Mn}$ .

Para a aferição de massa de ferro nas amostras os dados de interferência foram usados na verificação de calibração do detector, também apresentaram regiões de contagem nula no entorno das energias 1099 keV e 1291 keV do  $^{59}\text{Fe}$ , gerando assim, uma etapa importante para controle de qualidade ao utilizar o método comparativo da Análise por Ativação Neutrônica Instrumental. O método comparativo leva em consideração todos os detalhes da irradiação das amostras, por intermédio de ativação conjunta, em pares, onde qualquer variação no fluxo de nêutrons ou alargamento de rampa é contabilizado. O padrão acompanha a amostra a ser aferida, qualquer variação de parâmetros irá afetar amostra e padrão, para aplicar essa metodologia foi utilizada amostra de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  com 98% de pureza, sendo ativado junto com o feijão preto.

### 4.3 Espectrometria de raios gama das amostras irradiadas por 12 horas

Para o cálculo de massa de Fe na amostra de feijão preto, a escolha das energias do espectro de raios gama foi feita de modo a utilizar os fotopicos com maior probabilidade de emissão do isótopo  $^{59}\text{Fe}$ , sendo eles, 1099 keV e 1291 keV. Após estudar os espectros apresentados anteriormente, verifica-se que os fotopicos selecionados do  $^{59}\text{Fe}$  não são alvos de influência por algum tipo de interferência.

Novos espectros foram obtidos para as ativações de 12 horas, contagens de 1 hora para a amostra de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  e contagem de 10 horas para a amostra de feijão preto. Os resultados da espectrometria gama para as amostras estão representadas nas Tabelas 7 e 8.

**Tabela 7:** Área de contagem dos fotopicos no Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Reação <sup>58</sup> Fe(n,γ) <sup>59</sup> Fe	Data Hora	Energias-γ (keV)	Área de contagem
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	17/01/2019	1099	10406 ± 1%
(Com separador)	15:38	1291	6767 ± 1,23%
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	17/01/2019	1099	10376 ± 1%
(Com separador)	16:46	1291	6812 ± 1,22%
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	22/01/2019	1099	62698 ± 0,41%
(Sem separador)	15:03	1291	42188 ± 0,49%
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	22/01/2019	1099	62717 ± 0,41%
(Sem separador)	16:14	1291	41891 ± 0,49%
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	22/01/2019	1099	62414 ± 0,41%
(Sem separador)	17:18	1291	42056 ± 0,49%

**Tabela 8:** Área de contagem dos fotopicos na amostra feijão preto

Reação <sup>58</sup> Fe(n,γ) <sup>59</sup> Fe	Data Hora	Energias-γ (keV)	Área de contagem
Feijão preto	23/01/2019	1099	273 ± 8,87%
	07:48	1291	100 ± 17,87%
Feijão preto	24/01/2019	1099	166 ± 13,52%
	08:24	1291	104 ± 16,79%
Feijão preto	25/01/2019	1099	197 ± 10,46%
	09:58	1291	131 ± 12,76%

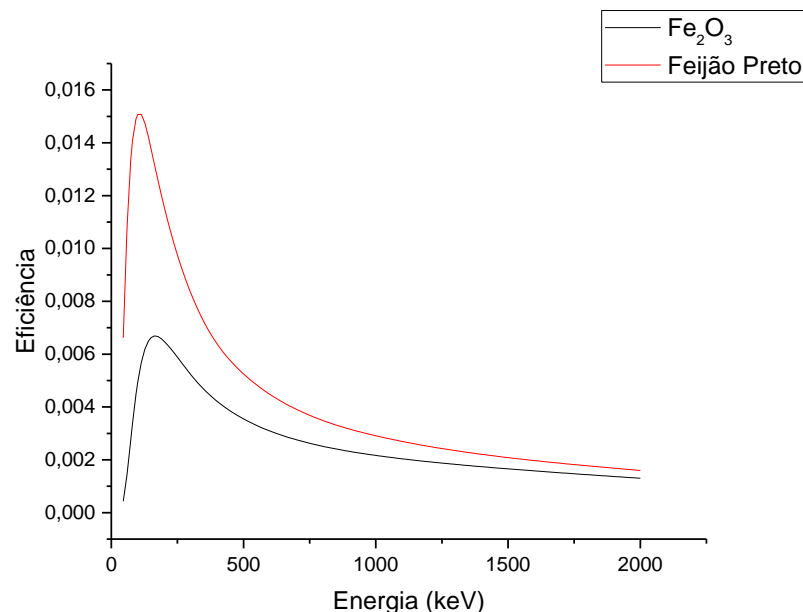
Para a análise de comparação a grandeza utilizada é contagens por segundo, eliminando qualquer equívoco relacionado a diferença entre os tempos de contagens das amostras. A diferença de ângulo sólido utilizado entre as duas primeiras contagens de Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> segue o princípio de minimização do tempo morto, respeitando o teto de 2% do tempo total de contagem, ao minimizar o erro e não ultrapassar o limite de tempo morto, os dados obtidos em 22/01/2019 provam ser a melhor configuração para a amostra. A espectrometria gama da amostra Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> colada sobre o detector, sem o uso de espaçador, foi utilizada após 12 dias de

espera, tempo suficiente para decair os radionuclídeos de meia vida curta, obtendo assim um espectro limpo sem prejudicar os resultados do  $^{59}\text{Fe}$  que possui 44,49 dias de meia vida.

#### 4.4 Eficiência simulada

A simulação foi feita no software LabSOCS, para a determinação da eficiência absoluta de detecção. A primeira configuração está representada na figura 8 da seção 3.4, onde a amostra está na posição vertical com uma distância de 6,35 cm do detector. A segunda configuração segue o mesmo porta amostra da primeira configuração, diferenciando apenas pela modificação da posição e orientação, com a amostra deitada na superfície do detector, revelando máxima eficiência para o porta amostra. A utilização das duas configurações é justificada pelo critério de qualidade do presente trabalho, foi estipulado 2% como o limite para o tempo morto das contagens, ou seja, o tempo que o detector não está contando por não conseguir acompanhar além de um limite de eventos simultâneos. O valor foi baseado em dados de o tempo morto limite utilizado pela divisão de controle de qualidade de Radiofármacos do IEN-CNEN, que é de 2% [33].

O gráfico da figura 13 representa as eficiências simuladas para a amostra de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  e para amostra de feijão preto, com distância de  $6,35 \pm 0,02$  cm do detector e absorvedor de polimetil-metacrilato (PMMA) com  $2,12 \pm 0,02$  cm de espessura.



**Figura 13:** Gráfico de eficiência simulada com amostra na posição vertical

Para as diversas contagem das amostras de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , encontraremos dados referente a aquisição feita com espaçador e sem espaçador, sendo necessário uma simulação das duas posições usadas. A tabela 9 apresenta dados de eficiência simulada com o espaçador.

**Tabela 9:** Eficiência simulada para a amostra na posição vertical à 6,35 cm do detector.

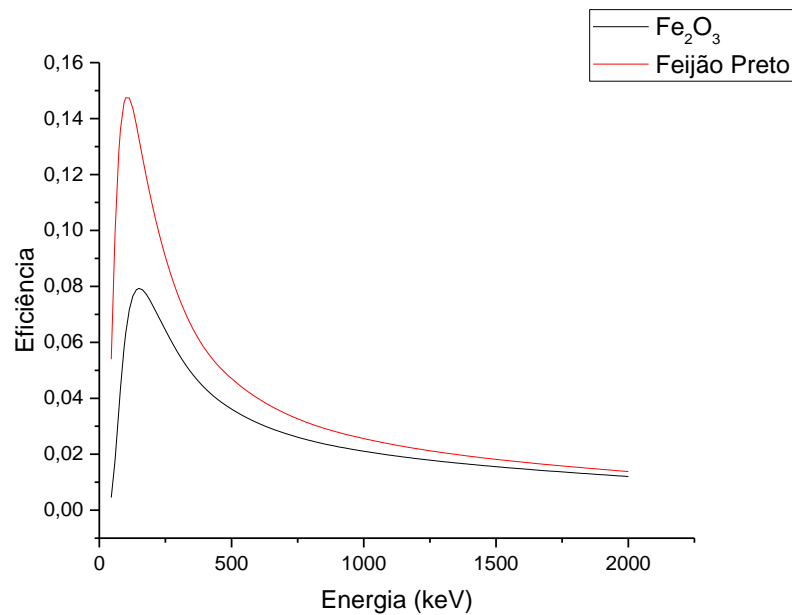
Amostra	Energia keV	Eficiência simulada	Ajuste de curva	Erro	Desvio %
$\text{Fe}_2\text{O}_3$ <sup>1</sup>	1099	0,00218	0,00217	4%	0,45
	1291	0,00174	0,00173	4%	0,57
Feijão preto	1099	0,00291	0,00291	4%	-
	1291	0,00220	0,00221	4%	0,45

Seguindo o critério de minimização de tempo morto, testes foram feitos para verificar a possibilidade de aproximar a amostra do detector. O resultado encontrado para a ativação de 2 horas foi um rompimento do valor máximo estipulado, 2% do tempo de contagem, quando a amostra encontrava-se colada ao detector, então, o uso do espaçador foi necessário, reduzindo o tempo morto a um valor dentro do intervalo estipulado.

Para a ativação de 12 horas, o tempo morto da contagem com espaçador chegou a um valor máximo de 0,09% e sem espaçador 0,39%. Como a variação está dentro do teto estipulado, as contagens passaram a ser feitas com a amostra deitada sob o detector, maximizando a eficiência para o porta amostra usado sem comprometer a qualidade dos dados obtidos.

O novo procedimento trouxe a necessidade de uma nova simulação, gerando os dados da figura 14, representando a curva de eficiência para as amostras na posição horizontal em contato com o detector.

<sup>1</sup>  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  amostra com massa de 2,1740 g



**Figura 14:** Gráfico de eficiência simulada com amostra na posição horizontal

Os valores de eficiência simulada com a amostra na posição horizontal sob o detector, para as energias de interesse estão representados na tabela 10.

**Tabela 10:** Eficiência simulada para a amostra na posição horizontal sobreposta no detector.

Amostra	Energia keV	Eficiência simulada	Ajuste de curva	Erro	Desvio %
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> <sup>2</sup>	1099	0,02112	0,02109	4%	0,14
	1291	0,01638	0,01643	4%	0,30
Feijão preto	1099	0,02563	0,02560	4%	0,12
	1291	0,01933	0,01929	4%	0,21

A justificativa da mudança da configuração de detecção é a redução do erro de medida, que é determinado pela raiz quadrada da contagem, logo, se o número de contagens aumenta devido ao aumento de eficiência, a porcentagem do erro em relação a contagem diminui.

Para exibir uma comparação de contagens em isótopos radioativos inseridos em matrizes distintas, cálculos de auto-absorção gama da amostra devem ser apresentados. A auto-absorção é uma blindagem natural de cada amostra, em uma ilustração comparativa imagine duas amostras contaminadas com um teor considerável do isótopo radioativo <sup>59</sup>Fe, uma com chumbo dominando sua composição e a outra com sódio dominando a composição. Agora imagine um raio gama sendo emitido por 1 átomo de <sup>59</sup>Fe, obviamente a probabilidade

<sup>2</sup> Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> segunda amostra, com massa de 2,7554 g

de interação desse gama será muito maior na amostra com dominância de chumbo. Essa dificuldade de fuga gama da própria amostra é chamado de auto-absorção gama ou auto-atenuação. É por esse motivo que a correção da contagem por um fator de auto-atenuação é recomendada.

A simulação feita pelo software LabSOCS, inclui o cálculo de auto-absorção gama das amostras, por esse motivo, os gráficos de eficiência apresentam tamanha discrepância entre as simulações do  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  e feijão preto, já que estamos tratando da mesma geometria simulada. A proposta para a correção dessa atenuação é promover a divisão das contagens pela sua respectiva eficiência simulada, assim o fator de auto-absorção será usado intrinsecamente, pois para todas as contagens a serem usadas nesse cálculo, deverá constar apenas as que foram feitas com a mesma geometria e sem variações de ângulo sólido.

#### 4.5 Contagens por segundo

Um dos parâmetros utilizados na formula de cálculo de massa por comparação é contagens por segundo, onde o número de contagens é dividido pelo tempo de aquisição. Utilizando os dados de contagens para as amostras em posição de máxima eficiência das Tabelas 7 e 8, os cálculos de contagens por segundo estão apresentados nas Tabelas 11 e 12.

**Tabela 11:** Contagens por segundo para o  $\text{Fe}_2\text{O}_3$

Matriz	Energia (keV)	CPS
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	1099	17,4161
	1291	11,7189
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	1099	17,4214
	1291	11,6364
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	1099	17,3372
	1291	11,6822

**Tabela 12:** Contagens por segundo para o feijão preto

Matriz	Energia (keV)	CPS
Feijão preto	1099	0,0076
	1291	0,0028
Feijão preto	1099	0,0046
	1291	0,0029
Feijão preto	1099	0,0055
	1291	0,0036

#### 4.6 Contagens por segundo com correção de auto-absorção gama

Os dados serão separados para promover um resultado com correção e um resultado sem correção. As tabelas 13 e 14 apresentam cálculos de contagens por segundo que resultam de dados das tabelas 7, 8 e 10. O tempo de aquisição está apresentado para cada contagem em tabelas do apêndice A, para o feijão preto foi usado 36000 segundos e para o  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  3600 segundos.

**Tabela 13:** Contagens por segundo com correção para o  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 

Matriz	Energia (keV)	CPSC
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	1099	824,626
	1291	715,439
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	1099	824,876
	1291	710,402
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	1099	820,891
	1291	713,200



**Tabela 14:** Contagens por segundo com correção para o feijão preto

Matriz	Energia (keV)	CPSC
Feijão preto	1099	0,295
	1291	0,144
Feijão preto	1099	0,180
	1291	0,150
Feijão preto	1099	0,213
	1291	0,189

#### 4.7 Fator de decaimento do padrão, $D_p$ , e fator de decaimento da amostra, $D_a$

Para a realização dos cálculos de concentração de ferro no feijão preto, o fator de decaimento para cada contagem de  $Fe_2O_3$  foi aplicado e por fim uma média de contagens por segundo foi obtida, como o  $^{59}Fe$  tem uma meia-vida  $T_{1/2}$  de 44,5 dias e todas as três contagens do  $Fe_2O_3$  foram feitas no mesmo dia, a variação do fator  $D_p$  é mínima. O tempo de espera  $T_d$  e a meia-vida  $T_{1/2}$  foram convertidos para segundos e apresentados juntamente com o fator de decaimento  $D_p$  nas Tabelas 15 e 16.

**Tabela 15:** Fator de decaimento do padrão  $Fe_2O_3$ 

Matriz	$T_{1/2}$ (s)	$T_d$ (s)	$D_p$
$Fe_2O_3$	3844368	1043460	0,82853
$Fe_2O_3$	3844368	1047720	0,82790
$Fe_2O_3$	3844368	1051560	0,82732

**Tabela 16:** Fator de decaimento da amostra feijão preto

Matriz	$T_{1/2}$ (s)	$T_d$ (s)	$D_a$
Feijão preto	3844368	1142640	0,81385219
Feijão preto	3844368	1226880	0,80158687
Feijão preto	3844368	1307640	0,79000182

#### 4.8 Concentração de ferro no feijão

Os cálculos de concentração de ferro no feijão preto foram divididos em dois grupos, o primeiro é de dados referente a energia 1099 keV do  $^{59}Fe$ , o segundo é referente a energia 1291 keV do  $^{59}Fe$ . O objetivo de utilizar essas duas energias é observar a variação no

resultado de concentração quando há uma discrepância na probabilidade de emissão do fotopico.

**Tabela 17:** Massa e concentração de ferro em 5,9086 g de feijão preto

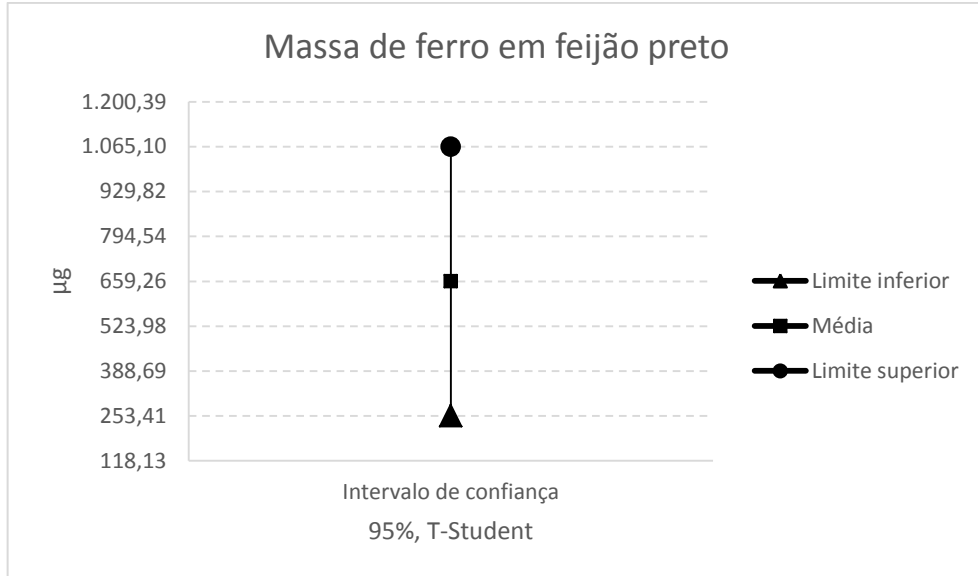
Dados de referência	Feijão preto	Massa de Fe ( $\mu\text{g}$ )	ppm
	$m_{\text{Fe}}$	$837,77 \pm 2,0$	$141,86 \pm 0,3$
Energia 1099 keV	$m_{\text{Fe}}$	$517,21 \pm 1,3$	$87,58 \pm 0,2$
	$m_{\text{Fe}}$	$622,80 \pm 1,5$	$105,46 \pm 0,2$
	$m_{\text{Fe}}$	$456,97 \pm 0,7$	$77,38 \pm 0,1$
Energia 1291 keV	$m_{\text{Fe}}$	$482,52 \pm 0,8$	$81,71 \pm 0,1$
	$m_{\text{Fe}}$	$616,7 \pm 1,0$	$104,43 \pm 0,2$

Com os valores de concentração e massa obtidos, foi possível calcular a margem de confiança dos resultados usando a estatística t-Student, as Tabelas 16 e 17 apresentam a faixa de confiança, o desvio padrão e a média amostral para os resultados relacionados às energias 1099 keV e 1291 keV respectivamente.

**Tabela 18:** Intervalos de confiança (IC) e média amostral em  $\mu\text{g}$  para os dados relacionados ao fotopico 1099 keV

t-Student	$\text{IC}^+$ ( $\mu\text{g}$ )	$\text{IC}^-$ ( $\mu\text{g}$ )	Média amostral ( $\mu\text{g}$ )	Desvio padrão ( $\mu\text{g}$ )
Confiança de 95%	1065,11	253,41	659,26	163,36

O intervalo de confiança para a massa de ferro calculada para 5,9086 g de feijão preto utilizando o fotopico 1099 keV do  $^{59}\text{Fe}$  está representado graficamente na Figura 15.

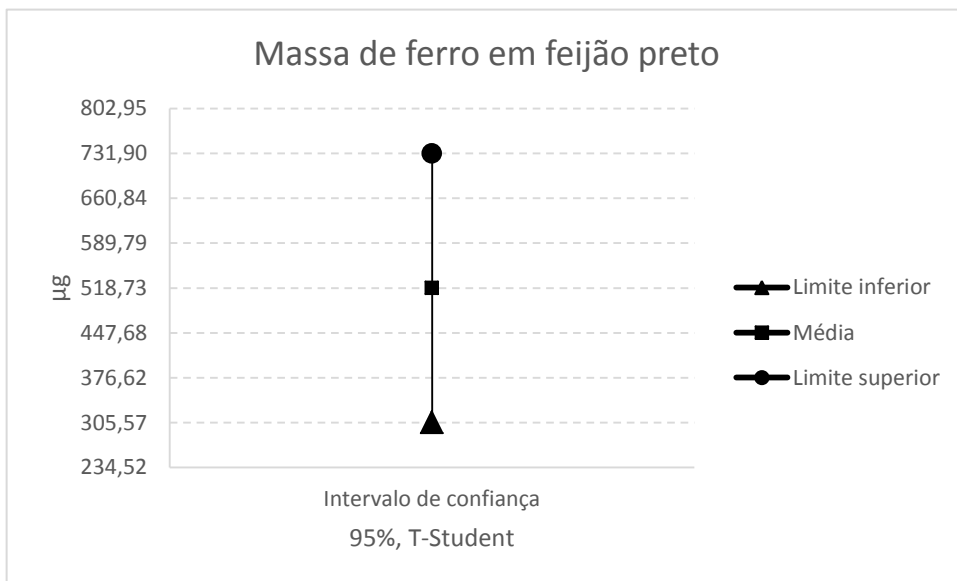


**Figura 15:** Gráfico do intervalo de confiança para a quantidade de massa de ferro no feijão referente a dados para a energia 1099 keV do <sup>59</sup>Fe

Para os resultados referentes aos dados retirados do fotopico de energia 1291 keV, o intervalo de confiança está representado graficamente na tabela 19 e na figura 16.

**Tabela 19:** Intervalos de confiança (IC) e média amostral em µg para os dados relacionados ao fotopico 1291 keV

t-Student	IC <sup>+</sup> (µg)	IC <sup>-</sup> (µg)	Média amostral (µg)	Desvio padrão (µg)
Confiança de 95%	731,9	305,57	518,73	85,8



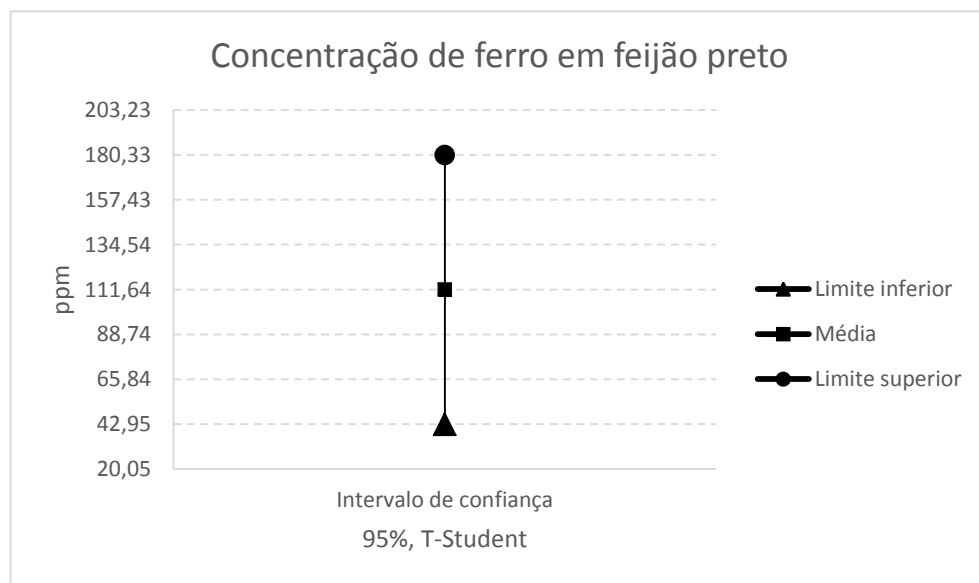
**Figura 16:** Gráfico do intervalo de confiança para a quantidade de massa de ferro no feijão referente a dados para a energia 1291 keV do <sup>59</sup>Fe

Assim como feito para a massa de ferro encontrada, também está apresentado o intervalo de confiança para o resultado em ppm, média amostral e desvio padrão. Para promover a comparação entre os resultados do presente trabalho e o resultado da literatura foi feita a conversão de  $\mu\text{g}$  para parte por milhão ppm através da divisão do resultado em  $\mu\text{g}$  pela massa total da amostra.

A tabela 20 e o gráfico da figura 17 representam os resultados convertidos para ppm, ambos são relacionados ao fotopico de 1099 keV do  $^{59}\text{Fe}$

**Tabela 20:** Intervalos de confiança e média amostral em ppm para os dados relacionados ao fotopico 1099 keV

t-Student	IC <sup>+</sup>	IC <sup>-</sup>	Média amostral	Desvio padrão
Confiança de 95%	180,35	42,91	111,63	27,66

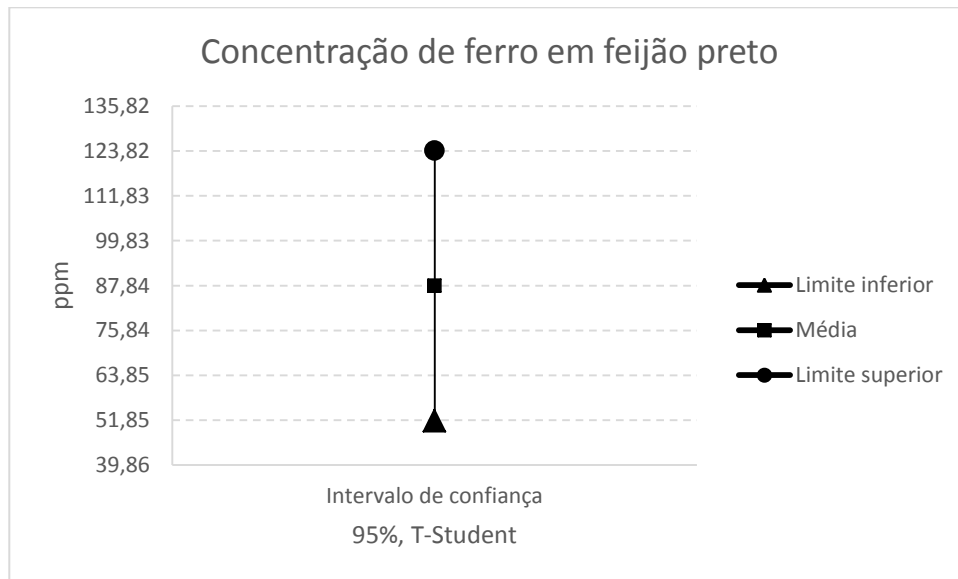


**Figura 17:** Gráfico do intervalo de confiança para a concentração de ferro no feijão

Assim como apresentado anteriormente, os intervalos de confiança e média amostral estão representados na Tabela 21 e Figura 18 para os dados referente ao fotopico de 1291 keV do  $^{59}\text{Fe}$

**Tabela 21:** Intervalos de confiança e média amostral em ppm para os dados relacionados ao fotopico 1291 keV

T-Student	IC <sup>+</sup>	IC <sup>-</sup>	Média amostral	Desvio padrão
Confiança de 95%	123,93	51,74	87,83	14,53



**Figura 18:** Gráfico do intervalo de confiança para a concentração de ferro no feijão

Utilizando os dados referente aos fotopicos 1099 keV e 1291 keV do  $^{59}\text{Fe}$  foram obtidos resultados de concentração de ferro em feijão preto. A técnica utilizada, Análise por Ativação Neutrônica Instrumental por comparação, é aplicada por ativação simultânea e semelhança de geometria, um ponto que foge das atuais discussões representadas por artigos na seção 1.3 do presente trabalho é a semelhança na matriz analisada, auto-absorção gama para diferentes matrizes, como o presente caso, óxido de ferro e feijão preto. Para gerar uma correção nos resultados providos de possíveis erros relacionados a auto-absorção gama, é proposto na seção 4.9 cálculos utilizando as eficiências simuladas na seção 4.4.

#### 4.9 Concentração de ferro no feijão com correção de auto-absorção gama

Os resultados para a determinação de concentração de ferro apresentaram incertezas menores que 4%, o cálculo da propagação de erros para o método comparativo com correção de auto-absorção gama leva em consideração o erro da eficiência simulada, naturalmente é exibido um aumento do erro em relação ao método clássico. Para revelar a confiança dos dados obtidos, foi aplicado o método estatístico t-Student, com confiabilidade de 95%. Na Tabela 22 consta os resultados do cálculo de massa de ferro no feijão preto.

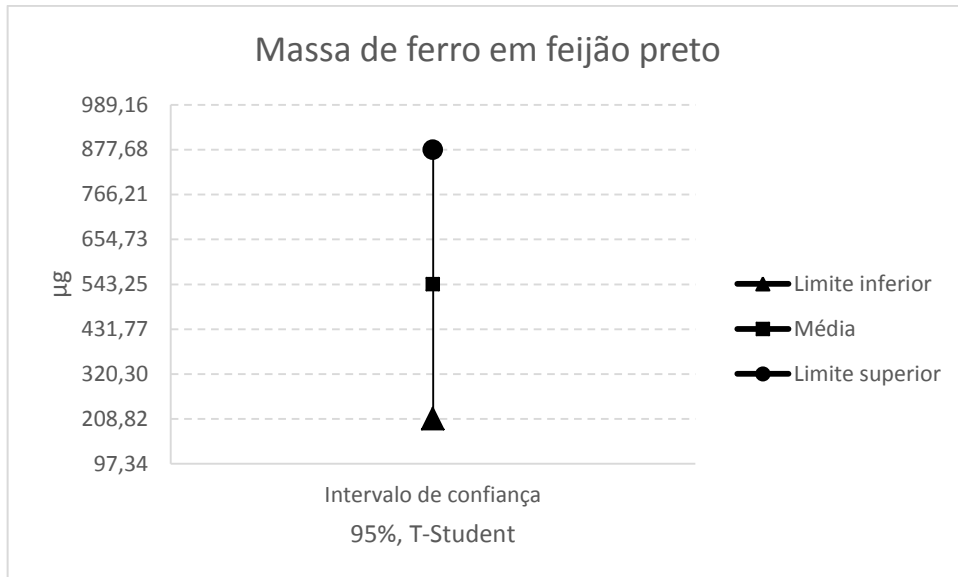
**Tabela 22:** Massa e concentração de ferro em 5,9086 g de feijão preto com correção de auto-absorção gama

Dados de referência	Feijão preto	Massa de Fe ( $\mu\text{g}$ )	ppm
	$m_{\text{C}_{\text{Fe}}}$	$690 \pm 22$	$117 \pm 4$
Energia 1099 keV	$m_{\text{C}_{\text{Fe}}}$	$426 \pm 14$	$72 \pm 3$
	$m_{\text{C}_{\text{Fe}}}$	$513 \pm 17$	$87 \pm 1$
	$m_{\text{C}_{\text{Fe}}}$	$387 \pm 8$	$66 \pm 2$
Energia 1291 keV	$m_{\text{C}_{\text{Fe}}}$	$409 \pm 9$	$69 \pm 1$
	$m_{\text{C}_{\text{Fe}}}$	$523 \pm 11$	$88 \pm 2$

A tabela 23 e o gráfico da figura 19 apresentam a região de confiança para os resultados do cálculo de massa, em  $\mu\text{g}$  de ferro, relacionados aos dados de espectrometria gama para o fotopico de energia 1099 keV com correção de auto-absorção gama.

**Tabela 23:** Intervalos de confiança e média amostral em  $\mu\text{g}$  para os dados relacionados ao fotopico 1099 keV com correção

t-Student	$\text{IC}^+$ ( $\mu\text{g}$ )	$\text{IC}^-$ ( $\mu\text{g}$ )	Média amostral ( $\mu\text{g}$ )	Desvio padrão ( $\mu\text{g}$ )
Confiança de 95%	877,68	208,82	543,25	134,62

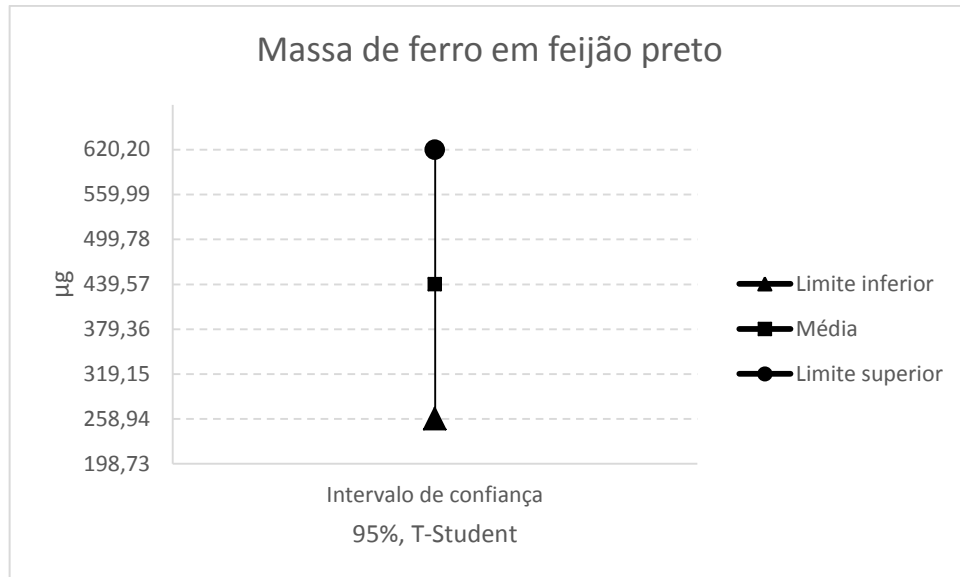


**Figura 19:** Gráfico do intervalo de confiança para a quantidade corrigida de massa de ferro no feijão

A tabela 24 e o gráfico da figura 20 apresentam a região de confiança para os resultados relacionados aos dados obtidos por espectrometria gama no fotopico de energia 1291 keV do isótopo  $^{59}\text{Fe}$ , com correção de auto-absorção gama.

**Tabela 24:** Intervalos de confiança e média amostral em  $\mu\text{g}$  para os dados relacionados ao fotopico 1291 keV com correção

t-Student	IC <sup>+</sup> ( $\mu\text{g}$ )	IC <sup>-</sup> ( $\mu\text{g}$ )	Média amostral ( $\mu\text{g}$ )	Desvio padrão ( $\mu\text{g}$ )
Confiança de 95%	620,2	258,94	439,57	72,71



**Figura 20:** Gráfico do intervalo de confiança para a quantidade corrigida de massa de ferro no feijão

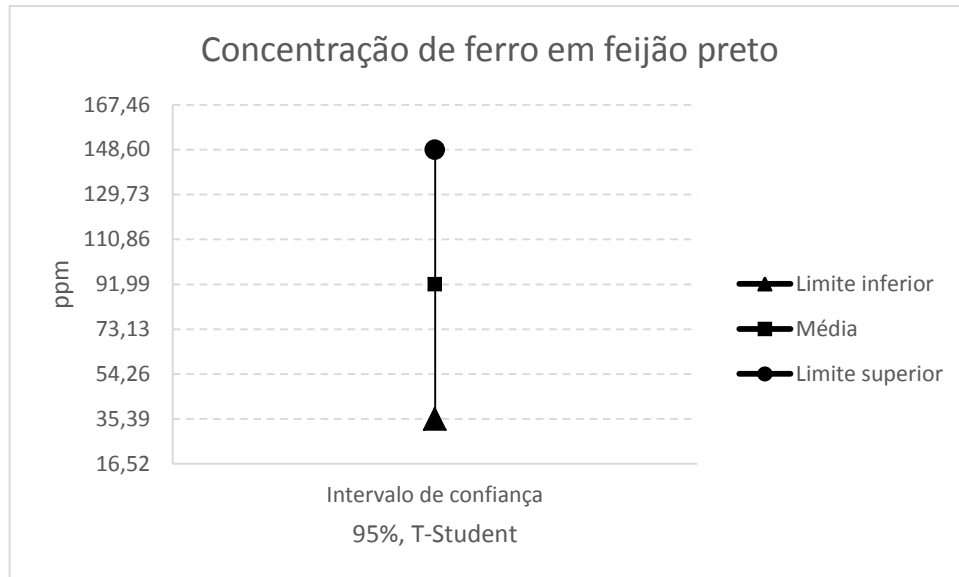
Como apresentado anteriormente, para possibilitar a comparação de resultados, foi feito o cálculo de conversão de  $\mu\text{g}$  para ppm. A Tabela 25 apresenta os resultados relacionados ao fotopico 1099 keV com correção de auto-absorção gama.

**Tabela 25:** Intervalos de confiança e média amostral em ppm para os dados relacionados ao fotopico 1099 keV com correção

t-Student	IC <sup>+</sup> (ppm)	IC <sup>-</sup> (ppm)	Média amostral (ppm)	Desvio padrão (ppm)
Confiança de 95%	148,62	35,36	91,99	22,79

A figura 21 expõe o gráfico referente aos dados apresentados pela tabela 25, com os resultados em ppm para os dados com correção de auto-absorção gama referentes ao fotopico de energia 1099 keV do  $^{59}\text{Fe}$ .



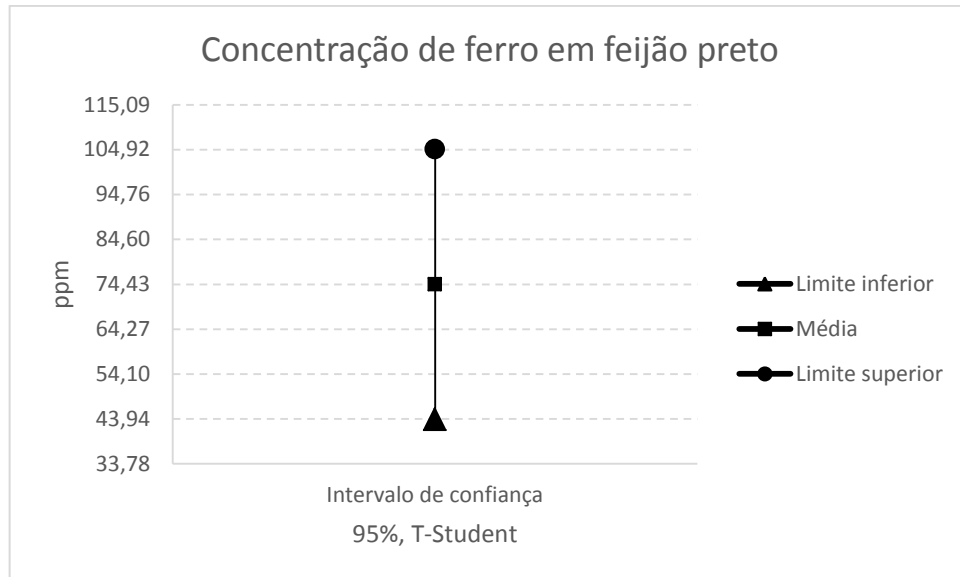


**Figura 21:** Gráfico do intervalo de confiança para a concentração de ferro no feijão

A tabela 26 e o gráfico da figura 22 apresentam a região de confiança para os resultados de concentração de ferro em feijão preto, relacionados aos dados obtidos por espectrometria gama no fotopico de energia 1291 keV do isótopo  $^{59}\text{Fe}$ , com correção de auto-absorção gama por eficiência simulada.

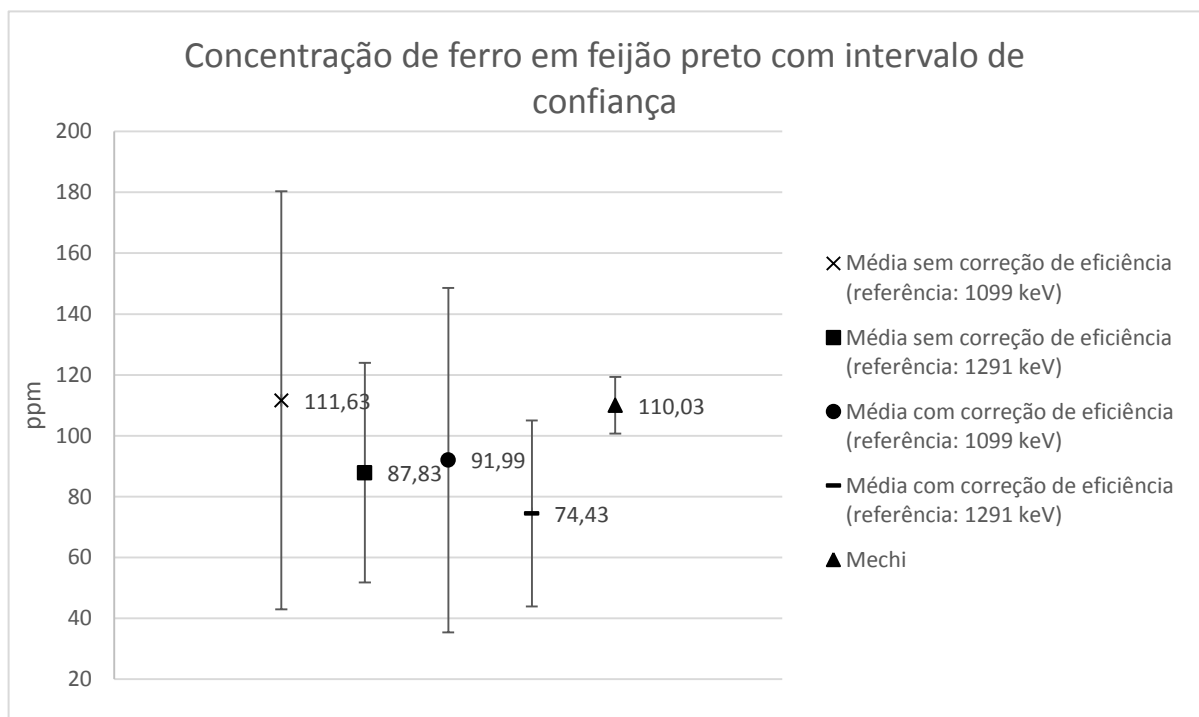
**Tabela 26:** Intervalos de confiança e média amostral em ppm para os dados relacionados ao fotopico 1291 keV com correção

T-Student	IC <sup>+</sup> (ppm)	IC <sup>-</sup> (ppm)	Média amostral (ppm)	Desvio padrão (ppm)
Confiança de 95%	105,02	43,85	74,43	12,31



**Figura 22:** Gráfico do intervalo de confiança para a concentração de ferro no feijão

O gráfico da figura 23 apresenta a comparação de resultados em ppm obtidos no presente trabalho, com correção e sem correção de auto-absorção gama, com o valor médio obtido pelo autor Mechi [21].



**Figura 23:** Gráfico de comparação para concentração de ferro em feijão preto

Observa-se na figura 23 que todos os resultados obtidos no presente trabalho estão dentro dos intervalos de confiança. A dispersão do intervalo de confiança é dada pela variação nos resultados providos de três medidas, para a minimização do intervalo de confiança será

necessário realizar mais medidas e aumentar o tempo de ativação neutrônica, fornecendo assim uma diminuição na flutuação dos resultados da espectrometria gama.

## 5 CONCLUSÃO

A proposta do presente trabalho era avaliar a possibilidade de aplicar a técnica Análise por Ativação Neutrônica Instrumental fazendo uso do reator Argonauta, e durante a pesquisa obter dados suficientes para incentivar trabalhos futuros.

Destaca-se a contribuição do software LabSOCS, que teve papel fundamental, tornando desnecessário o uso de padrões radioativos certificados com as mesmas características das amostras analisadas, ou o uso de coeficientes de auto absorção para obter a eficiência absoluta das contagens. O uso da eficiência simulada para correção de auto-absorção gama, foi um diferencial durante o tratamento de dados para aplicar o método de comparação com o padrão  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .

O autor Mechi [21] encontrou uma concentração de ferro em Feijão preto de  $108,3 \pm 5,6$  à  $126,3 \pm 9,0$  ppm, enquanto o resultado do presente trabalho revelou valores de  $82,7 \pm 0,1$  à  $141,9 \pm 0,3$  ppm para o cálculo clássico e  $117 \pm 4$  à  $69 \pm 1$  ppm para o cálculo com a correção pela eficiência simulada. A comparação revelou que os resultados estão em concordância com outro autor. Destacando que não foram encontradas referências com valores obtidos pela técnica AAN para análise de ferro em feijão preto cultivado em solo brasileiro.

Os objetivos propostos inicialmente foram alcançados, obtendo a conclusão da viabilidade de aplicação da técnica Análise por Ativação Neutrônica utilizando o reator Argonauta. Pontos a destacar:

- Devido ao fluxo de nêutrons limitado a  $10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ , a ativação deve ser feita por um longo período, passível de determinação prévia, com cálculos e simulações utilizando dados fornecidos pelo presente trabalho.
- O elemento alvo deve possuir meia-vida adequada, pois as ativações são feitas com tempo limitado de irradiações diárias.
- Nuclídeos de meia-vida curta escolhido como alvo deve passar por uma avaliação prévia, uma verificação da seção de choque para o fluxo de nêutrons, tempo de irradiação e possibilidade de obter resultados da ativação durante a espectrometria gama.
- Para utilizar as reações de interferência, um mapeamento utilizando padrões é necessário, além do conhecimento do fluxo de nêutrons rápidos.

A contribuição deste trabalho para a literatura científica baseia-se no fato que a Análise por Ativação Neutrônica é considerada um dos métodos mais precisos para determinar concentração de elementos em amostras. A comprovação através dos dados obtidos da possibilidade de aplicação da técnica, é uma justificativa plausível para a abertura dessa linha de pesquisa no Instituto de Engenharia Nuclear CNEN.

## 6 PERSPECTIVAS FUTURAS

Por falta de um sistema pneumático como descrito por tantos autores no Capítulo 1, seção 1.3, o tempo que o reator demora para chegar a potência desejada (tempo de “rampa”) gera erros e falta de confiança nos resultados, caso um padrão não seja irradiado em conjunto com a amostra. Basta ver a tabela de ativação neutrônica do Apêndice B, que podemos notar a não linearidade da diferença entre tempos de rampa. Sabe-se que esse fenômeno está diretamente relacionado com a temperatura interna do núcleo e do fluido refrigerante, que no atual momento não recebem um rígido controle. A proposta de estudo é relacionar a temperatura da sala do reator com o tempo para atingir a criticalidade, aquisições de dados durante um longo período, permitiria criar uma curva de previsão de rampa relacionada a temperatura ambiente.

Como proposta de trabalho futuro, a determinação de ferro ou outros metais pesados em amostras de feijões utilizando-se dos testes e resultados apresentados no presente trabalho, promovendo a criação de um banco de dados do Instituto de Engenharia Nuclear sobre metais pesados em amostras de feijões.

## 7 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] EL-ABBADY, W. H. EL-TANAHY, Z. H. EL-HAGG, A. A. *Limitations for qualitative and quantitative neutron activation analysis using reactor neutrons*, Czechoslovak Journal of Physics, v, 49, n. 7, p. 1097-1104, 1999.
- [2] IAEA – TECDOC-564. *Practical Aspects of Operating a Neutron Activation Analysis Laboratory*. IAEA, Vienna, 1990.
- [3] KRUGER, P. *Principles of Activation Analysis*. John Wiley & Sons, New York, 1971.
- [4] ZAIM, N. DOGAN, C. CAMTAKAN, Z. *Neutron Activation Analysis of Soil Samples from Different parts of Edirne in Turkey*, Journal of Applied Spectroscopy, Vol. 83, No. 2, 2016.
- [5] GRANT, C. N. ANTOINE, J. M. R. *Instrumental neutron activation analysis in forensic Science in Jamaica: The case of the Coral Springs beach theft*. Forensic Chemistry, V. 7, p. 88-93, 2018.
- [6] PILLAY, S. K. K. THOMAS JR, C. C. SONDEL, J. A. HYCHE, C. M. *Determination of mercury in biological and environmental samples by neutron activation analysis*. Analytical Chemistry, Vol. 43, N, 11, 1971.
- [7] DA COSTA, L. A. *Análise por ativação neutrônica: estudo de interferências primárias nas determinações de alumínio, magnésio, manganês e sódio*, Dissertação de Mestrado. Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear, 2007.
- [8] MIYAMOTO, Y. HABA, H. KAJIKAWA, A. MASUMOTO, K , NAKANTSHI, T. SAKAMOTO, K. *Interferences in neutron and photon activation analysis*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, V. 239, n. I, p. 165-175, 1999.
- [9] DATTA, J. CHOWDHURY, D. P. VERMA, R. REDDY, A. V. R.. *Determination of elemental concentrations in environmental plant samples by instrumental neutron activation analysis*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, p. 261-265, 2012.
- [10] BITEWLIGN, A ET AL. *Instrumental neutron activation analysis of environmental samples from a region with prevalence of population disabilities in the north Gondar, Ethiopia*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, p. 2047-2059, 2017.

- [11] MOREIRA, E. G. *Aplicação da análise de ativação com nêutrons ao estudo da composição química de materiais metálicos*, Dissertação de Mestrado. IPEN. 2002
- [12] AKSOY, A. AL-HADDAD, M. N. NAQVI, A. A. AL-NAHDI, K. *An  $^{241}\text{Am}$ -Be source based thermal neutron activation analysis facility at KFUPM*, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, V. 181, n. 1, p. 131-140, 1994.
- [13] NARKHEDE, S. S. TUREL, Z. R. *Instrumental neutron activation analysis of Al, V and Ti employing  $^{252}\text{Cf}$  as a thermal neutron source*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, v. 200, n. 5, p. 435-442, 2005.
- [14] GANGADHARAN, S. YEGNASUBRAMANTAN, S. MSRA, S. C. GUPTA U. C. *Multielement analysis of minor components using a 14 MeV neutron generator*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, v. 24, p. 57-64, 1975.
- [15] TAHIR, N. A. *Estudo da Aplicação da Análise por Ativação com Nêutrons para a Verificação da Integridade da Cimentação em Poços de Petróleo Utilizando Simulação Monte Carlo*. Dissertação de Mestrado. Programa de Engenharia Nuclear, Universidade Federal do Rio de Janeiro. 2018.
- [16] TERUYA, C. M. *Aplicação da análise de ativação com nêutrons para a determinação de elementos essenciais e tóxicos em subprodutos agroindustriais utilizados na alimentação animal*, Dissertação de Mestrado, IPEN, 1999.
- [17] AGUIAR, A. R. *Aplicação do método de análise por ativação com nêutrons à determinação de elementos traço em unhas humanas*, Dissertação de Mestrado, IPEN, 2001.
- [18] SHULYAKOVA, O. AVTONOMOV, P. KORNIENKO, V. *New Developments of Neutron Activation Analysis Applications*. Procedia - Social and Behavioral Sciences, v. 195, p. 2717-2725, 2015.
- [19] ALI, I. A. MOHAMED, G. Y. AZZAM, A. SATTAR, A. A. *Determination of concentration of Fe, Mg, and Zn in some ferrite samples using neutron activation analysis and X-ray fluorescence techniques*. Applied Radiation and Isotopes, v. 122, p. 63-67, 2017
- [20] CONAB, *Acompanhamento da Safra Brasileira de Grãos, Companhia Nacional de Abastecimento*, Observatório Agrícola, N. 7, V. 5, 2018.
- [21] MECI, R. BRAZACA, S. G. ARTHUR, V. *Avaliação química, nutricional e fatores antinutricionais do feijão preto (Phaseolus Vulgaris L.) irradiado*. Ciência e Tecnologia de Alimentos, vol. 25, N. 1, p. 109-114. Campinas, SP. 2005.



[22] O'BRIEN, J. *Nuclear Physics and Reactor Theory*. National Training Center, USA. Fundamentals Handbook. Module 1. 2015.

[23] LAMARSH JR, J. R. *Introduction to Nuclear Reactor Theory*. New York University, Larchmont, New York. 2001.

[24] STACEY W. M. *Nuclear reactor Physics*. 2º Edição. Georgia Institute of Technology, USA. 2007.

[25] Agência Internacional de Energia Atômica AIEA, *Nuclide map*. Disponível em: <https://www.iaea.org/newscenter/news/iaea-isotope-browser-app-now-available-in-multiple-languages>

[26] ROSE D. et al. *An innovative slim pulsed neutron logging tool*. SPWLA 56<sup>th</sup> Annual Logging Symposium, Society of Petrophysicists and Well-Log Analysts, Long Beach, California, USA, p. 18-22, 2015.

[27] NELLIS, D. O. ET AL. *Neutron Scattering and Gamma Ray Production Cross Sections for N, O, Al, Si, Ca and Fe*, Nuclear Chicago Corporation. Final Report, 1972.

[28] KNOLL, G. F; *Radiation Detection and Measurement*. John Wley and sons, 4ª ed, USA, 2010.

[29] CARDOSO, L. X; *Análise de radionuclídeos naturais e artificiais do solo e de produtos alimentícios do estado de Sergipe, principalmente da região do platô de Neópolis (SE)*. Tese de Ph. D. – Programa de pós-graduação em Física, Universidade Federal de Sergipe, 2012.

[30] AAECRE. AUSTRALIAN ATOMIC ENERGY COMMISSION RESEARCH ESTABLISHMENT. *A Guide and Instruction for Determining g-Ray Emission Rates With Germanium Detector Systems*. Debertain. Braunschweig, 1980.

[31] TAUHATA, L., SALATI, I., PRINZIO, R.D., PRINZIO, A. R.D; *Radioproteção e Dosimetria: Fundamentos*. Instituto de Radioproteção e Dosimetria – IRD/CENEN, 10ª revisão, 2014.

[32] LOPES J. M, MEDEIROS M. P. C, GARCÊZ R. W. D, FILGUEIRAS R. A, THALHOFER J. L, SILVA JÚNIOR W. F. R, SILVA A. X. *Comparison of simulated and experimental values of self-absorption correction factors for a fast and credible adjust in*

*efficiency curve of gamma spectroscopy*. Applied Radiation and Isotopes, P. 241-245, V. 141, 2018.

[33] REINA, L. SILVA, A. X. SUITA, J. C. INÊS, M. FACURE, A. S. SILVA, J. C. FURLANETTO, J. DOS SANTOS, J. R. , REBELLO, W. O. *Determination of neutron flux at IEN/CNEN Cyclotron facilities in order to estimate and minimize neutron dose rates received by occupationally exposed individuals*. International Nuclear Atlantic Conference, INAC, 2009.

**APÊNDICE A**

**Instituto de Engenharia Nuclear**  
**Reator Argonauta**  
**Ficha de Controle 1**

**Amostra:** Porta amostra vazio irradiado

**Contagem.**

Tempo de contagem: 8 Horas

Nuclídeo	Energia keV	Área	Erro %
Mn-56	846,8	0	0
Fe-59	1099	0	0
Fe-59	1291	0	0
Mn-56	1810,7	0	0

Operador: Alessandro

**Detector:** HPGe.

Comentário:

Os nuclídeos selecionados não são encontrados na natureza, a espectrometria gama foi realizada para provar a inexistência de regiões de interferência pós irradiação.

**Fontes usadas para calibração em energia:**

<sup>137</sup>Cs (IRD 40,2 kBq 23/06/2016), <sup>60</sup>Co (IRD 43,9 kBq 23/06/2016), <sup>22</sup>Na (Padrão Canberra), <sup>40</sup>K (Béquer-Marinelli Padrão Ortec).

Data de verificação da calibração: 30 / 09 / 18.

15 / 01 / 19.

Operador: Alessandro

**Instituto de Engenharia Nuclear**  
**Reator Argonauta**  
**Ficha de Controle 2**

**Amostra:** Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Pureza: 98% m: 2,1740 g

Data de preparação de amostra: 29 / 09 / 18. Operadora: Luciana

**Contagem de Bg.**

Tempo de contagem: 8 Horas (Fora de equilíbrio secular, m= 2,1740 g)

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Mn-56	846,8	0	0
Fe-59	1099	0	0
Fe-59	1291	0	0
Mn-56	1810,7	0	0

Operador: Alessandro

**Contagem pós irradiação.**

Data: 02 / 10 / 18. Horário de início: 14:46. Tempo de contagem: 1 hora

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Mn-56	846,8	246567	0,2
Fe-59	1099	0	0
Fe-59	1291	0	0
Kr-88	1369,5	36682	0,55
Mn-56	1810,7	33563	0,57

Data: 02 / 10 / 18. Horário de início: 15:56. Tempo de contagem: 1 hora

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Mn-56	846,8	180919	0,24
Fe-59	1099	0	0
Fe-59	1291	0	0
Kr-88	1369,5	34634	0,56
Mn-56	1810,7	23977	0,68

Operador: Rogério Chaffin

**Detector:** HPGe.

**Instituto de Engenharia Nuclear**  
**Reator Argonauta**  
**Ficha de Controle 3**

**Amostra: Feijão preto** m: 389,68 g

Data de preparação de amostra: 20 / 08 / 18. Operador: Leandro / José

**Contagem de Bg.**

Tempo de contagem: 8 Horas (em equilíbrio secular)

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Ac-228	93,3	339	9,06
Pb-212	238	169	13,37
Br-82	698	0	0
Kr-89	776,5	0	0
Br-82	827,8	0	0
Mn-56	846,8	0	0
Br-82	1044	0	0
Fe-59	1099	0	0
Fe-59	1291	0	0
K-40	1460	3094	1,83
Kr-88	1529	0	0
Mn-56	1810,7	0	0

**Amostra: Feijão preto** m: 5,9056 g

Data de preparação de amostra: 29 / 09 / 18. Operador: Alessandro

**Contagem de Bg.**

Tempo de contagem: 8 Horas (Fora de equilíbrio secular)

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Ac-228	93,3	0	0
Pb-212	238	18	23,57
Br-82	698	0	0
Kr-89	776,5	0	0
Br-82	827,8	0	0
Mn-56	846,8	0	0
Br-82	1044	0	0
Fe-59	1099	0	0
Fe-59	1291	0	0
Br-82	1317	0	0
K-40	1460	2530	1,99
Kr-88	1529	0	0
Mn-56	1810,7	0	0

Operador: Alessandro

**Amostra: Feijão preto** m: 5,9056 g

Data de preparação de amostra: 29 / 09 / 18. Operador: Alessandro

**Contagem pós irradiação.**

Data: 02 / 10 / 18. Horário de início: 14:46. Tempo de contagem: 1 hora

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Br-82	554,3	7094	1,42
Br-82	619,1	2464	3,48
Br-82	698	2330	2,83
Kr-89	776,5	6362	1,39
Br-82	827,8	1584	3,36
Mn-56	846,8	48413	0,47
Br-82	1044	1532	3,4
Fe-59	1099	0	0
Fe-59	1291	0	0
Kr-88	1369,5	3910	1,83
Kr-88	1529	33229	0,56
Mn-56	1810,7	6537	1,29

Operador: Alessandro

**Detector:** HPGe.

**Instituto de Engenharia Nuclear**  
**Reator Argonauta**  
**Ficha de Controle 4 (Segunda etapa)**

**Amostra:** Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Pureza: 98% m= 2,7554 g

Data de preparação de amostra: 13 / 12 / 18. Operador: Letícia

**Contagem de Bg.**

Tempo de contagem: 8 horas. (Fora de equilíbrio secular)

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Mn-56	846,8	0	0
Fe-59	1099	0	0
Fe-59	1291	0	0
Kr-88	1369,5	0	0
Mn-56	1810,7	0	0

Operador: Alessandro

**Detector:** HPGe.

**Contagem pós irradiação.**

Posição vertical com separador de  $6,35 \pm 0,02$  cm e absorvedor de polimetil-metacrilato (PMMA) com  $2,12 \pm 0,02$  cm de espessura.

Data: 17 / 01 / 19. Horário de início: 15:38. Tempo de contagem: 1 hora.

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Mn-56	846,8	-	-
Fe-59	1099	10406	1
Fe-59	1291	6767	1,23
Mn-56	1810,7	-	-

Operador: Alessandro

**Detector:** HPGe.

**Contagem pós irradiação.**

Posição vertical com separador de  $6,35 \pm 0,02$  cm e absorvedor de polimetil-metacrilato (PMMA) com  $2,12 \pm 0,02$  cm de espessura.

Data: 17 / 01 / 19. Horário de início: 16:46. Tempo de contagem: 1 hora.

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Mn-56	846,8	-	-
Fe-59	1099	10376	1
Fe-59	1291	6812	1,22
Mn-56	1810,7	-	-

Operador: Alessandro

**Detector:** HPGe.

**Amostra:** Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Pureza: 98% m= 2,7554 g

**Contagem pós irradiação.**

Posição horizontal sem separador.

Data: 22 / 01 / 19. Horário de início: 15:03. Tempo de contagem: 1 hora.

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Mn-56	846,8	-	-
Fe-59	1099	62698	0,41
Fe-59	1291	42188	0,49
Mn-56	1810,7	-	-

Operador: Alessandro

**Detector:** HPGe.

**Contagem pós irradiação.**

Posição horizontal sem separador.

Data: 22 / 01 / 19. Horário de início: 16:14. Tempo de contagem: 1 hora.

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Mn-56	846,8	-	-
Fe-59	1099	62717	0,41
Fe-59	1291	41891	0,49
Mn-56	1810,7	-	-

Operador: Alessandro

**Detector:** HPGe.

**Contagem pós irradiação.**

Posição horizontal sem separador.

Data: 22 / 01 / 19. Horário de início: 17:18. Tempo de contagem: 1 hora.

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Mn-56	846,8	-	-
Fe-59	1099	62414	0,41
Fe-59	1291	42056	0,49
Mn-56	1810,7	-	-

Operador: Alessandro

**Detector:** HPGe.



**Instituto de Engenharia Nuclear**  
**Reator Argonauta**  
**Ficha de Controle 5 (Segunda etapa)**

**Amostra: Feijão preto** m: 5,9086 g

Data de preparação de amostra: 29 / 09 / 18. Operador: Alessandro

**Contagem de Bg.**

Tempo de contagem: 8 horas. (Fora de equilíbrio secular, m= 5,9056 g)

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Mn-56	846,8	0	0
Fe-59	1099	0	0
Fe-59	1291	0	0
Kr-88	1369,5	0	0
Mn-56	1810,7	0	0

Operador: Alessandro

**Detector:** HPGe.

**Contagem pós irradiação.**

Posição horizontal sem separador.

Data: 23 / 01 / 19. Horário de início: 07:48. Tempo de contagem: 1 hora.

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Mn-56	846,8	-	-
Fe-59	1099	273	8,87
Fe-59	1291	100	17,87
Mn-56	1810,7	-	-

Operador: Alessandro

**Detector:** HPGe.

**Contagem pós irradiação.**

Posição horizontal sem separador.

Data: 24 / 01 / 19. Horário de início: 08:24. Tempo de contagem: 1 hora.

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Mn-56	846,8	-	-
Fe-59	1099	166	13,52
Fe-59	1291	104	16,79
Mn-56	1810,7	-	-

Operador: Alessandro

**Detector:** HPGe.

**Amostra: Feijão preto** m: 5,9086 g

**Contagem pós irradiação.**

Posição horizontal sem separador.

Data: 25 / 01 / 19. Horário de início: 09:58. Tempo de contagem: 1 hora.

Nuclídeo	Energia (keV)	Área	Erro %
Mn-56	846,8	-	-
Fe-59	1099	197	10,46
Fe-59	1291	131	12,76
Mn-56	1810,7	-	-

Operador: Alessandro

**Detector:** HPGe.

**Instituto de Engenharia Nuclear**  
**Reator Argonauta / Laboratório LAASC-COPPE-UFRJ**  
**Simulador LabSOCS**

Eficiência simulada para o porta amostra contendo  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , posição vertical

Energia (keV)	Eficiência Ajuste	Eficiência Simulada	Erro Percentual
45	0,00043	0,00043	15
60	0,0015	0,00148	10
80	0,00337	0,00334	10
100	0,00495	0,00499	10
150	0,00662	0,00673	10
200	0,00648	0,00649	8
300	0,00523	0,00516	8
500	0,00355	0,00354	6
700	0,00276	0,00278	6
1000	0,00217	0,00218	4
1400	0,00174	0,00173	4
2000	0,0013	0,00131	4

Eficiência simulada para o porta amostra contendo feijão preto, posição vertical

Energia (keV)	Eficiência Ajuste	Eficiência Simulada	Erro Percentual
45	0,00662	0,00649	15.0
60	0,0109	0,01116	10.0
80	0,01408	0,01398	10.0
100	0,01507	0,01483	10.0
150	0,01379	0,01375	10.0
200	0,01157	0,01167	8.0
300	0,00832	0,00836	8.0
500	0,00525	0,00523	6.0
700	0,00391	0,0039	6.0
1000	0,00291	0,00291	4.0
1400	0,00221	0,0022	4.0
2000	0,0016	0,0016	4.0

**Instituto de Engenharia Nuclear**  
**Reator Argonauta / Laboratório LAASC-COPPE-UFRJ**  
**Simulador LabSOCS**

Eficiência simulada para o porta amostra contendo  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , posição horizontal

Energia (keV)	Eficiência Ajuste	Eficiência Simulada	Erro Percentual
45	0,00451	0,00459	15
60	0,01848	0,01818	10
80	0,04358	0,04347	10
100	0,06339	0,06431	10
150	0,07928	0,07992	10
200	0,07353	0,07335	8
300	0,05583	0,05530	8
500	0,03614	0,03611	6
700	0,02751	0,02765	6
1000	0,02109	0,02112	4
1400	0,01643	0,01638	4
2000	0,01201	0,01202	4

Eficiência simulada para o porta amostra contendo feijão preto, posição horizontal

Energia (keV)	Eficiência Ajuste	Eficiência Simulada	Erro Percentual
45	0,05400	0,05298	15.0
60	0,10011	0,10240	10.0
80	0,13626	0,13535	10.0
100	0,14743	0,14542	10.0
150	0,13287	0,13228	10.0
200	0,10918	0,10988	8.0
300	0,07625	0,07664	8.0
500	0,04704	0,04695	6.0
700	0,03476	0,03472	6.0
1000	0,02560	0,02563	4.0
1400	0,01929	0,01933	4.0
2000	0,01383	0,01383	4.0

## APÊNDICE B

## Reator Argonauta

## Controle de operação, planilha de ativação neutrônica.

Amostra 1:  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  m= 2,1740 g Posição: A. Colimador: Grafite.  
 Amostra 2: **Feijão preto** m= 5,9086 g Posição: B. Colimador: Grafite.  
 Amostra 3:  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  m= 2,7554 g Posição: A. Colimador: Grafite.

Potência 340W, Canal J9.

Primeira etapa							
N°	Número da Operação	Amostra	Horários das operações			Data	Operador
			Início	Crítico	Fim		
1	6118	1	09:20	09:50	11:50	02 / 10 / 18	André
2	6118	2	09:20	09:50	11:50	02 / 10 / 18	André
Segunda etapa							
6	6144	3	9:24	9:53	11:53	19 / 12 / 18	Gadelha
7	6144	2	9:24	9:53	11:53	19 / 12 / 18	Gadelha
8	6145	3	8:40	8:59	11:00	27 / 12 / 18	André
9	6145	2	8:40	8:59	11:00	27 / 12 / 18	André
10	6146	3	9:58	10:20	12:20	07 / 01 / 19	Flávio
11	6146	2	9:58	10:20	12:20	07 / 01 / 19	Flávio
12	6147	3	9:24	9:41	11:41	08 / 01 / 19	Flávio
13	6147	2	9:24	9:41	11:41	08 / 01 / 19	Flávio
14	6148	3	9:23	9:49	11:49	09 / 01 / 19	Flávio
15	6148	2	9:23	9:49	11:49	09 / 01 / 19	Flávio
16	6149	3	10:41	11:12	13:12	10 / 01 / 19	Gadelha
17	6149	2	10:41	11:12	13:12	10 / 01 / 19	Gadelha