



ESTUDO DA APLICAÇÃO DA ANÁLISE POR ATIVAÇÃO COM NÊUTRONS PARA A
VERIFICAÇÃO DA INTEGRIDADE DA CIMENTAÇÃO EM POÇOS DE PETRÓLEO
UTILIZANDO SIMULAÇÃO MONTE CARLO

Nadeem Ahmad Tahir

Dissertação de Mestrado apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia Nuclear, COPPE, da Universidade Federal do Rio de Janeiro, como parte dos requisitos necessários à obtenção do título de Mestre em Engenharia Nuclear.

Orientador: Ademir Xavier da Silva

Rio de Janeiro
Outubro de 2018

ESTUDO DA APLICAÇÃO DA ANÁLISE POR ATIVAÇÃO COM NÊUTRONS PARA A
VERIFICAÇÃO DA INTEGRIDADE DA CIMENTAÇÃO EM POÇOS DE PETRÓLEO
UTILIZANDO SIMULAÇÃO MONTE CARLO

Nadeem Ahmad Tahir

DISSERTAÇÃO SUBMETIDA AO CORPO DOCENTE DO INSTITUTO ALBERTO LUIZ
COIMBRA DE PÓS-GRADUAÇÃO E PESQUISA DE ENGENHARIA (COPPE) DA
UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO COMO PARTE DOS REQUISITOS
NECESSÁRIOS PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE MESTRE EM CIÊNCIAS EM
ENGENHARIA NUCLEAR.

Examinada por:

Prof. Ademir Xavier da Silva, D.Sc.

Dr. Emílio César Cavalcante Melo da Silva, Ph.D.

Prof. Wilson Freitas Rebello da Silva Júnior, D.Sc.

Prof. Edmilson Monteiro de Souza, D.Sc.

RIO DE JANEIRO – RJ, BRASIL

OUTUBRO DE 2018

Tahir, Nadeem Ahmad

Estudo da Aplicação da Análise por Ativação com Nêutrons para a Verificação da Integridade da Cimentação em Poços de Petróleo Utilizando Simulação Monte Carlo / Nadeem Ahmad Tahir. – Rio de Janeiro: UFRJ/COPPE, 2018.

XIV, 101 f.: il.; 29,7 cm.

Orientadores: Ademir Xavier da Silva

Dissertação (mestrado) – UFRJ/ COPPE/ Programa de Engenharia Nuclear, 2018.

Referências Bibliográficas: f. 56-62.

1. Análise por Ativação com Nêutrons. 2. Simulações Monte Carlo. 3. Integridade de Poços de Petróleo. I. Silva, Ademir Xavier da. II. Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, Programa de Nuclear. III. Título.

Em dedicação aos meus pais, Wasim e Anila, à
minha esposa, Nida, e aos meus irmãos e irmãs,
Ijaz, Naema, Aila e Takreem.

AGRADECIMENTOS

Agradeço a Allah, meu Criador e Sustentador, com Cujas bênçãos pude chegar onde cheguei e com cujas capacidades e dádivas pude concluir mais essa etapa na caminhada da vida. Que Ele continue abençoando-me e à minha família com o melhor de sua mercê nesse mundo e no outro. Amém.

O desejo dos meus queridos pais, Sr. Wasim e Sra. Anila, pela minha educação de alto nível, assim como o desejo dos meus antepassados e do nosso querido Califa – líder internacional da Comunidade Muçulmana Ahmadia – pela educação de alto nível na minha família e na minha comunidade foi, e continua sendo, sem dúvida, um fator impulsionador que me fortifica nessa trajetória. Agradeço-lhes a todos e espero sempre retribuir com os melhores frutos.

Agradeço à minha querida esposa, Nida, pelo seu amor e o seu apoio incondicionais, e aos meus queridos irmãos e irmãs, Ijaz, Naema, Aila e Takreem, pelo carinho e pela vivência de todo dia.

Também agradeço ao meu orientador, Prof. Ademir, pelo apoio e pela confiança no meu trabalho, e a toda a equipe do PEN pela excelente estrutura de trabalho proporcionada.

Obrigado, por fim, a todos que de alguma forma contribuíram na minha caminhada até aqui.

Resumo da Dissertação apresentada à COPPE/UFRJ como parte dos requisitos necessários para a obtenção do grau de Mestre em Ciências (M.Sc.)

ESTUDO DA APLICAÇÃO DA ANÁLISE POR ATIVAÇÃO COM NÊUTRONS À
VERIFICAÇÃO DA INTEGRIDADE DA CIMENTAÇÃO EM POÇOS DE PETRÓLEO
UTILIZANDO SIMULAÇÃO MONTE CARLO

Nadeem Ahmad Tahir

Outubro/2018

Orientador: Ademir Xavier da Silva

Programa: Engenharia Nuclear

A integridade dos poços de petróleo em todas as suas estruturas em geral, e na cimentação dos mesmos – responsável pela firmação dos poços na formação terrestre adjacente –, em particular, é crucial para o funcionamento seguro dos mesmos e, também, para o seu abandono seguro na etapa pós extração. A verificação da integridade da bainha cimentícia dos poços de petróleo é majoritariamente feita com o uso de ferramentas de ultrassom. Apesar de fornecer bons resultados, essa metodologia acaba sendo muito dispendiosa em termos de variáveis temporais e financeiras em virtude das condições operacionais nos poços de petróleo. Estudamos, no presente trabalho, a possibilidade da utilização da técnica de análise por ativação com nêutrons para esse fim, baseando-se nas propriedades da emissão de raios gama característicos pelos elementos com a excitação de seus núcleos. O estudo foi feito utilizando diferentes configurações de simulações em Monte Carlo feitas com o código MCNP utilizando uma fonte de nêutrons de 14 MeV. Os resultados mostram que essa metodologia de verificação da integridade da bainha cimentícia nos poços de petróleo é viável e que a distinção entre materiais, baseando-se nessa técnica, pode ser feita a partir dos valores absolutos dos picos de energia registrados experimentalmente, dos intervalos de valores das razões de emissão entre picos de diferentes elementos e da variação dessas razões com as espessuras dos materiais.

Abstract of Dissertation presented to COPPE/UFRJ as a partial fulfillment of the requirements for the degree of Master of Science (M.Sc.)

STUDY OF THE APPLICATION OF THE NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS TO
THE VERIFICATION OF THE CIMENTATION IN PETROLEUM WELLS USING
MONTE CARLO SIMULATIONS

Nadeem Ahmad Tahir

October/2018

Advisor: Ademir Xavier da Silva

Department: Nuclear Engineering

The integrity of all the oil wells structures, in general, and the cementing of the wells – responsible for the fixation of the wells in the adjacent terrestrial formation –, in particular, is crucial for their safe operation and also for their safe abandonment in the post extraction stage. The verification of the integrity of the cementitious sheath of petroleum wells is mostly done with the use of ultrasonic tools. Despite providing good results, this verification method ends up being very costly in terms of time and financial variables due to the operational conditions in the petroleum wells. In the present work, we study the possibility of using neutron activation analysis for this purpose – based on the properties of the characteristic gamma rays emission by the elements with the excitation of their nucleus. The study was carried out using different configurations of Monte Carlo simulations made with the MCNP code using a 14 MeV neutron source. The results show that this method of verification of the cementitious sheath integrity in oil wells is viable and that the distinction between the involved materials, based on this technique, can be performed by the analysis of the absolute values of the energy peaks recorded experimentally, by the ranges of emission ratios between peaks of different elements and by the variation of these ratios with the materials thicknesses.

SUMÁRIO

1 – Introdução	1
2 – Fundamentação Teórica	3
2.1 – A Cimentação dos Poços de Petróleo	3
2.2 – Testes de Verificação da Integridade da Cimentação em Poços de Petróleo...	4
2.3 – A Análise por Ativação com Nêutrons	6
2.3.1 – O Modelo Nuclear de Camadas	7
2.3.2 – O Nêutron e as suas Interações com o Núcleo	8
2.3.3 – Classificação dos Nêutrons com Base em suas Energias	9
2.3.4 – Seção de Choque	9
2.3.5 – Principais Interações Nêutron-Núcleo Possíveis	11
2.3.5.1 – Processos de Espalhamento	12
2.3.5.2 – Processos de Absorção	13
2.3.6 – Os Tipos de Análise por Ativação com Nêutrons	15
3 – Revisão Bibliográfica	17
4 – Modelagem Computacional	22
5 – Resultados e Discussões.....	31
6 – Conclusões e Perspectivas Futuras	54
7 – Referências bibliográficas	56
APÊNDICE A – Comparações entre Simulações e Dados.....	63
APÊNDICE B – Cálculo da Composição do Cimento Classe G usado	74
APÊNDICE C – Cálculos Auxiliares e Dados de Ajustes	77
APÊNDICE D – Balanço de Partículas nas Simulações	82
APÊNDICE E – Código MCNP Usado nas Simulações	85

LISTA DE FIGURAS

Figura 2.1 – Desenho esquemático da seção transversal de um poço.

Figura 2.2 – Esquema ilustrativo de um poço com falhas na cimentação.

Figura 2.3 – Esquema de onda de ultrassom usada para verificações em poços de petróleo.

Figura 2.4 – Esquema ilustrativo da atuação da onda de ultrassom em poços de petróleo.

Figura 2.5 – Núcleo composto de alumínio e as principais reações de decaimento.

Figura 2.6 – Duas formações possíveis do núcleo composto de Zinco com três modos de decaimento possíveis.

Figura 2.7 – Esquema ilustrativo simplificado dos processos de ativação nuclear com nêutrons com as principais reações envolvidas.

Figura 4.1 – Composição do solo utilizado na simulação do modelo experimental com o MCNP.

Figura 4.2 – Esquema ilustrativo do modelo idealizado simulado no MCNP.

Figura 5.1 – Espectros obtidos para diferentes espessuras de solo circundando a camada esférica de aço. Espectros para espessuras de 2 cm (no topo à esquerda), 3 cm (no topo à direita), 4 cm (em baixo à esquerda), 5 cm (no topo à direita) e 6 cm (na base inferior).

Figura 5.2 – Espectros obtidos para diferentes espessuras de cimento circundando a camada esférica de aço. Espectros para espessuras de 2 cm (no topo à esquerda), 3 cm (no topo à direita), 4 cm (em baixo à esquerda), 5 cm (no topo à direita) e 6 cm (na base inferior).

Figura 5.3 – Espectros obtidos para diferentes espessuras de solo circundando a camada esférica de aço sobrepostos.

Figura 5.4 – Espectros obtidos para diferentes espessuras de cimento circundando a camada esférica de aço sobrepostos.

Figura 5.5 – Espectros do cimento e do solo sobrepostos na configuração de 6 cm para as suas camadas esféricas.

Figura 5.6 – Espectros de cada um dos materiais presentes em nossas simulações, a saber, ar (canto superior esquerdo), aço (canto superior direito), cimento (canto inferior esquerdo) e solo (canto inferior direito). Esses espectros são para os respectivos materiais preenchendo uma camada esférica de 6 cm de espessura.

Figura 5.7 – Espectro do Solo com a presença de Nitrogênio no lugar do Silício para uma camada esférica de 4 cm de solo envolvendo uma camada de 2 cm de aço que envolve uma camada de 1 cm de ar.

Figura 5.8 – Espectros do aço para diferentes camadas desse material envolvendo a camada de ar.

Figura 5.9 – Espectros do solo (à esquerda) e do cimento (à direita) com as contagens do aço subtraídas de seus espectros.

Figura 5.10 – Espectro do solo com espessura da camada de esférica de 2 cm sobreposto com o mesmo espectro com as contagens da camada de aço subtraídas do mesmo.

Figura 5.11 – Espectro do cimento com espessura da camada de esférica de 2 cm sobreposto com o mesmo espectro com as contagens da camada de aço subtraídas do mesmo.

Figura 5.12 – Ajuste da variação do pico de oxigênio no espectro do solo com a variação da espessura da camada de solo. A variação linear se torna evidente.

Figura 5.13 – Ajuste da variação do pico de oxigênio no espectro do cimento com a variação da espessura da camada de solo. A variação linear se torna evidente.

Figura 5.14 – Espectros obtidos para simulações com cimento circundado por solo após a camada de aço nas configurações 2/2 (no topo à esquerda), 2/3 (no topo à direita), 2/4 (em baixo à esquerda) e 3/3 (em baixo à direita).

Figura 5.15 – Espectros obtidos na configuração geométrica com uma camada esférica de solo envolvendo a camada esférica de cimento para diferentes espessuras das camadas de solo e de cimento superpostos.

Figura 5.16 – Razões da razão de emissão entre diferentes elementos no solo e no cimento em função da espessura do solo.

Figura 5.17 – Razão de emissão [O/Ca] em função da espessura do solo.

Figura 5.18 – Razão de emissão [Al/Ca] em função da espessura do solo.

Figura 5.19 – Razão de emissão [O/Al] em função da espessura do solo.

Figura 5.20 – Razão de emissão [O/Si] em função da espessura do solo.

Figura 5.21 – Razão de emissão [Al/Si] em função da espessura do solo.

Figura 5.22 – Razão de emissão [Ca/Si] em função da espessura do solo.

Figura 5.23 – Exemplo de espectro de nêutrons detectado nas simulações ilustrando que a maioria deles interage pouco com os materiais, saindo com energias próximas das iniciais.

Figura A.1 – Espectros obtidos no MCNP para: Hidrogênio (à esquerda) e Titânio (à direita).

Figura A.2 – Espectros obtidos no MCNP para: Cálcio (à esquerda) e Potássio (à direita).

Figura A.3 – Espectros obtidos no MCNP para: Alumínio (à esquerda) e Magnésio (à direita).

Figura A.4 – Espectros obtidos no MCNP para: Sódio (à esquerda) e Tungstênio (à direita).

Figura A.5 – Espectros obtidos no MCNP para: Molibidênio (à esquerda) e Níquel (à direita).

Figura A.6 – Espectros obtidos no MCNP para: Ferro (à esquerda) e Manganês (à direita).

Figura A.7 – Espectros obtidos no MCNP para: Crômio (à esquerda) e Vanádio (à direita).

Figura A.8 – Espectros obtidos no MCNP para: Enxofre (à esquerda) e Fósforo (à direita).

Figura A.9 – Espectros obtidos no MCNP para: Silício (à esquerda) e Carbono (à direita).

Figura A.10 – Espectros obtidos no MCNP para: Argônio (à esquerda) e Oxigênio (à direita).

Figura A.11 – Espectros obtidos no MCNP para: Nitrogênio.

Figura E.1 – Código dos blocos de células e de superfícies utilizados na simulação.

Figura E.2 – Código do bloco de dados utilizado na simulação.

LISTA DE TABELAS

Tabela 4.1 – Composição do Cimento Classe G encontrada em uma das fontes [33].

Tabela 4.2 – Composição do Cimento Classe G encontrada em uma das fontes [34].

Tabela 4.3 – Composição do Cimento Classe G encontrada em uma das fontes [35].

Tabela 4.4 – Composição do Cimento Classe G encontrada em uma das fontes [36].

Tabela 4.5 – Composição média do Cimento Classe G obtida a partir da interpolação dos valores das composições dessa classe de cimento encontrados na literatura.

Tabela 4.6 – Composição elementar do cimento classe G com os respectivos códigos do elemento no MCNP.

Tabela 4.7 – Principais reações utilizadas no presente trabalho.

Tabela A.1 – Comparação dos picos obtidos nas simulações feitas no MCNP com os valores dos picos tabelados para cada um dos elementos de interesse.

Tabela B.1 – Composição Elementar do Cimento Classe G calculada para o uso desse material nas simulações com MCNP no presente trabalho.

Tabela C.1 – Valores dos picos de emissão dos elementos de interesse e das razões de emissão de interesse com a espessura da camada esférica de cimento variando numa geometria ar+aço+solo (camadas de materiais de dentro para fora).

Tabela C.2 – Valores dos picos de emissão dos elementos de interesse e das razões de emissão de interesse com a espessura da camada esférica de solo variando numa geometria ar+aço+solo (camadas de materiais de dentro para fora).

Tabela C.3 – Resultado do Ajuste Linear da razão $[O]/[Ca]$ variando com a espessura do solo.

Tabela C.4 – Resultado do Ajuste Linear da razão $[Al]/[Ca]$ variando com a espessura do solo.

Tabela C.5 – Resultado do Ajuste Linear da razão $[O]/[Al]$ variando com a espessura do solo.

Tabela C.6 – Resultado do Ajuste Linear da razão $[O]/[Si]$ variando com a espessura do solo.

Tabela C.7 – Resultado do Ajuste Linear da razão $[Al]/[Si]$ variando com a espessura do solo.

Tabela C.8 – Resultado do Ajuste Linear da razão $[Ca]/[Si]$ variando com a espessura do solo.

Tabela D.1 – Balanço e saldo dos nêutrons com as principais reações e interações ocorridas ao longo de suas trajetórias nas simulações (exemplo para a configuração geométrica com a fonte circundada por 1 cm de ar, 1 cm de aço, 4 cm de cimento e 10 cm de solo).

Tabela D.2 – Balanço e saldo dos fótons com as principais reações e interações ocorridas ao longo de suas trajetórias nas simulações (exemplo para a configuração geométrica com a fonte circundada por 1 cm de ar, 1 cm de aço, 4 cm de cimento e 10 cm de solo).

LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

COPPE - Instituto Alberto Luiz Coimbra de Pós-Graduação e Pesquisa de Engenharia

PEN – Programa de Engenharia Nuclear

UFRJ – Universidade Federal do Rio de Janeiro

NAA – Neutron Activation Analysis (Análise por Ativação com Nêutrons)

INAA – Instrumental Neutron Activation Analysis (Análise Instrumental por Ativação com Nêutrons)

RNAA – Radiochemical Neutron Activation Analysis (Análise Radioquímica por Ativação com Nêutrons)

PGNAA – Prompt Gamma Neutron Activation Analysis (Análise por Ativação com Nêutrons com Raios Gama Prontos)

FNAA – Fast Neutron Activation Analysis (Análise por Ativação com Nêutrons Rápidos)

PFNA – Pulsed Fast Neutron Activation Analysis (Análise por Ativação com Nêutrons Rápidos Pulsantes)

PFTNA – Pulsed Fast/Thermal Neutron Activation Analysis (Análise por Ativação com Nêutrons Rápidos/Térmicos Pulsantes)

API – Associated Particle Imaging (Imagem por Partícula Associada)

Capítulo 1

Introdução

A indústria petrolífera exerce um papel fundamental na geopolítica global atual, sendo, praticamente, a base da economia mundial e, também, uma das vertentes mais lucrativas da economia há mais de um século [1, 2]. A extração da petróleo requer práticas estritas de segurança – tanto no momento inicial da perfuração dos poços, quanto na etapa final do abandono dos mesmos – na determinação da integridade estrutural dos poços.

A certificação dessa estabilidade na etapa de abandono pode ser feita utilizando-se uma variedade de técnicas, dentre as quais a verificação por meio de técnicas de ultrassom é a mais comumente empregada e fornece ótimos resultados. No entanto, para a análise da integridade em poços de petróleo, ela acaba sendo muito dispendiosa em função dos procedimentos necessários para o seu uso nos poços – tanto em termos de tempo, quanto em termos financeiros – e, com o avanço tecnológico da modernidade, há buscas por novas formas mais práticas e econômicas para esse fim.

Uma possibilidade para essa verificação – que será desenvolvida no presente trabalho de mestrado – é a análise por ativação com nêutrons. Nessa técnica, uma fonte de nêutrons é utilizada para excitar os núcleos dos átomos que compõe determinado material. Esses núcleos excitados, então, decaem para seus estados fundamentais e, nesse processo, emitem radiações gama que são características de cada isótopo de um elemento. A análise dos espectros de emissão, dessa forma, permite não só a identificação e a distinção dos elementos que constituem o material em questão, como, também, permitem calcular as suas concentrações, possibilitando a aquisição de diversas informações relevantes sobre a composição do material.

No caso dos poços de petróleo, são excitados os núcleos dos átomos que compõe os materiais componentes do espaço anular do poço e obtidos os seus espectros de emissão. Dessa forma, comparando a composição estrutural ideal com aquela obtida pela caracterização dos materiais experimentalmente, pode ser feita a identificação das falhas na estrutura da bainha de cimento que envolve a estrutura de aço do poço – fazendo a sua junção com o ambiente geográfico – e o estudo da possível correção da mesma ou o abandono seguro do referido poço.

A presente dissertação foi dividida em seis capítulos, começando por essa breve introdução. No segundo capítulo, foi feita a fundamentação teórica do trabalho, apresentando as características das reações nucleares – principalmente as reações com nêutrons e com fótons –, os princípios e variedades das análises por ativação com nêutrons e os conceitos mais importantes envolvidos nessa análise. Uma breve revisão bibliográfica sobre o tema é feita no capítulo três, enquanto no quarto capítulo, faz-se a descrição do procedimento experimental adotado para esse trabalho e uma introdução ao código Monte Carlo N-Particle (MCNP) – ferramenta usada para a simulação dos experimentos. Os resultados e a discussão a cerca dos mesmos é feita no quinto capítulo e, por fim, o sexto capítulo traz as principais conclusões elaboradas com base nos resultados obtidos e apresentados no capítulo cinco e faz projeções a respeito de melhorias que podem ser implementadas e dos rumos que podem ser seguidos em trabalhos futuros nessa linha de pesquisa.

Capítulo 2

Fundamentação Teórica

2.1 – A Cimentação dos Poços de Petróleo

A cimentação de um poço de petróleo pode ser dividida em dois tipos principais: cimentação primária e cimentação secundária [3].

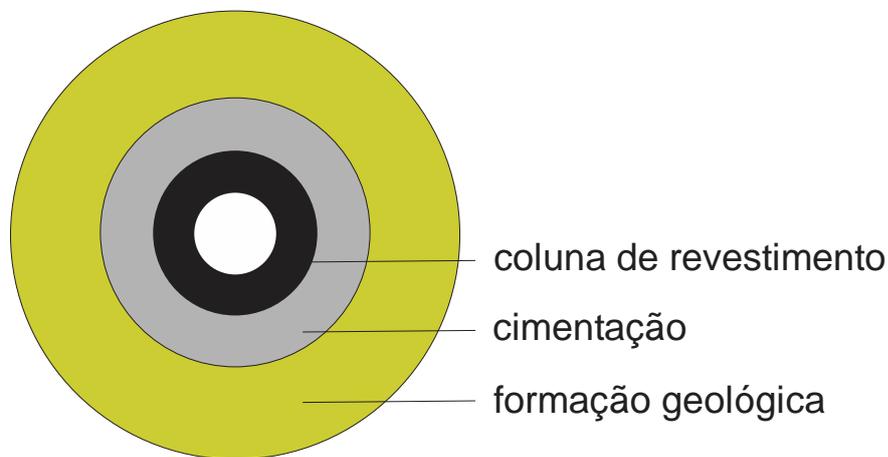


Figura 2.1: Desenho esquemático da seção transversal de um poço

[Fonte: Elaborada pelo Autor].

Após a perfuração do poço, insere-se nele a coluna de revestimento e, em seguida, o espaço anular entre a tubulação de revestimento e as paredes do poço é preenchida com cimento, de modo a fixar a tubulação e evitar que haja mistura entre os fluidos das diversas zonas permeáveis atravessadas pelo poço, conforme ilustrado na Figura 2.1. Esse processo constitui a chamada cimentação primária [4]. Já a cimentação secundária consiste na correção de possíveis falhas ocorridas na cimentação primária. Ela é de extrema importância quando a cimentação primária apresenta alguma falta, uma vez que a não correção de eventuais faltas com o devido isolamento hidráulico entre as diferentes zonas pode resultar em danos ao poço, custos adicionais futuros e falhas na produção de petróleo [5], vide Figura 2.2.

De maneira análoga, no ato do abandono do poço, verificações estritas devem ser feitas para a averiguação da estabilidade estrutural do mesmo. Os custos para o abandono são muito elevados, chegando, algumas vezes, a serem até maiores que os da instalação [6]. Sendo assim, a possibilidade de minimização dos mesmos em qualquer etapa é de grande vantagem econômica para as empresas petrolíferas.

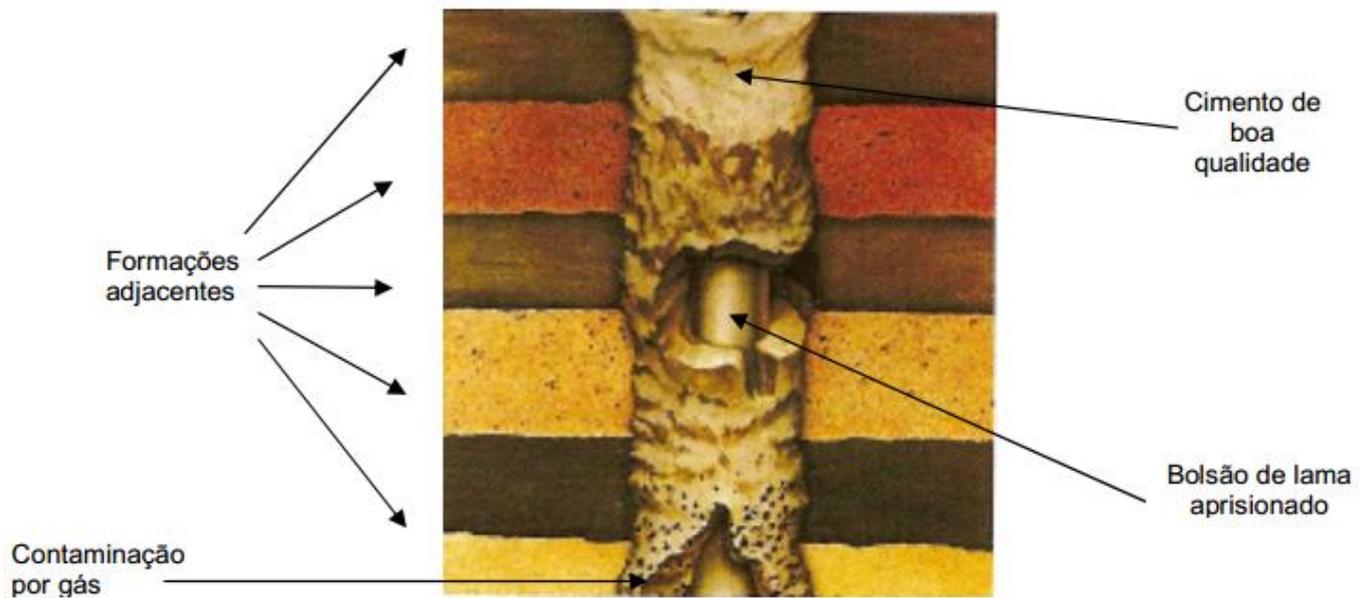


Figura 2.2: Esquema ilustrativo de um poço com falhas na cimentação [4].

2.2 – Testes de Verificação da Integridade da Cimentação em Poços de Petróleo

Existem alguns mecanismos de avaliação da cimentação, dentre eles, testes hidráulicos, testes de pressão com diferencial positivo ou negativo, perfis de temperatura, traçadores radioativos e perfis sônicos e ultrassônicos, sendo o último o método mais usado que permite efetivamente avaliar a qualidade da cimentação.

No método do ultrassom, um transmissor emite sons pulsados de alta frequência – geralmente entre 200 kHz e 700 kHz – e um receptor mede o eco do pulso ressonante do tubo de aço, conforme as ilustrações das Figuras 2.3 e 2.4. A medida da atenuação da amplitude da ressonância permite o cálculo da impedância acústica do cimento. Quanto maior for essa impedância, melhor será a integridade do cimento [7, 8].

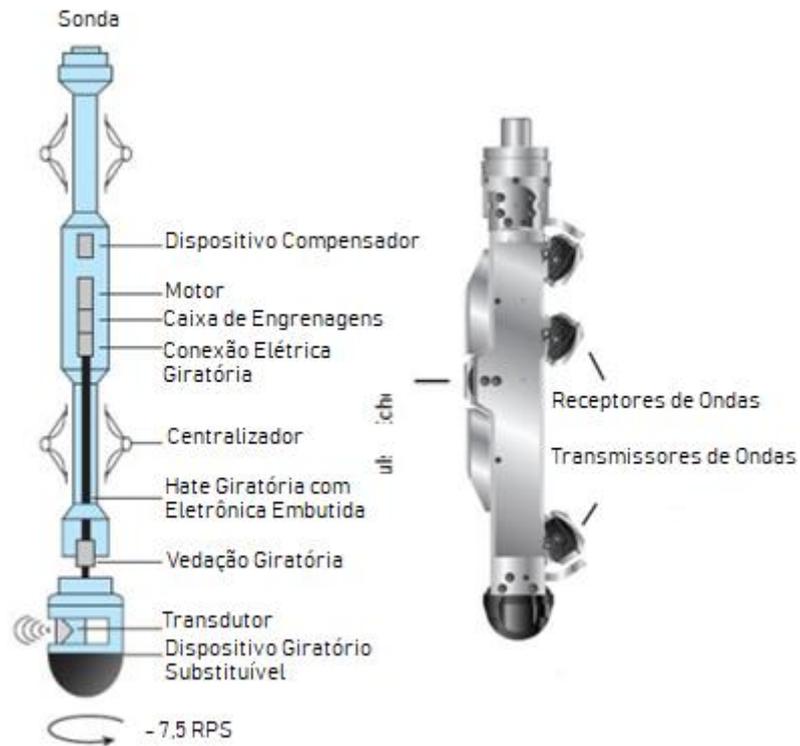


Figura 2.3: Esquema de sonda de ultrassom usada para verificações em poços de petróleo [8].

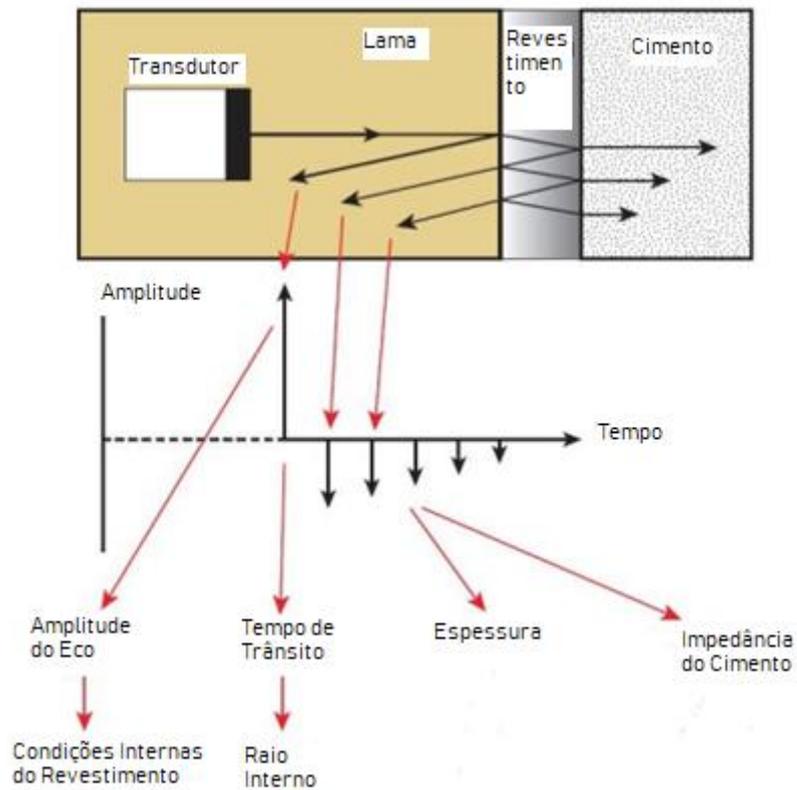


Figura 2.4: Esquema ilustrativo da atuação da onda de ultrassom em poços de petróleo [8].

O grande problema do emprego do método do ultrassom no procedimento de avaliação estrutural dos poços de petróleo para o seu seguro abandono é que o aparelho necessita estar em contato direto com a estrutura metálica para a obtenção dos resultados adequados. Como, para o poço entrar em operação, um tubo de produção é inserido dentro do revestimento, é necessário, primeiro, retirar toda a tubulação interna, colocar o equipamento em contato direto com a tubulação que faz interface com a bainha de cimento e, depois, realizar o procedimento de medida, o que torna o processo custoso e dispendioso, justificando a pesquisa por uma técnica que possa minimizar as variáveis temporal e financeira envolvidas nesse processo.

A análise por ativação com nêutrons tem base na propriedade de elementos emitirem radiação característica do elemento quando o seu núcleo é excitado. Uma vez que essa radiação emitida é característica do elemento e independe da forma – celular ou molecular – em que o mesmo se encontra, a composição elementar com as respectivas concentrações pode ser obtida por meio da espectroscopia dos raios gama emitidos. Com a utilização dessa técnica, a composição e a concentração do material que envolve a estrutura de aço dos poços de petróleo pode ser obtida, levando à identificação de falhas na cimentação com base nas informações sobre as espessuras de cimento componentes da bainha cimentícia, sem a necessidade de remoção do tubo de produção, com a conseqüente economia de tempo e dinheiro.

2.3 – A Análise por Ativação com Nêutrons

A técnica de análise por ativação com nêutrons explora características do núcleo atômico, aproveitando-se de suas interações com nêutrons em que ocorre liberação de determinadas quantidades de energia na forma de radiação que, com base nos princípios físicos, são características de cada um dos núcleos, levando à identificação do núcleo e, portanto, do elemento emissor. Apresentamos, nas subseções seguintes, o resumo do modelo teórico que possibilita essa análise e as suas características principais.

2.3.1 – O Modelo Nuclear de Camadas

Assim como, ao longo do tempo, tiveram lugar diferentes modelos atômicos, existem, também, diferentes modelos nucleares. Os mais importantes são o modelo da gota, o modelo do gás de Fermi, o modelo de camadas e o modelo coletivo, que, em diferentes contextos, leva em conta aspectos importantes de todos os modelos anteriores.

O modelo de camadas se baseia na analogia do núcleo com o átomo em si e com a sua estrutura orbital eletrônica [9]. Como sabemos, as órbitas eletrônicas obedecem ao princípio de exclusão de Pauli e levam a determinadas configurações de preenchimento que são muito mais estáveis do que as outras. Os números de elétrons que levam a essas configurações estáveis são conhecidos como números mágicos e os átomos que tem um número mágico de elétrons são átomos extremamente estáveis. Nesse modelo, ainda, um elétron de uma órbita qualquer pode pular para a órbita seguinte ao ganhar energia. Da mesma forma, um elétron pode liberar energia por meio da emissão de raios X e cair para uma camada mais interna.

Embora pareça estranho imaginar um modelo de camadas nucleares, semelhante ao modelo de camadas atômicas, em que os prótons e os nêutrons obedecessem ao princípio de exclusão de Pauli e formassem, também, camadas orbitais nucleares, essa é a explicação que os resultados experimentais nos levam a inferir, sendo, o principal deles, a presença de números mágicos de nucleons. Observe-se que os núcleos em que os prótons ou os nêutrons apresentam-se em determinadas quantidades numéricas são muito mais estáveis do que os outros. Para os prótons, por exemplo, os números mágicos observados são $Z = 2, 8, 20, 28, 50$ e 82 , enquanto que, para os nêutrons, observa-se a mesma sequência de números mágicos acrescida do número mágico $N = 126$. Os núcleos que apresentam números mágicos tanto para os prótons, quanto para os nêutrons, são conhecidos como núcleos duplamente mágicos e apresentam estabilidade ainda maior [9].

Além da maior força de ligação, diversos outros fatores levam à corroboração do modelo de camadas nucleares. Os núcleos mágicos, por exemplo, apresentam uma quantidade de isótopos e isótonos muito maior que os seus núcleos vizinhos. Os momentos de quadrupolos elétricos que surgem dentro do núcleo a partir da distribuição esférica de carga também desaparecem nos núcleos mágicos. Além disso, a seção de choque de captura de nêutrons também apresenta uma queda aguda nos núcleos

mágicos em relação aos núcleos em suas vizinhanças. Todos esse fatos fortalecem o modelo nuclear de camadas.

A emissão de raios X por desexcitação atômica é bem conhecida há tempos. Nesse efeito, um átomo que é levado a um estado excitado (com um elétron ganhando energia e indo para uma camada mais energética), libera energia na forma de raios X ao voltar para o estado normal (com o elétron liberando energia e voltando à camada inferior). Uma vez que a configuração eletrônica de cada átomo é distinta e a diferença entre os níveis de energia entre as camadas é diferente para cada átomo, em função das suas cargas eletrônicas, a espectrometria dessa radiação leva à identificação do elemento atômico em questão [10].

No caso dos núcleos, um fenômeno similar tem lugar. Ao sofrer uma perturbação de energia suficiente, um núcleo é levado a um estado excitado e, ao retornar para o estado fundamental, libera energia na forma de raios gama. Esses raios gama emitidos, portanto, possuem, também, energias discretas característicos de cada um dos núcleos – em função do número de nucleons contidos no mesmo e, portanto, das forças nucleares de intensidades diferentes atuantes em cada núcleo – e a espectrometria dessa radiação leva à caracterização do núcleo e, portanto, à identificação do elemento atômico presente na amostra que o contém [11].

Apesar de a determinação multielementar poder ser realizada com base na emissão de raios X pela análise espectral atômica, a radiação de fundo da amostra, produzida devido às emissões beta e aos raios X secundários, configura uma grande limitação para essa vertente de análise. A análise por ativação com nêutrons, contudo, não apresenta esse problema e pode ser vastamente explorada para a determinação multielementar de dada amostra.

2.3.2 – O Nêutron e as Suas Interações com o Núcleo

Os nêutrons têm carga elétrica nula e, por isso, não sofrem interação coulombiana ao aproximarem-se do núcleo, não tendo, portanto, a sua energia cinética alterada. Dessa forma, nêutrons de praticamente qualquer energia podem interagir com o núcleo dos átomos, podendo causar reações nucleares de diferentes tipos. A probabilidade de ocorrer um tipo de interação ou outro depende tanto do núcleo – alvo com que o nêutron irá interagir –, quanto da energia do nêutron incidente. Essas probabilidades são muito sensíveis ao número de massa dos núcleos e à energia dos

neutrons incidentes, podendo variar significativamente com a alteração de uma única unidade no número de massa do núcleo ou da faixa de energia do nêutron incidente. Nesse quesito, os nêutrons incidentes são classificados em diferentes categorias.

2.3.3 – Classificação dos Nêutrons com Base em suas Energias

A maioria dos autores classifica os nêutrons incidentes em uma reação nuclear nêutron-núcleo em três categorias quanto a energia que possuem, conforme se explicita a seguir:

- Nêutrons frios ou térmicos → aqueles com energias inferiores a 0,1 eV (tipicamente, suas energias costumam ficar entre 0,025 eV e 0,04 eV);
- Nêutrons epitérmicos → aqueles com energias entre 0,1 eV e 1,0 eV;
- Nêutrons rápidos → aqueles com energias maiores que 0,5 MeV.

Alguns autores, contudo, dividem os nêutrons em cinco categorias com base em suas energias, chamando de nêutrons rápidos àqueles cujas energias são da ordem de 1 MeV para cima. Eles, então, denominam de nêutrons ressonantes àqueles cujas energias se encontram entre 1 eV e 1 keV, enquanto classificam como nêutrons intermediários àqueles cujas energias ficam entre 1 keV e 0,5 MeV (ou 1 MeV, dependendo dos autores) [12, 13].

2.3.4 – Seção de Choque

Um mesmo núcleo alvo pode sofrer diferentes tipos de reações nucleares – inclusive simultaneamente, com uma das reações, em geral, sobressaindo-se sobre as outras –, sendo a probabilidade de cada uma delas avaliada em termos das seções de choque correspondentes. A Figura 2.5 ilustra um núcleo excitado de alumínio com os principais modos pelos quais ele pode desexcitar-se, cada qual tendo determinada probabilidade de acordo com as respectivas seções de choque.

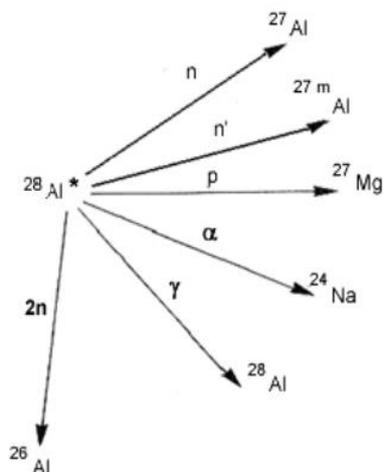


Figura 2.5: Núcleo composto de alumínio e as principais reações de decaimento [14]

A seção de choque nuclear para nêutrons de uma dada energia, por sua vez, pode ser definida como o número médio de colisões por núcleo alvo por nêutron incidente. Como a seção de choque é um conceito essencial para o entendimento da probabilidade de ocorrência de cada tipo de reação e, portanto, para o conhecimento de qual tipo de reação será dominante em determinadas condições experimentais, explicamos esse conceito de forma um pouco mais detalhada.

Consideremos um feixe paralelo de nêutrons uniformes e monoenergéticos chocando-se, perpendicularmente, com uma camada do material alvo de espessura L e área A , fina o suficiente para que possamos negligenciar múltiplas interações do nêutron com mais de um núcleo alvo. Consideramos, ainda, que a densidade volumétrica de nêutrons – número de nêutrons por cm^3 – é dada por n , que a densidade volumétrica dos núcleos – número de núcleos por cm^3 do material alvo – é dada por N e que os nêutrons se deslocam com uma velocidade v , tendo, portanto, um fluxo ϕ dado por $\phi = nv$. A quantidade total de núcleos no alvo especificado, por sua vez, será dada por NAL . O número total de colisões nêutron-núcleo, dessa forma, será proporcional a essas duas quantidades, com a constante de proporcionalidade sendo definida como a seção de choque, de forma que:

$$\# = \sigma\phi NAL$$

em que σ é a seção de choque e $\#$ representa o número total de colisões por segundo. Embora a unidade internacional de medida da seção de choque seja o cm^2 , essa unidade é muito grande para o contexto da física nuclear e a unidade geralmente usada é o barn, sendo um barn correspondente a $10^{-24} cm^2$ [15].

Cada tipo de interação nêutron-núcleo possível apresentará uma seção de choque característica, que representará a probabilidade de ocorrência da interação nuclear associada. A seção de choque total será dada pela soma das seções de choque de todas as interações possíveis na colisão.

2.3.5 – Principais Interações Nêutron-Núcleo Possíveis

Quando um nêutron colide com um núcleo atômico, os dois podem interagir de diferentes maneiras, dando lugar, por conseguinte, a diferentes processos. De forma mais abrangente, podemos classificar esses processos de interação nêutron-núcleo em duas grandes categorias: processos de espalhamento e processos de absorção [16]. No primeiro tipo, um nêutron incide sobre o núcleo, interage com o núcleo e emerge da interação, continuando, em seguida, o seu deslocamento – embora em direção diferente da original, justificando o nome de espalhamento utilizado para esse tipo de interação. No segundo tipo, o nêutron incidente é absorvido pelo núcleo alvo, formando um núcleo composto, sem a sua posterior liberação, produzindo outras partículas e radiações. Por isso, esse tipo de processos também podem ser chamados de reações nucleares. Vale destacar que, embora o núcleo composto também possa ser formado em algumas reações de espalhamento – no espalhamento do tipo inelástico, conforme será discutido adiante –, o nêutron emerge do núcleo composto temporariamente produzido nessas interações, continuando seu deslocamento sem a modificação estrutural do núcleo, não caracterizando, portanto, uma reação nuclear, já que as partículas antes e após a interação – o nêutron e o núcleo – continuam sendo as mesmas [17].

Conforme mencionado acima, a maioria das interações nêutron-núcleo leva a formação de um núcleo composto. Por isso, vamos discutir esse processo com um pouco mais de detalhes.

O modelo de núcleo composto foi introduzido por Niels Borh em 1936 e assume que a partícula incidente – o nêutron, no nosso caso – e o núcleo alvo se unem na colisão, tornando-se indistinguíveis, e, conjuntamente, constituem um estado excitado particular do núcleo chamado de núcleo composto [17]. Para se tornar indistinguível, a partícula incidente sofre colisões com os nucleons constituintes do núcleo alvo até perder a sua energia inicial – a excitação do núcleo composto se dá tanto pela energia cinética da partícula incidente quanto pela energia de ligação entre a partícula e o núcleo. Em boa parte desse tipo de interações, de fato, um equilíbrio térmico completo é atingido no interior do núcleo composto. Uma consequência desse fato é que o modo

de decaimento do núcleo composto independe da forma com que o núcleo composto foi formado. No exemplo ilustrado na Figura 2.6, vemos um núcleo composto de zinco sendo formado por duas composições diferentes e resultando em três modos de decaimento possíveis, que, conforme mencionado, independem de qual das duas interações originou o núcleo composto.

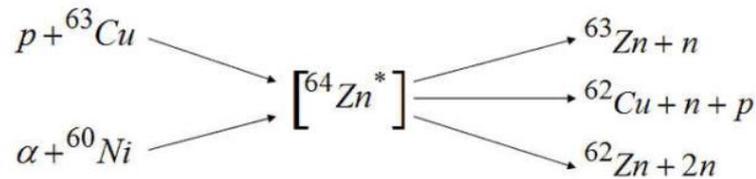


Figura 2.6: Duas formações possíveis do núcleo composto de Zinco com três modos de decaimento possíveis [17].

Vamos, agora, apresentar as interações mencionadas com um detalhamento um pouco maior.

2.3.5.1 – Processos de Espalhamento

Conforme mencionado anteriormente, a característica principal dos processos de espalhamento é a interação do nêutron incidente com o núcleo alvo com o nêutron emergindo da interação e continuando o seu deslocamento. Os processos de espalhamento, contudo, podem ser elásticos ou inelásticos. Descrevemos, a seguir, com brevidade, esses dois tipos de espalhamento.

- Espalhamento elástico – interação (n, n) → nesse tipo de reação, a energia cinética e o momento total do sistema nêutron-núcleo são iguais antes e após a colisão dos mesmos. Geralmente, o nêutron irá transferir certa energia para o núcleo (embora o contrário seja possível nos casos em que o núcleo tiver energia cinética maior que o nêutron incidente). Se o núcleo estiver parado antes da colisão, ele ganhará energia do nêutron e começará a se mover, enquanto o nêutron terá a sua velocidade reduzida em função da perda de energia cinética. A transferência de energia do nêutron para o núcleo costuma ser maior para colisões do nêutron com um núcleo leve. Devido à colisão, as direções de velocidade do nêutron e do núcleo tendem a ser diferentes antes e após a colisão. Contudo, o núcleo não é excitado nesse tipo de reação, mantendo-se no mesmo estado (fundamental) antes e após a colisão [18, 19, 20, 21].

- Espalhamento inelástico – interação (n, n') → nesse tipo de reação, o momento total do sistema nêutron-núcleo se conserva na colisão, mas a energia cinética não se conserva, sendo maior antes da colisão do que depois dela. A interação de espalhamento inelástico é similar à do espalhamento elástico, mas, no espalhamento inelástico, o nêutron incidente tem energia suficiente para levar o núcleo a seu estado excitado. Se o núcleo estiver parado antes da colisão, o nêutron incidente tem que ter energia cinética, no mínimo, maior que a energia de excitação do núcleo alvo para que esse tipo de reação possa ocorrer. Essas interações, por isso, são classificadas, também, como reações de *threshold* (limiar) – sendo o limiar a energia mínima do nêutron para a ocorrência da reação. Nesse processo, o núcleo alvo captura o nêutron incidente, formando, temporariamente, um núcleo composto. Logo em seguida, porém, o nêutron é liberado com uma energia cinética menor que a inicial, com a diferença de energia sendo retida pelo núcleo alvo que fica no estado excitado. Essa excitação, geralmente, corresponde a um estado isomérico radioativo do núcleo alvo. A energia excedente do núcleo alvo é, então, emitida na forma de radiação gama – sendo chamada de radiação gama de espalhamento inelástico. A energia da radiação gama emitida é igual a diferença de energia entre o nêutron incidente e o nêutron emitido. Em consequência da energia emitida pelo núcleo alvo, essas reações são classificadas como endotérmicas. Geralmente, essas reações ocorrem quando nêutrons rápidos interagem com núcleos pesados. Embora a probabilidade do espalhamento inelástico, em geral, ser menor que a do espalhamento elástico, a perda de energia do nêutron na colisão inelástica costuma ser maior que na elástica [18, 19, 20, 21].

2.3.5.2 – Processos de Absorção

Nas reações de absorção, o nêutron incidente é absorvido pelo núcleo, levando à formação do núcleo composto e ao posterior decaimento do mesmo em novas partículas e radiações. Os processos de absorção podem ser classificados em diferentes categorias com base nos produtos originados nessas reações. Apresentamos, a seguir, com brevidade, as principais reações de absorção possíveis na interação nêutron-núcleo.

- Captura radioativa – reações $(n, \gamma) \rightarrow$ esse tipo de reação é o mais comum e, também, um dos mais importantes para a análise por ativação com nêutrons. Nesse tipo de reação, o nêutron incidente é absorvido pelo núcleo alvo e um núcleo composto – cuja energia de excitação é igual à energia de ligação do nêutron ao núcleo mais a energia cinética do nêutron incidente – é formado. Em outras palavras, o núcleo passa a ser um isótopo do mesmo elemento, tendo o seu número de massa elevado de uma unidade. Esse, então, estando excitado, volta ao seu estado fundamental por meio da emissão de raios gama. Esses raios gama emitidos são chamados de raios gama *prompt* se o tempo de emissão deles após a captura do nêutron – e a consequente formação do núcleo composto – for muito menor que o tempo de resolução do sistema detector – que, em geral, está na faixa de 10 ns a 10 μ s. Por vezes, mesmo após a emissão desses raios gama *prompt* o núcleo continua radioativo – dependendo das características do núcleo alvo – e, então, sofre decaimento radioativo beta, geralmente (contudo, não necessariamente) seguido de emissão de novos raios gama, chamados de raios gama de decaimento ou de raios gama *delayed*. A Figura 2.7 apresenta um esquema simplificado desse processo. A maioria dos elementos apresenta propriedades favoráveis para a ocorrência de reações de captura radioativa, mas a frequência de ocorrência dessas reações depende tanto da energia do nêutron incidente, quanto das propriedades do núcleo alvo. Os núcleos que apresentam configurações de números mágicos são mais estáveis e, portanto, tem menor probabilidade de sofrerem reações de captura radioativa [19, 21].

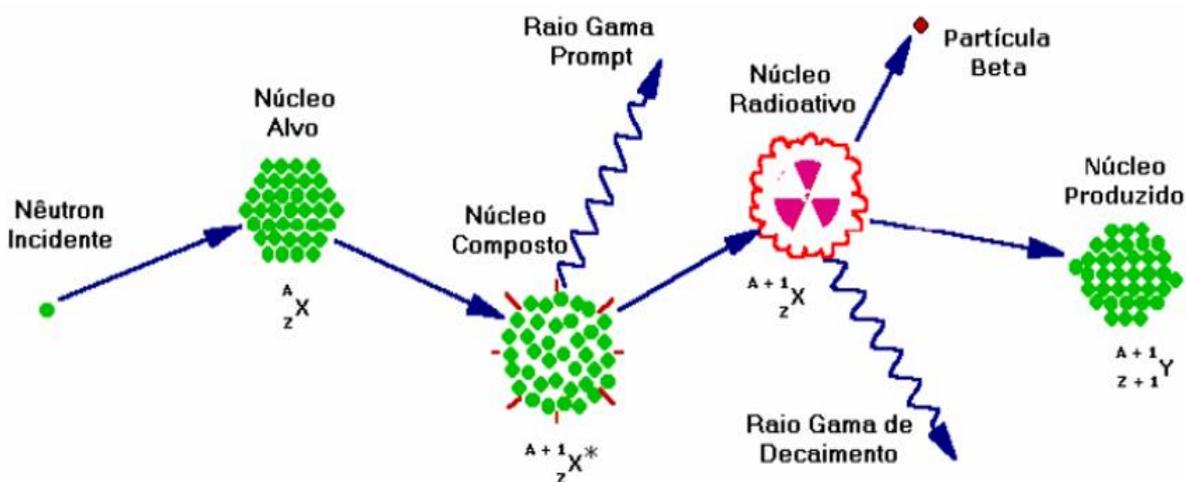


Figura 2.7: Esquema ilustrativo simplificado dos processos de ativação nuclear com nêutrons com as principais reações envolvidas [15].

- Emissão de Partículas – reações (n, x) → nesse tipo de reação, o nêutron incidente tem energia suficiente para romper a força de atração entre os nucleons e, por conseguinte, ejetá-los do núcleo. Por isso, elas são extremamente raras em processos com nêutron térmicos incidentes e muito mais comuns no caso da utilização de nêutrons rápidos – como no caso do presente trabalho. O núcleo composto, portanto, pode decair liberando um próton – reação (n, p) –, uma partícula α – reação (n, α) ou mesmo dois nêutrons – reação $(n, 2n)$ – ou três nêutrons – reação $(n, 3n)$ – nesse processo. O modo de decaimento, como sempre, dependerá da energia do nêutron incidente e das características do núcleo alvo. Embora a seção de choque para essas reações costume ser pequena, as características experimentais, como o fluxo de nêutrons, pode levar a uma taxa grande desse tipo de reação, fazendo com que assumam papel essencial na análise [19, 21].

- Fissão Nuclear – reações (n, f) → esse tipo de reação é mais comum em núcleos pesados, pois, nesse processo, a absorção do nêutron incidente leva esse núcleo composto pesado, instável e excitado a um estado de energia que favorece a quebra do núcleo em dois núcleos menores – ao invés da simples liberação da energia em forma de raios gama ou outras partículas – com a liberação de grande quantidade de energia. Os núcleos formados nessa reação costumam ter massas diferentes com um deles tendo quase o dobro da massa do outro. Esses núcleos menores – chamados de produtos de fissão – também costumam ser radioativos, podendo decair em outros produtos [19, 20, 21].

2.3.6 – Os Tipos de Análise por Ativação com Nêutrons

A análise por ativação com nêutrons tem várias vertentes que podem ser empregadas para uma determinada análise, dependendo das características da fonte de nêutrons e do material alvo utilizados no experimento, assim como das características do detector da radiação emitida e dos objetivos da análise. Listamos, a seguir, os principais tipos comumente empregados [22, 23, 24]:

- NAA (Neutron Activation Analysis – Análise por Ativação com Nêutrons) → é o nome genérico da técnica, que tem várias vertentes. Quando esse termo é utilizado para fazer referência à técnica, geralmente se refere à análise feita com os raios gama atrasados;
- INAA (Instrumental Neutron Activation Analysis – Análise Instrumental por Ativação com Nêutrons) → a técnica recebe esse nome quando a medida das atividades é feita diretamente nas amostras irradiadas sem qualquer separação química;
- RNAA (Radiochemical Neutron Activation Analysis – Análise Radioquímica por Ativação com Nêutrons) → a técnica recebe esse nome quando são necessárias separações químicas na amostra após a irradiação com a finalidade de remover interferências ou concentrar radionuclídeos de interesse;
- PGNA (Prompt Gamma Neutron Activation Analysis – Análise por Ativação com Nêutrons com Raios Gama Prontos) → a técnica recebe esse nome quando a análise é feita com os raios gama prompt. Nessa modalidade, a análise costuma ser feita durante a irradiação da amostra;
- FNAA (Fast Neutron Activation Analysis – Análise por Ativação com Nêutrons Rápidos) → a técnica recebe esse nome quando a análise é feita utilizando uma fonte de nêutrons rápidos para o processo de irradiação;
- PFNA (Pulsed Fast Neutron Activation Analysis – Análise por Ativação com Nêutrons Rápidos Pulsantes) → a técnica recebe esse nome quando a análise é feita utilizando uma fonte pulsante de nêutrons rápidos;
- PFTNA (Pulsed Fast/Thermal Neutron Activation Analysis – Análise por Ativação com Nêutrons Rápidos/Térmicos Pulsantes) → a técnica de PGNA recebe o nome PFTNA quando a análise é feita utilizando-se feixes de nêutrons pulsantes oriundos de geradores de nêutrons rápidos. O uso de feixes de nêutrons pulsantes permite aos detectores uma melhor diferenciação entre os tipos de interações nêutron-núcleo.

Capítulo 3

Revisão Bibliográfica

A primeira utilização da ativação com nêutrons teve lugar em 1936, quando C. Hevesy e H. Levi descobriram que amostras contendo elementos do grupo das terras raras se tornavam altamente radioativas após a exposição a uma fonte de nêutrons, constituída pelo elemento rádio incluso em berílio. Estes pesquisadores reconheceram então o potencial do emprego de reações nucleares seguidas pela medida da radioatividade induzida para analisar qualitativamente e quantitativamente os elementos presentes numa amostra [25].

Um bom detector é essencial para a técnica poder ser implementada e usada com eficácia. Vários estudos a cerca de melhorias nos detectores voltados para essa finalidade vem sendo feitos ao longo dos anos. L. Ruby e J. Rechen fizeram um estudo sobre detectores para análise por ativação neutrônica com nêutrons rápidos usando feixes de nêutrons pulsantes de energia 14 MeV [26].

Olga Shulyakova, Petr Avtonomov e Valeria Kornienko [23] apresentam uma abordagem geral sobre a técnica de análise por nêutron ativação e diversas aplicações importantes da mesma, destacando, ainda, as diferentes variantes do método: NAA (nêutron activation analysis), PGNAA (prompt gamma nêutron activation analysis), FNAA (Fast Neutron Activation Analysis), PFNA (pulsed fast nêutron analysis), PFTNA (pulsed fast/thermal nêutron analysis), API (associated particle imaging). As aplicações são variadas, como em análise de carvão [27], análise de cimento [28], registro de poços [29], detecção de explosivos [30, 31, 32], detecção de ameaças em containers [33, 34, 35] e veículos e detecção de minas [36, 37].

M. E. Medhat [24] verificou que FNAA pode ser útil na determinação de alguns elementos em que a análise por ativação com nêutrons térmicos não pode ser usada. Certos elementos que não podem ser medidos via reações (n, γ) , podem ser detectados por meio de reações (n, p) , (n, α) e $(n, 2n)$ induzidas por nêutrons rápidos – especialmente elementos leves. A seção de choque para reações com nêutrons rápidos é, geralmente, menor em relação à de ativação neutrônica térmica e, portanto, os limites de detecção passam a ficar em miligramas ao invés de microgramas, como em nêutrons térmicos. Conclui-se que a análise por nêutron ativação rápida (FNAA) não substitui a INAA para a análise de elementos em diferentes amostras. Contudo, ela é um complemento essencial à análise por nêutron ativação térmica por ter uma sensibilidade de detecção maior para a maioria dos elementos mais leves da tabela periódica.

E. Eftekhari Zadeh, A. Sadighzadeh, A. Salehizadeh, E. Nazemi, and G.H. Roshani [38] utilizaram NAA para análise de cimento usando um dispositivo de confinamento nuclear eletrostático inercial (IECF) como fonte de nêutrons rápidos. Em seu estudo, fizeram simulações usando MCNP com dois tipos de reações: D-D, produzindo nêutrons com energias de 2,45 MeV e D-T com 14,1 MeV e concluíram que as reações (n, p) e (n, α) oriundas de reações D-T são melhores em comparação às de D-D.

Dahing, Redzuan Yahya, Roslan Yahya e Hearie Hassan [39] desenvolveram uma Análise Multi-Elementar não destrutiva usando técnicas de PGNAA para amostras de concreto. De maneira geral, a comparação entre os resultados das técnicas de PGNAA, NAA e XRF mostrou que a técnica de PGNAA pode ser usada para determinar praticamente todos os elementos na amostra de concreto pela análise dos raios gama característicos de cada elemento. O conhecimento da razão Si/Ca e a análise do pico de energia foram considerados fatores chaves para determinar o grau e as propriedades do concreto. Além disso, a determinação de cloro e sódio no concreto pode ser usada para estudar a corrosão do concreto, que é o principal problema no concreto armado. Contudo, é difícil analisar o pico de energia dos elementos para saber as suas concentrações devido à baixa intensidade, alto *background* e resolução de energia. Esses itens podem ser melhorados em experimentos futuros (detectores com melhor resolução, maior atividade neutrônica para obter melhores picos de energia e intensidade de raios gama; o arranjo experimental como tempo de irradiação, distâncias entre fonte, amostra e detector, tipo de detector e atividade da fonte também podem ser otimizados).

M.Ali-Abdallah, N.A.Mansour, M.A.Ali, M. Fayez-Hassan [40] constataram que o número de raios gama de dada energia específica detectados é proporcional à taxa de desintegração do radionuclídeo que, por sua vez, é proporcional à quantidade do isótopo original contido na amostra. Eles usaram fonte de Am-Be para avaliar as quantidades de ^{40}K , ^{232}Th e ^{238}U em amostras de cimento e obtiveram resultados satisfatórios.

N. Zaim, C. Dogan e Z. Camtakan [41] relataram que a maior vantagem do NAA é que se trata de um método não destrutivo em que a amostra não necessita de qualquer tratamento físico ou químico anterior à análise (exceto a secagem). NAA consegue, também, detectar uma variedade de diferentes elementos simultaneamente a partir de amostras pequenas com limites de detecção chegando a nanogramas para alguns elementos.

A.M.G. Figueiredo, V. X. de Oliveira Júnior e A. J. Melfi [42] usaram análise por nêutron ativação para determinar a presença de ouro em rochas fazendo a irradiação de 1 g de rocha com nêutrons térmicos baseando-se na reação nuclear $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$, apresentando elevada sensibilidade em função da alta seção de choque do ^{197}Au para nêutrons térmicos. Concluiu-se que a sensibilidade do método pode ser melhorada aumentando-se o tempo de irradiação das amostras. Outra possibilidade para a melhora na sensibilidade é a utilização de nêutrons epitérmicos para a irradiação, envolvendo-se a amostra com cádmio, de modo a diminuir significativamente a quantidade de nêutrons térmicos, uma vez que, desse modo, diminui-se as interferências devidas a elementos que produzem altas atividades por irradiação com nêutrons térmicos, como sódio e manganês.

Edson Gonçalves Moreira [22] usou análise por ativação neutrônica para estudar a composição química de materiais metálicos. Ele relata que há algumas aplicações com geradores de nêutrons rápidos (14 MeV) na ativação, com determinação de diversos elementos tais como Al, F, K, P, Ni, Nb, Mn, Mo, Si e W. Nestes casos, ainda que a sensibilidade seja menor que a obtida com nêutrons de reatores, foi possível fazer análises precisas utilizando-se as reações com nêutrons rápidos [43, 44]. Para este tipo de análise, KAFALA *et al.* [45] fizeram um estudo detalhado das fontes de erro em análise por ativação de aços.

MOREIRA [22] relata, ainda, que o papel das interferências em INAA é pequeno se comparado com outras técnicas analíticas. Ainda assim, EL-ABADY *et al.* [46] apresentaram as interferências como uma das limitações da NAA usando nêutrons de reatores. No estudo de amostras com matriz metálica, a razão entre as concentrações dos constituintes de interesse pode apresentar diversas ordens de grandeza de diferença e, portanto, é importante avaliar se não ocorrem interferências de um elemento na determinação de outro. Além dos erros analíticos e instrumentais convencionais, tais como erros de pesagem, padrões não homogêneos ou de concentração errada, instabilidade eletrônica que pode causar variações de ganho ou diferenças no “timing” do espectrômetro, alguns tipos de interferência podem ser apontados em NAA [47, 48, 49, 50]. Ele faz descrição mais detalhada a respeito dessas interferências em sua dissertação.

Amilton Reinaldo Aguiar [51] usou análise por ativação neutrônica para a determinação de elementos traço em unhas humanas. Em sua dissertação, ele menciona as seguintes vantagens da NAA:

- a) requer uma quantidade muito pequena de amostra.
- b) não há necessidade de destruição da amostra e pode ser usada para outras investigações, principalmente para amostras submetida a períodos curtos de irradiação,
- c) o processo pode ser automatizado quando é necessário uma análise em série, por exemplo, no controle de processos rotineiros.
- d) é geralmente mais rápida que a análise destrutiva, menos trabalhosa pois não exige tempo para a separação química e nem o uso de reagentes.
- e) sua alta sensibilidade, precisão e exatidão para um grande número de elementos.
- f) a análise é multielementar.
- g) não é necessária a determinação do branco analítico.

Carla Mitie Teruya [52] usou análise por ativação neutrônica para a determinação de elementos essenciais e tóxicos em subprodutos agroindustriais utilizados na alimentação animal de forma satisfatória.

Leonardo Alves da Costa [15] estudou as interferências primárias na análise por ativação neutrônica nas determinações de alumínio, magnésio, manganês e sódio. Ele comenta que, usualmente, o cálculo de concentração se baseia na reação principal sob nêutrons térmicos ${}^nX(n_t, \gamma)^{n+1}X$, mas, sob nêutrons rápidos, podem ocorrer as reações interferentes ${}^{n+1}Y(n_r, p)^{n+1}X$ e ${}^{n+4}Y(n_r, \alpha)^{n+1}X$. A consequência disso é que a concentração final deverá ser a soma dos resultados das reações e não será possível distinguir a concentração real da concentração gerada pelo interferente. Assim, o impacto da interferência dependerá da contribuição do fluxo de nêutrons rápidos no fluxo total de nêutrons no local da irradiação. Ou seja, a interferência dependerá de o quanto o canal de irradiação é termalizado, sendo isso uma característica do reator. Havendo interferência significativa, as mesmas devem ser corrigidas para a análise correta dos resultados.

Julio Cezar de Oliveira Freitas [53] e Andrezza Kelly Costa Nóbrega [54] estudaram métodos para melhoria na cimentação de poços de petróleo, com adição de poliuretano em pastas de cimento e com adição de suspensões de quitosana, respectivamente.

Shane Waterman [55] foi o trabalho encontrado mais próximo do proposto na presente dissertação. Shane faz estudo de poços de petróleo com análise por ativação neutrônica. Seu trabalho consiste em adicionar um material absorvedor de nêutrons ao cimento para, então, aplicar a NAA para localizar possíveis problemas como regiões de vazio e problemas de centralização ineficaz. Ele chama a atenção para as correções necessárias devido à atenuação e à dispersão neutrônicas na irradiação, fazendo os respectivos cálculos. Ele deixa a possibilidade de estudos de fontes alternativas de nêutrons (uso de fonte de nêutrons polienergética de tamanho finito ao invés da idealização de fonte puntiforme de nêutrons térmicos), a adição de um material moderador (com alta concentração de hidrogênio que, em sua pesquisa, mostrou ter alta seção de choque de espalhamento com nêutrons) e correção do modelo simulado com Monte Carlo adicionando maiores detalhes ao mesmo.

Capítulo 4

Modelagem Computacional dos Experimentos

Neste trabalho, fazemos o uso do método de Monte Carlo (MC) para a modelagem e simulação das condições experimentais. O método de MC tem sido amplamente utilizado para a resolução de problemas cuja solução analítica é muito difícil – ou, mesmo, impossível – de ser conseguida e, utilizado de forma adequada e cautelosa, fornece resultados muito bons e compatíveis com a realidade.

A implementação do modelo idealizado no presente trabalho é feita por meio do *Monte Carlo N-Particle* (MCNP) [56], que é um código computacional de transporte de radiação desenvolvido em Fortran 90 desenvolvido pelo *Los Alamos National Laboratory* para a modelagem estocástica do processos de transporte de partículas. Esse código tem ampla aplicabilidade por suportar o transporte de quase todas as partículas em praticamente todas as energias possíveis. Ele também conta com diferentes opções de tally e com interação gráfica. Nesse método, o usuário cria um arquivo de entrada definindo a geometria do arranjo experimental e especificando os materiais que compõe o arranjo acompanhados das tabelas de suas seções de choque, bem como as posições e as características das fontes de radiação de interesse. O usuário especifica, ainda, as informações desejadas por meio da colocação de *tallies* – contadores estatísticos que calculam e armazenam as informações das simulações requisitadas pelo usuário – nas superfícies ou nos volumes de interesse. Em seguida, o programa lê o arquivo de entrada e gera a fonte radioativa definida no local especificado. As interações das partículas geradas pela fonte com os materiais do arranjo geométrico são, então, modeladas com funções de densidade de probabilidade normalizadas. Um número randômico entre 0 e 1 é gerado e correlacionado a cada interação. As interações vão sendo ditadas randomicamente para cada partícula enquanto ela não deixa a região de interesse definida, não é absorvida, não atinge uma possível energia de corte predefinida ou sai do espectro de energias disponíveis na biblioteca de seção de choque do MCNP. Durante esse processo, o resultado de cada interação é gravado e, quando todas as partículas são resolvidas, o resultado conjunto é normalizado e impresso no arquivo de saída juntamente com os respectivos erros calculados com base na contagem estatística padrão.

Como o nosso objetivo principal é realizar a distinção entre diferentes materiais, a saber, o cimento usado nas cimentações das bainhas nos poços de petróleo e o solo que circunda o poço com base nas radiações características dos elementos que os constituem, o primeiro passo consistiu no detalhamento desses dois materiais em termos dos seus elementos constituintes com seus respectivos pesos e porcentagens na composição.

Visto que o material constituinte do solo é amplamente variado, variando muito de lugar para lugar de acordo com a região e o tipo de solo circundante aos poços, utilizamos, para as simulações, o solo padrão americano, conforme definido no compêndio de dados de composição de materiais para modelagem de transporte de partículas desenvolvido pelo Pacific Northwest National Laboratory para o Departamento de Homeland Security dos EUA [57]. O detalhamento desse solo é apresentado na Figura 4.1. A primeira coluna da tabela nessa figura, contém o símbolo do elemento constituinte do material, a segunda e a terceira colunas, contém os códigos usados no MCNP para a representação desses elementos, a quarta coluna contém a porcentagem do respectivo elemento na massa do material (solo) como um todo, a quinta coluna contém a porcentagem do respectivo elemento na constituição dos átomos do material como um todo e a última coluna contém a densidade atômica do elemento em questão. Além disso, nas linhas iniciais da tabela dessa figura, são dadas a densidades em massa e a densidade atômica total do material (solo) apresentado.

Já o cimento usado nas cimentações de poços petrolíferos é bem conhecido, sendo conhecido como Cimento Portland Classe G. A composição desse cimento em termos de componentes moleculares é encontrada facilmente em diferentes fontes. Algumas dessas fontes são apresentadas nas Tabelas 4.1 a 4.4. É importante deixar claro, contudo, que o cimento praticamente usado nas cimentações também costuma conter aditivos (plastificantes e superplastificantes), que desconsideramos na presente análise.

105 SOLO PADRÃO AMERICANO					
Fórmula =			Peso Molecular (g/mol) =		
Densidade (g/cm ³) = 1,5200			Densidade Atômica Total (átomos/b-cm) = 4,383E-02		
A densidade acima é estimada com acurácia de dois dígitos significativos. Incertezas não são endereçadas e os dados seguintes foram calculados com base nas frações de peso de entrada.					
<u>Elemento</u>	<u>Nêutron ZA</u>	<u>Fóton ZA</u>	<u>Fração do Peso</u>	<u>Fração Atômica</u>	<u>Densidade Atômica</u>
O	8016	8000	0.513713	0.670604	0.029391
Na	11023	11000	0.006140	0.005578	0.000244
Mg	12000	12000	0.013303	0.011432	0.000501
Al	13027	13000	0.068563	0.053073	0.002326
Si	14000	14000	0.271183	0.201665	0.008838
K	19000	19000	0.014327	0.007653	0.000335
Ca	20000	20000	0.051167	0.026664	0.001169
Ti	22000	22000	0.004605	0.002009	0.000088
Mn	25055	25000	0.000716	0.000272	0.000012
Fe	26000	26000	0.056283	0.021050	0.000923
Total			1.000000	1.000000	0.043827

Figura 4.1: Composição do solo utilizado na simulação do modelo experimental com o MCNP [57]

Tabela 4.1: Composição do Cimento Classe G segundo [58].

2 COMPOSIÇÃO E INFORMAÇÕES SOBRE INGREDIENTES		
Produto químico preparado CAS 65997-15-1		
O cimento Portland é constituído basicamente de clínquer portland finamente moído e gesso. Podem, ainda, ser adicionados outros materiais normalizados dependendo do tipo que se deseja. Pode ter a seguinte composição, conforme a mistura que for preparada:		
Componente	Faixa de concentração (%)	Número CAS
Silicato tricálcico.....	20-70	12168-85-3
Silicato dicálcico	10-60	10034-77-2
Ferro-aluminato de cálcio.....	5-20	12068-35-8
Sulfato de cálcio	2-10	vários
Aluminato tricálcico	1-15	12042-78-3
Carbonato de cálcio	0-5.....	1317-65-3
Óxido de magnésio.....	0-4.....	1309-48-4
Óxido de cálcio.....	0-65	1305-78-8

Tabela 4.2: Composição do Cimento Classe G segundo [59].

ÍTEM	VALOR PADRÃO	
	TIPO MSR	TIPO HSR
MgO	6,0 % MÁX	6,0 % MÁX
SO ₃	3,0 % MÁX	3,0 % MÁX
Perda em Ignição (LOI)	3,0 % MÁX	3,0 % MÁX
Resíduo Insolúvel	0,75 % MÁX	0,75 % MÁX
C3S	48 % a 58 %	48 % a 58 %
C3A	8,0 % MÁX	3,0 % MÁX
Total Alcalino (R ₂ O = 0,658 K ₂ O + Na ₂ O)	0,75 % MÁX	0,75 % MÁX
C4AF + 2C3A	/	24 % MÁX

Tabela 4.3: Composição do Cimento Classe G segundo [60].

ÍTEM	VALOR PADRÃO
	TIPO HSR
MgO	6,0 % MÁX
SO ₃	3,0 % MÁX
Perda em Ignição (LOI)	3,0 % MÁX
Resíduo Insolúvel	0,75 % MÁX
C3S	48 % a 65 %
C3A	3,0 % MÁX
Total Alcalino (R ₂ O = 0,658 K ₂ O + Na ₂ O)	0,75 % MÁX
C4AF + 2C3A	24 %

Tabela 4.4: Composição do Cimento Classe G segundo [61].

ÍTEM	VALOR PADRÃO	
	Padrão API	Média para o TIPO HSR
MgO	6,0 % MÁX	2,0 % MÁX
SO ₃	3,0 % MÁX	3,0 % MÁX
Perda em Ignição (LOI)	3,0 % MÁX	2,0 % MÁX
Resíduo Insolúvel	0,75 % MÁX	0,6 % MÁX
C3S	48 % a 65 %	59 % MÍN
C3A	3,0 % MÁX	2,0 % MÁX
Total Alcalino (R ₂ O = 0,658 K ₂ O + Na ₂ O)	0,75 % MÁX	0,7 % MÁX
C4AF + 2C3A	24 % MÁX	18 % MÁX

Como as composições usadas podem sofrer pequenas variações dentro de limites bem estabelecidos, calculamos uma média das composições apresentadas nas quatro fontes ilustradas acima e assumimos a média das composições apresentadas nessas quatro fontes individuais como a composição média de cimento classe G. Apresentamos, na Tabela 4.5, essa composição média, que utilizamos nesse trabalho.

Um grande passo, a partir disso, foi o cálculo da composição elementar desse cimento, já que a análise por ativação com nêutrons depende, unicamente, dos elementos constituintes do material e não do material em si ou de sua composição molecular. O resumo dos cálculos realizados nesse procedimento e dos resultados obtidos é apresentado na Tabela B.1 do Apêndice B.

A Tabela 4.6, por fim, apresenta o resultado final da composição elementar do cimento classe G usado nesse trabalho com a associação dos elementos usados com seus respectivos códigos no MCNP.

Outro passo foi a verificação de consistência entre os espectros produzidos pelos elementos de interesse nas simulações de MCNP com aqueles esperados, cujos picos têm valores tabelados bem definidos na literatura. Para isso, nas simulações, preenchemos uma esfera de raio variável com o elemento de análise desejada e registramos o espectro produzido por essa quantidade de material do elemento na superfície exterior da esfera – ou seja, o espectro da radiação que atravessou todo o material e seguiu para a superfície do mesmo. Esse procedimento foi feito para cada um dos elementos de interesse, conforme listados na Tabela A.1 do Apêndice A. Os resultados encontrados para essa verificação de consistência podem ser observados nas Figuras A.1 a A.11 do Apêndice A e as comparações entre os picos encontrados nas simulações com aqueles da literatura são apresentados na Tabela A.1 do mesmo Apêndice.

Tabela 4.5: Composição média do Cimento Classe G obtida a partir da interpolação dos valores das composições dessa classe de cimento encontrados na literatura.

#	Componente	FINAL
1	Silicato Tricálcico $(CaO)_3 \cdot SiO_2$ $[Ca_3SiO_5]$	54
2	Silicato Dicálcico $(CaO)_2 \cdot SiO_2$ $[Ca_2SiO_4]$	10
3	Ferro Aluminato Tetracálcico $(CaO)_4 \cdot Al_2O_3 \cdot Fe_2O_3$ $[Ca_4Al_2Fe_2O_{10}]$	21
4	Aluminato Tricálcico $(CaO)_3 \cdot Al_2O_3$ $[Ca_3Al_2O_6]$	3
5	Carbonado de Cálcio $CaCO_3$	0
6	Sulfato de Cálcio $CaSO_4$	2
7	Óxido de Magnésio MgO	6
8	Óxido de Cálcio CaO	0
9	Óxido Sulfúrico SO_3	3
10	Óxido de Sódio Na_2O	0,5
11	Óxido de Potássio K_2O	0,5
TOTAL		100%

Tabela 4.6: Composição elementar do cimento classe G hidratado com os respectivos códigos do elemento no MCNP.

#	Componente	Fração	MCNP Code
1	Cálcio <i>Ca</i>	0,291265	20000
2	Oxigênio <i>O</i>	0,521019	8016
3	Silício <i>Si</i>	0,057453	14000
4	Alumínio <i>Al</i>	0,020355	13027
5	Ferro <i>Fe</i>	0,033517	26000
6	Carbono <i>C</i>	0	6000
7	Magnésio <i>Mg</i>	0,025127	12000
8	Enxofre <i>S</i>	0,011615	16000
9	Sódio <i>Na</i>	0,002576	11023
10	Potássio <i>K</i>	0,002882	19000
11	Hidrogênio <i>H</i>	0,034191	1001
TOTAL		1	

Também apresentamos, na Tabela 4.7, os detalhes das principais reações nucleares dos elementos de fato utilizados na apresentação dos resultados finais desse trabalho no Capítulo 5. Nela, pode-se ver o tipo e os detalhes da reação, a meia vida do dos elementos das reações, o valor dos raios gama emitidos nelas e as suas sensibilidades.

Tabela 4.7: Principais reações utilizadas no presente trabalho [62, 63].

Elemento	Reação	Meia-Vida	Energia do Raio Gama (MeV)	Sensitividade (10^6 decaimentos. $s^{-1}.g^{-1}$)
O	$^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$	7,13 s	6,13 ; 7,12	1,3
Al	$^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$	9,46 min	0,844	1,6
Si	$^{28}\text{Si}(n,p)^{28}\text{Al}$	2,25 min	1,78	4,5
Ca	$^{40}\text{Ca}(n,n')^{40}\text{Ca}$	*	3,73	*

A partir dessas verificações iniciais, a geometria do problema foi definida e construída no MCNP. Uma fonte de nêutrons de energia de 14 MeV foi centrada na origem de uma esfera de ar, circundada por outra camada esférica de aço, envolta por uma camada esférica cujo preenchimento foi feito ora com cimento, ora com solo. O desenho esquemático dessa geometria é apresentado na Figura 4.2.

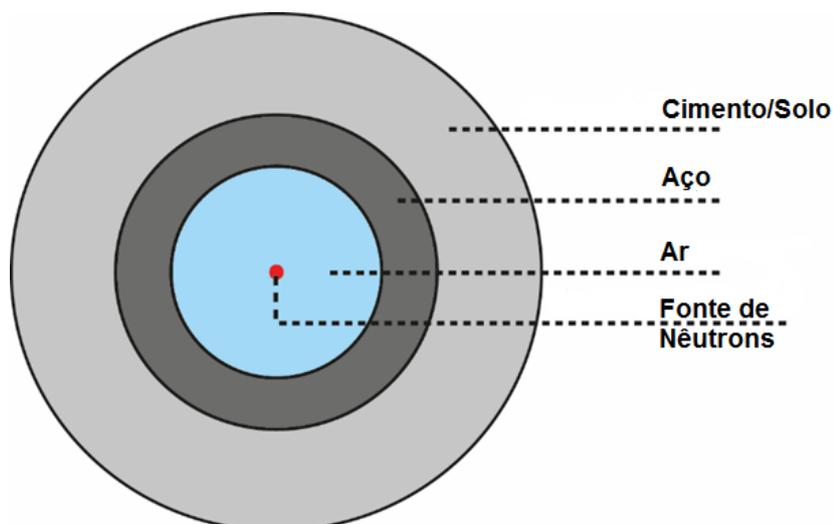


Figura 4.2: Esquema ilustrativo do modelo idealizado simulado no MCNP

[Fonte: Elaborada pelo autor]

A detecção da radiação foi realizada na superfície externa da camada esférica mais exterior utilizando as *tallies* F1 e E1: a primeira obtém a energia e a segunda o espectro de energias dentro de uma faixa definida – 0 a 14 MeV, no nosso caso.

* não se aplica.

Nas condições ilustradas, obteve-se os espectros de nêutrons e de fótons na superfície exterior da camada mais externa das geometrias simuladas, ou seja, o espectros das partículas que conseguiram passar por todas as camadas elaboradas, não sendo absorvidas no caminho.

A simulação inicial foi feita com 1000000 de histórias – número de partículas geradas na fonte para fins de simulação e posterior normalização para uma partícula. O número de histórias também foi aumentado em simulações paralelas para a observação de possíveis melhorias nos resultados, mas não apresentou melhora significativa na precisão dos espectros obtidos, ficando o número de histórias inicialmente proposto como o padrão.

O arquivo de entrada inicialmente utilizado para as simulações é apresentado nas Figuras E.1 e E.2 do Apêndice E. Conforme os resultados foram sendo obtidos, novas ideias de simulação em busca de técnicas melhores e mais eficazes de distinção entre o solo e o cimento foram sendo implementadas e o código foi acompanhando os ajustes necessários.

A simulação foi feita para detecção de fótons e de nêutrons e, conforme mencionado anteriormente, foram utilizadas as *tallies* E1 e F1 para a extração das energias e para a obtenção dos espectros nos resultados.

Capítulo 5

Resultados e Discussões

As simulações em MCNP para o estudo de interesse começaram sendo realizadas com a geometria apresentada no desenho esquemático da Figura 9 utilizando-se, primeiramente, o cimento como material circundante à camada esférica de aço e, posteriormente, utilizando o solo como o material que envolve essa camada. Esse estudo foi feito para diferentes espessuras do material em torno do aço, iniciando com uma camada de 2 cm de espessura e avançando até uma espessura de 6 cm de espessura da camada que envolve a camada esférica de aço. A Figura 5.1 apresenta os espectros obtidos para as diferentes espessuras de solo circundando a camada esférica de aço e a Figura 5.2 apresenta os espectros obtidos para as diferentes espessuras de cimento circundando essa mesma camada.

A Figura 5.3, por sua vez, apresenta os espectros obtidos para o solo – ilustrados na Figura 5.1 – superpostos para melhor visualização e para fins de comparação. A Figura 5.4 apresenta a mesma ilustração para os espectros do cimento.

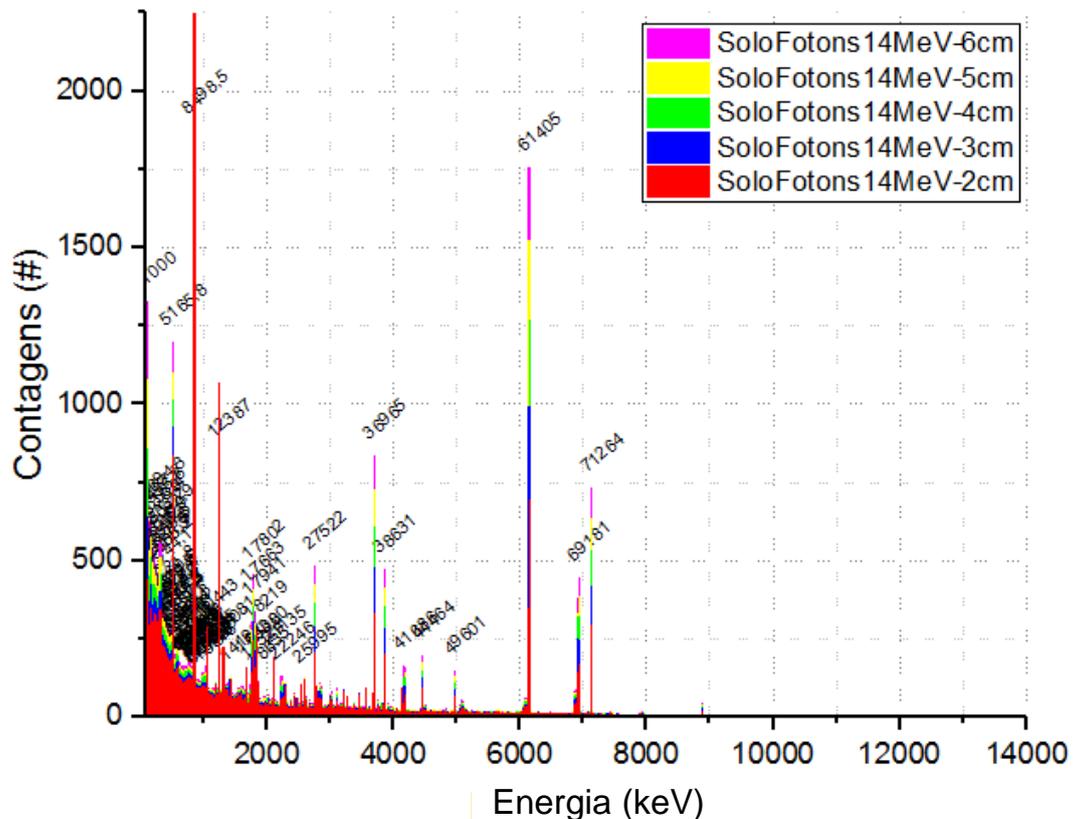


Figura 5.3: Espectros obtidos para diferentes espessuras de solo circundando a camada esférica de aço sobrepostos.

Podemos observar que os espectros de ambos os materiais são semelhantes e apresentam, de maneira geral, a mesma estrutura, contendo uma grande quantidade de raios gama de energias relativamente baixas – menores que 2 MeV – e uma quantidade relativamente menor de raios gama de energias maiores, ficando o espectro praticamente vazio para valores energéticos acima de 8 MeV.

Para melhor visualização e comparação, apresentamos, na Figura 5.5, os espectros do cimento e do solo superpostos – ambos na configuração com a camada desses materiais com espessuras de 6 cm.

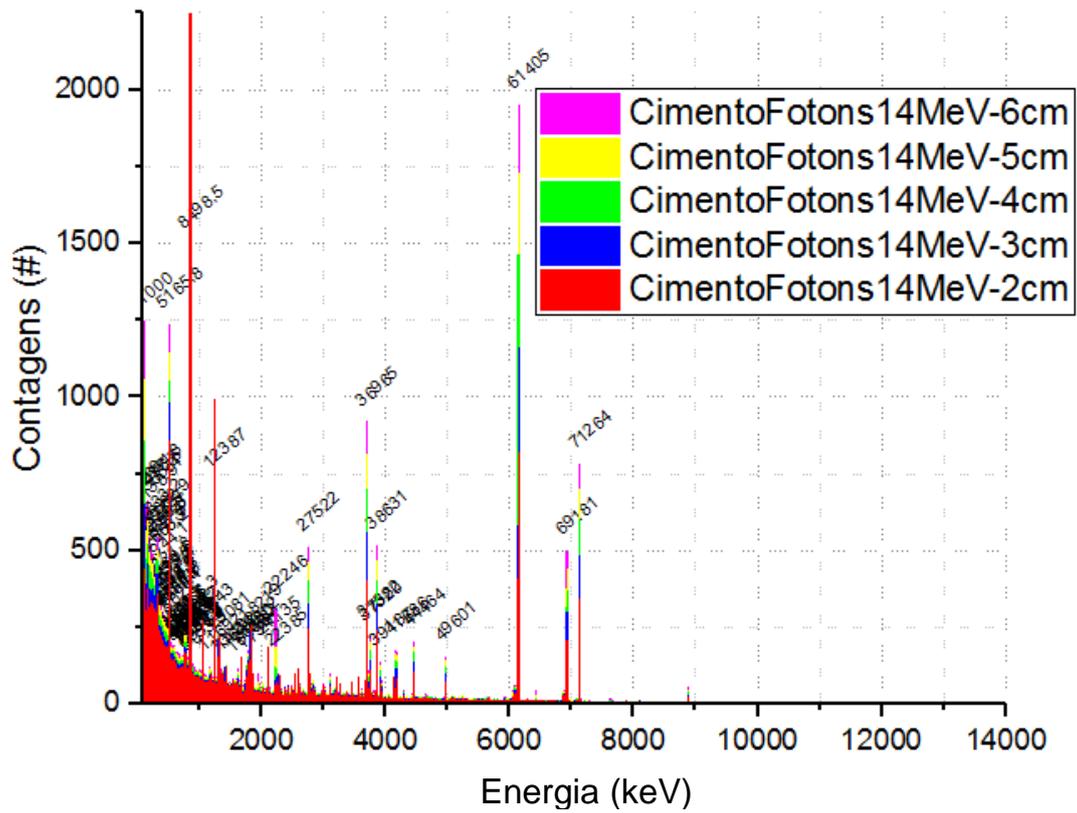


Figura 5.4: Espectros obtidos para diferentes espessuras de cimento circundando a camada esférica de aço sobrepostos.

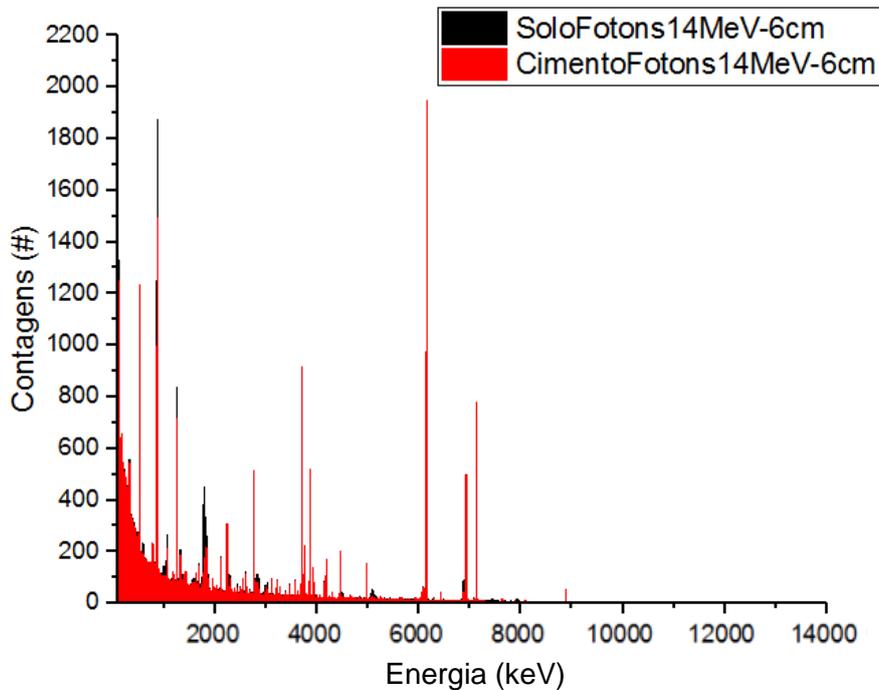


Figura 5.5: Espectros do cimento e do solo sobrepostos na configuração de 6 cm para as suas camadas esféricas.

Notamos, também, a partir de todos esses gráficos, que a maioria dos picos encontrados nos espectros do cimento e do solo localiza-se nos mesmos valores de energia, indicando que a maioria dos elementos constituintes desses materiais são idênticos. Isso se deve à composição dos materiais que foi utilizada nas simulações. No caso do cimento utilizado nessas simulações, calculamos, precisamente, a sua composição baseando-se nas propriedades do cimento classe G – que é o cimento usado na cimentação das bainhas cimentícias que envolvem a tubulação de aço nas cimentações dos poços de petróleo – e, portanto, trata-se de uma composição realista e bem determinada. Já no caso do solo utilizado no presente estudo, utilizamos o solo definido como solo padrão americano de acordo com o Compêndio de Dados de Composição de Materiais para Modelos de Transporte de Radiação publicado pelo Departamento de Homeland Security dos EUA [57]. Podemos observar pela composição desse solo, contudo, que não é o tipo de solo mais comum e que seus elementos são quase os mesmos do cimento, exceto pela presença de manganês e de titânio e pela ausência de hidrogênio – embora em quantidades e proporções diferentes. Isso, portanto, justifica os espectros similares obtidos para ambos os materiais em análise, incluindo a presença de grande parte dos picos em comum. Sem dúvida, esse fato torna a análise por ativação com nêutrons e a distinção dos materiais baseados nessa técnica mais difícil, uma vez que a forma mais fácil de distinção entre um material e o outro é a presença de picos de determinada energia nos espectros de um dos materiais e a sua ausência nos espectros do outro material. No entanto, esse fato colaborou para tornar o trabalho mais interessante pela estimulação à busca de metodologias mais complexas de análise. No caso de os materiais serem realmente muito similares na prática, uma boa escolha seria a adição de algum aditivo que pudesse servir de contraste na composição do cimento usado nas cimentações dos poços.

Visando a confirmação do fato acima observado, foram feitas simulações com geometrias mais simples contendo somente um dos quatro materiais utilizados. Os espectros para cada um dos materiais obtidos nessa configuração são apresentados na Figura 5.6.

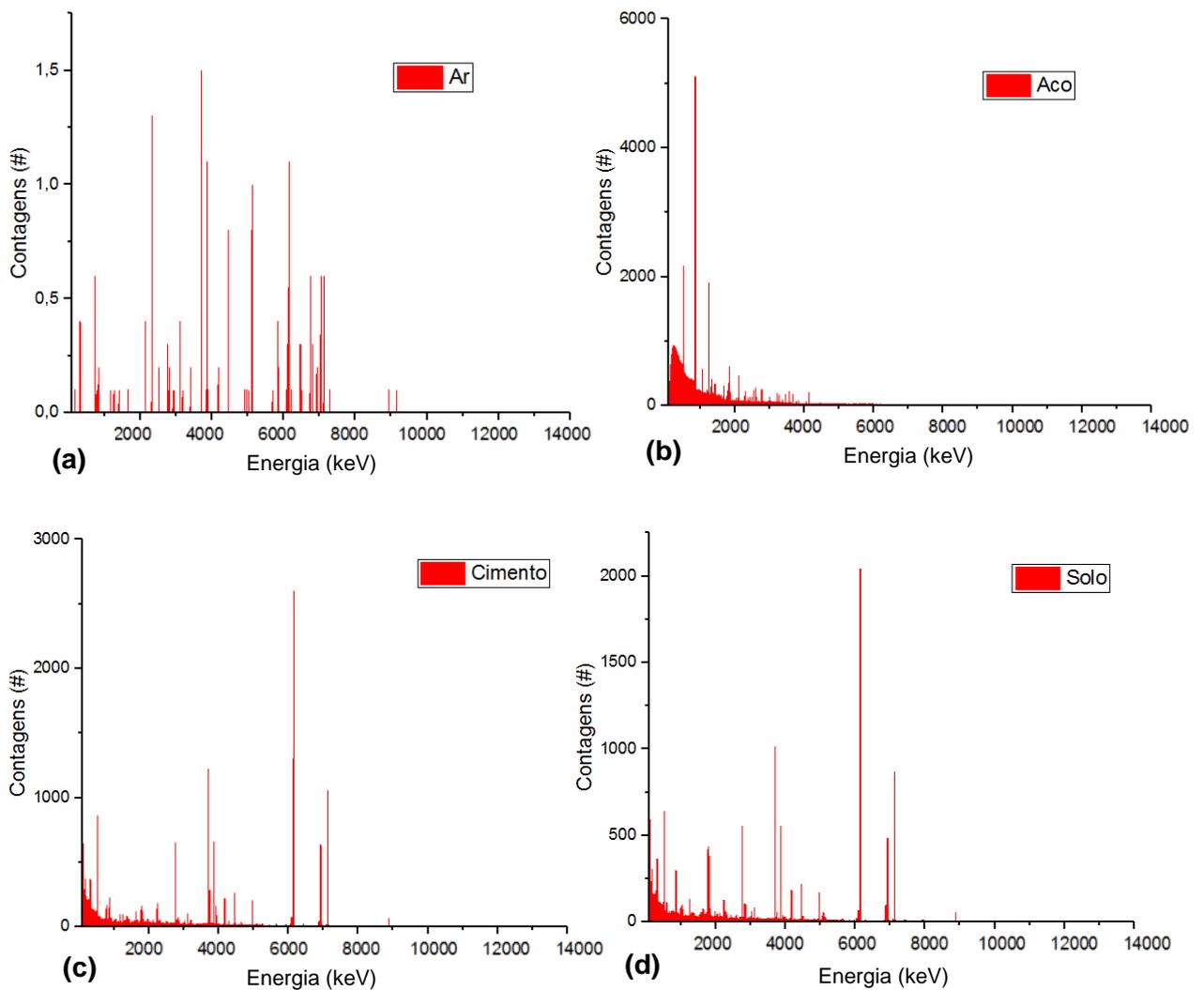


Figura 5.6: Espectros de cada um dos materiais presentes em nossas simulações, a saber, ar (a), aço (b), cimento (c) e solo (d). Esses espectros são para os respectivos materiais preenchendo uma camada esférica de 6 cm de espessura.

Os resultados ilustrados nos gráficos da Figura 5.6 permitem identificar os picos que correspondem a cada um dos materiais envolvidos e corroboram a semelhança dos espectros do solo e do cimento. Apesar da semelhança na composição dos materiais e da consequente semelhança nos espectros, podemos identificar características importantes – discutidas ao longo desse capítulo – que permitem a distinção entre os materiais.

Além disso, foi feito, também, um teste comparativo com a substituição do Silício pelo Nitrogênio – um elemento comumente presente na terra – na composição do solo. O espectro do solo com a presença do Nitrogênio em sua composição é mostrado na Figura 5.7. Nesse caso, os picos característicos do Nitrogênio – em especial, os picos

tabelados de 2,3129 MeV e de 5,1059 MeV – caracterizam o Nitrogênio e, portanto, identificam o material como sendo solo sem sombras de dúvida.

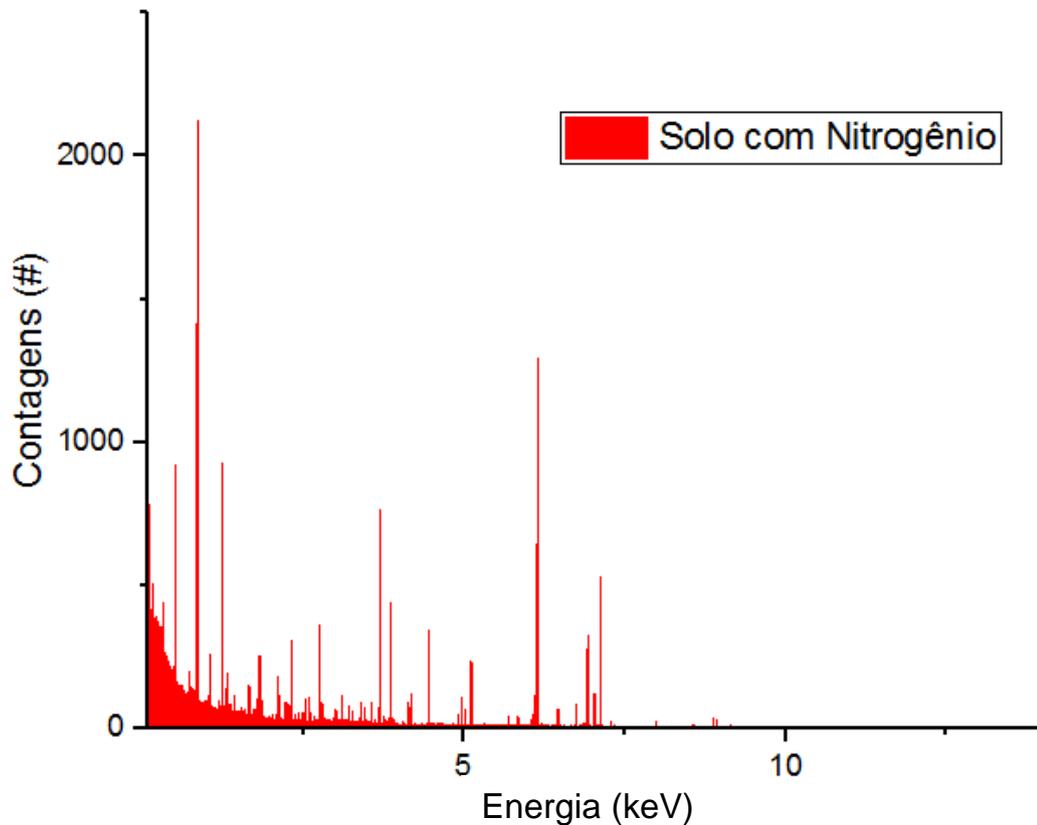


Figura 5.7: Espectro do Solo com a presença de Nitrogênio no lugar do Silício para uma camada esférica de 4 cm de espessura de solo envolvendo uma camada de 2 cm de espessura de aço que envolve uma camada de 1 cm de espessura de ar.

Outra característica importante observada em todos os espectros apresentados até o momento é a presença de picos que não correspondem a nenhum dos elementos formadores do solo ou do cimento. Em melhor análise, entendemos que alguns desses picos correspondem a fenômenos físicos – a exemplo do pico centrado em torno de 0,511 MeV, sinalizando a produção de pares no espectro –, enquanto outros correspondem às emissões oriundas das camadas interiores da geometria simulada, principalmente da camada esférica de aço – como o pico centrado em torno de 4,44 MeV, sinalizando a presença de Carbono, que se encontra na camada esférica de aço. Uma estratégia usada para eliminar esse *background* – presença de picos que não desempenham nenhum papel na distinção dos materiais de interesse, a saber, solo e cimento – consistiu no seguinte método: (i) realizar simulações com geometrias idênticas às anteriores, mas sem a presença da camada mais externa – sem incluir o cimento ou o solo após a camada de aço; (ii) estudo do comportamento do espectro nessas condições; (iii) subtração do espectro obtido na camada externa do aço dos

espectros anteriores – obtidos nas camadas externas do solo e do cimento. Os espectros obtidos com o aço como a camada mais externa são ilustrados na Figura 5.8 e os espectros do solo e do cimento com a subtração do espectro do aço são apresentados na Figura 5.9.

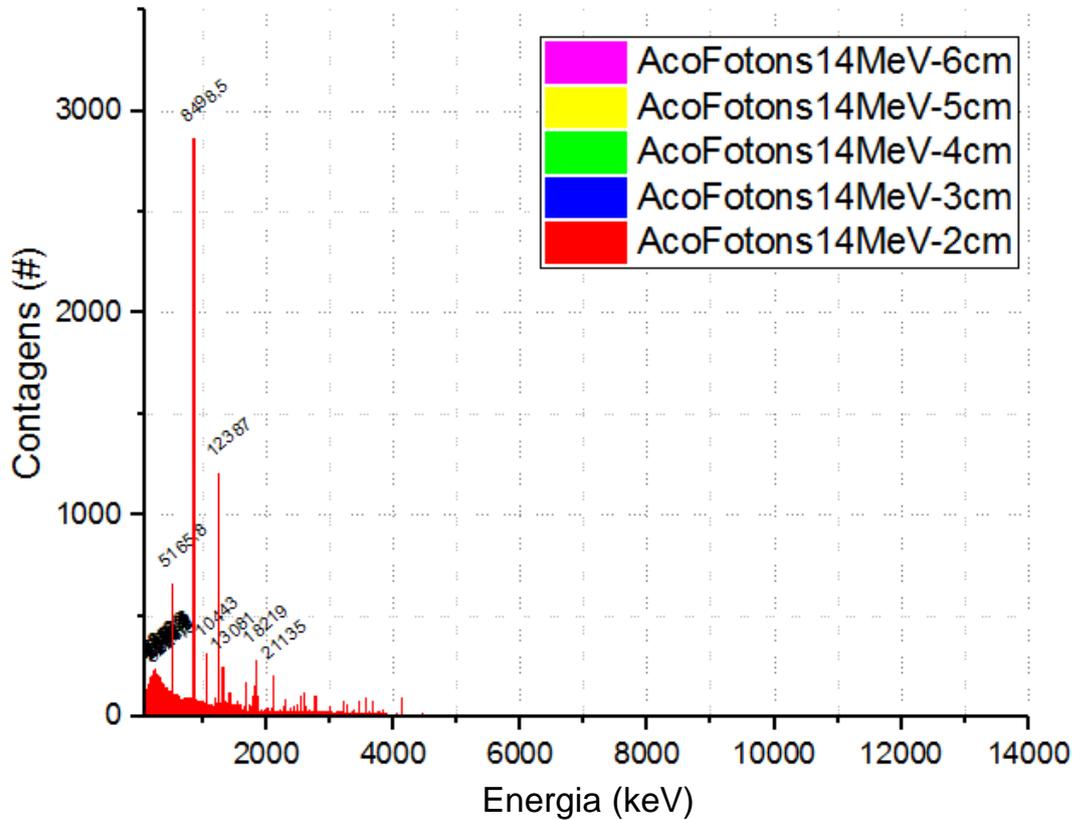


Figura 5.8: Espectros do aço para diferentes camadas desse material envolvendo a camada de ar.

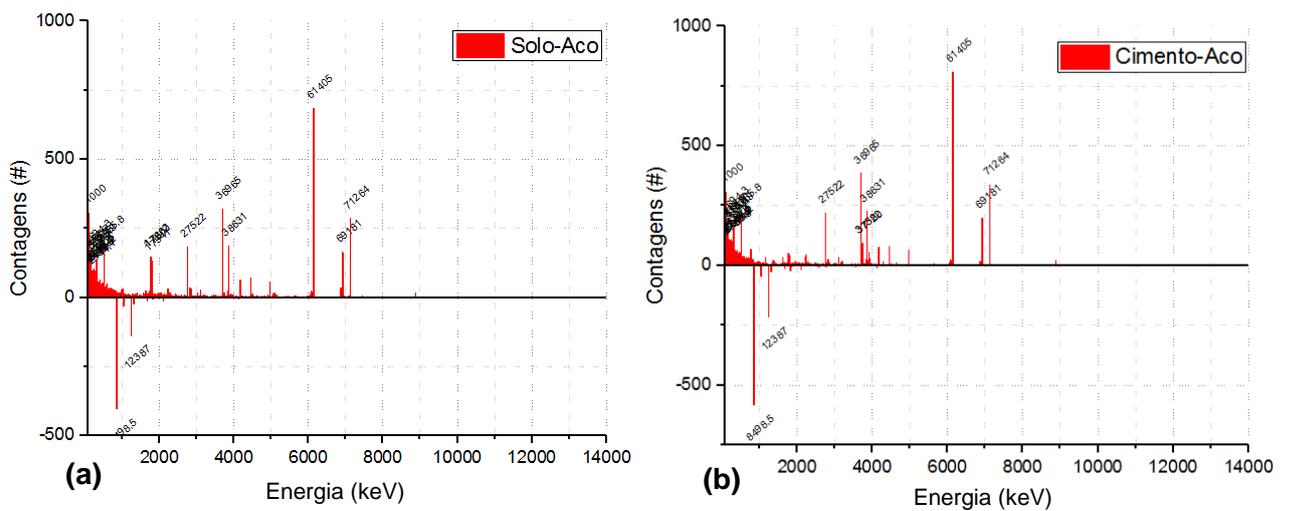


Figura 5.9: Espectros do solo (a) e do cimento (b) com as contagens do aço subtraídas de seus espectros.

Por fim, as Figuras 5.10 e 5.11 apresentam, respectivamente, os espectros do solo e do cimento superpostos com os mesmos espectros com a subtração do espectro do aço.

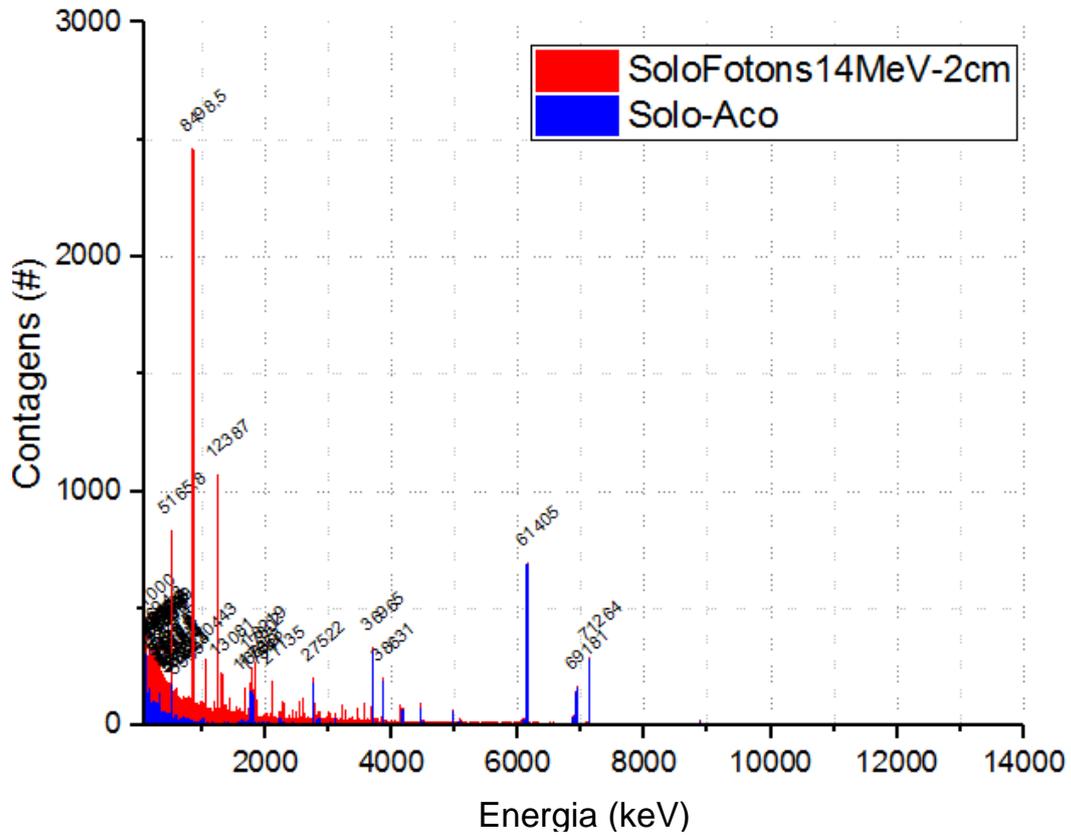


Figura 5.10: Espectro do solo com espessura da camada de esférica de 2 cm sobreposto com o mesmo espectro com as contagens da camada de aço subtraídas do mesmo.

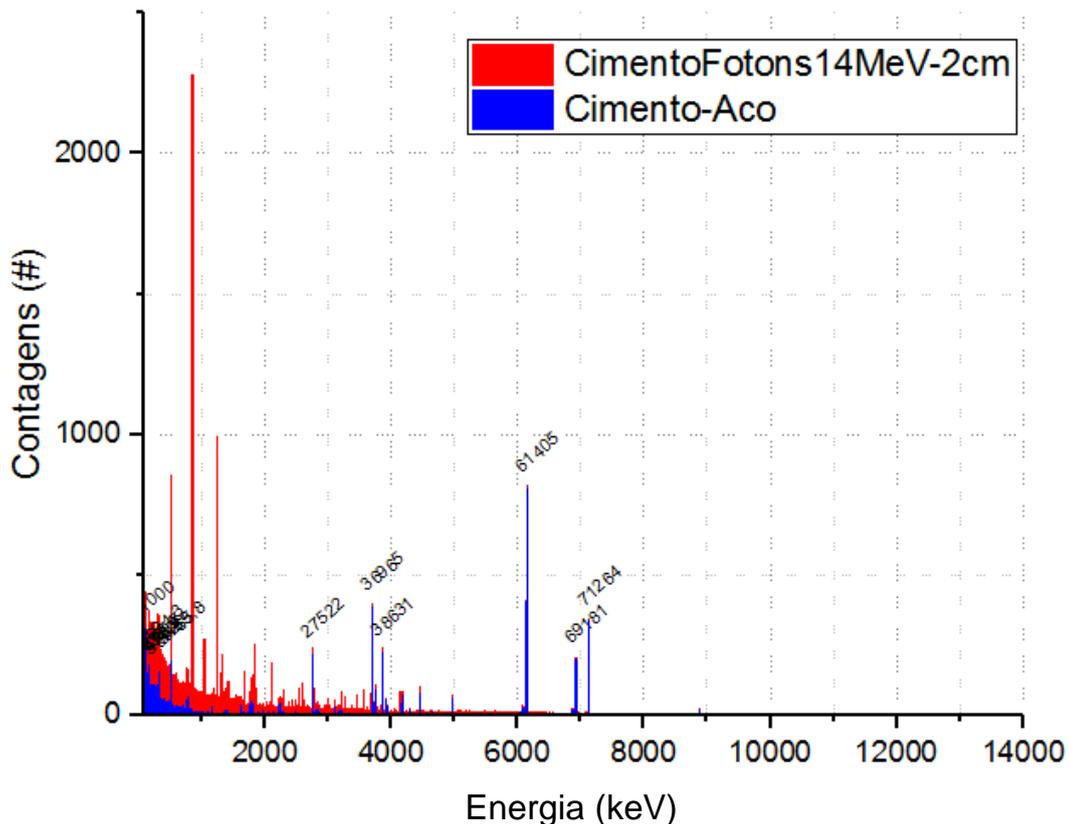


Figura 5.11: Espectro do cimento com espessura da camada de esférica de 2 cm sobreposto com o mesmo espectro com as contagens da camada de aço subtraídas do mesmo.

Fica claro, com os gráficos dessas figuras, como a remoção do *background* de aço deixa o espectro mais limpo, facilitando a análise – em especial, visualmente.

Podemos notar, também, nos espectros do solo e do cimento, que, embora alguns picos estejam presentes em ambos os espectros – em função da presença do elemento emissor daquele raio gama na composição de ambos os elementos –, a intensidade desses picos é diferente nos dois materiais. Os picos do oxigênio, por exemplo, são bem mais intensos na amostra com cimento do que na amostra com solo. Os picos do alumínio, por outro lado, tem maior intensidade nas amostras com solo do que nas amostras com cimento. Essa diferença de intensidade em picos distintos pode servir como um segundo parâmetro caracterizador de materiais a partir da análise espectral das amostras.

É importante conhecer não somente a forma das emissões dos elementos constituintes dos materiais que desejamos distinguir por meio da análise com ativação com nêutrons – a saber, o solo e o cimento –, mas, também, a forma com que as intensidades dessas emissões variam com a variação da espessura das camadas dos materiais. Tomamos o Oxigênio como base e estudamos a variação da intensidade de sua emissão com a espessura de ambos os materiais. Apresentamos, na Figura 5.12, a sua variação com a espessura do solo e, na Figura 5.13, a sua variação com a espessura do cimento – ambos na configuração geométrica com a fonte de nêutrons circundada por uma camada de 1 cm de ar, envolta por uma camada de 1 cm de aço, envolta por uma camada de espessura variável do respectivo material (solo ou cimento).

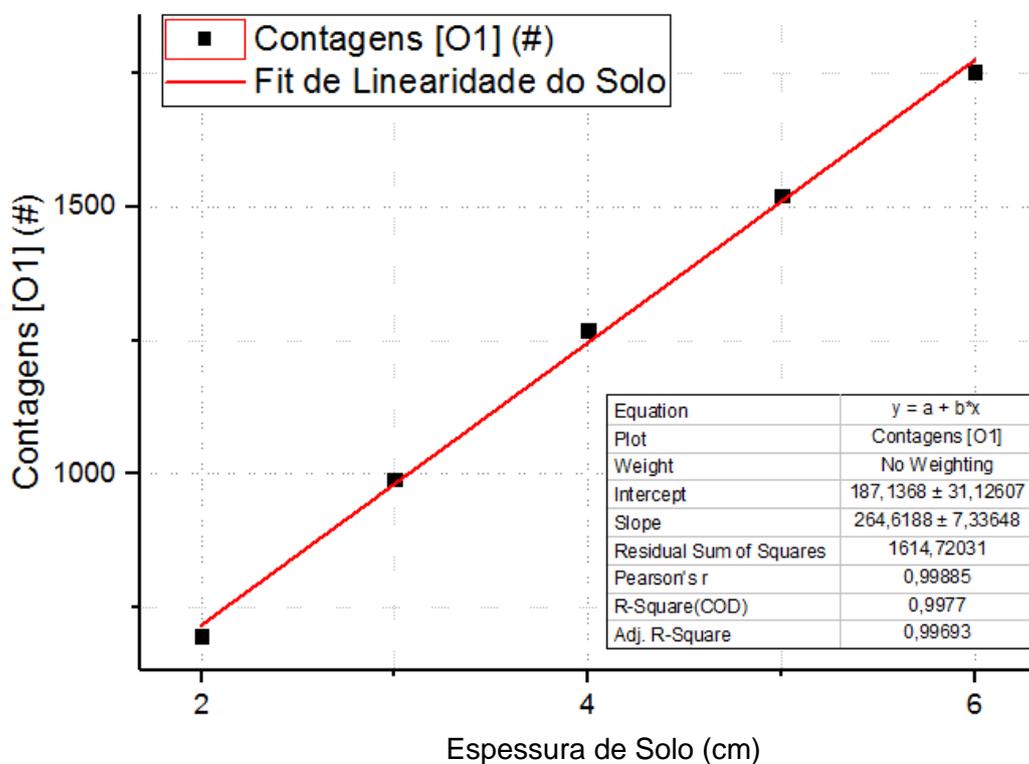


Figura 5.12: Ajuste da variação do pico de oxigênio no espectro do solo com a variação da espessura da camada de solo. A variação linear se torna evidente.

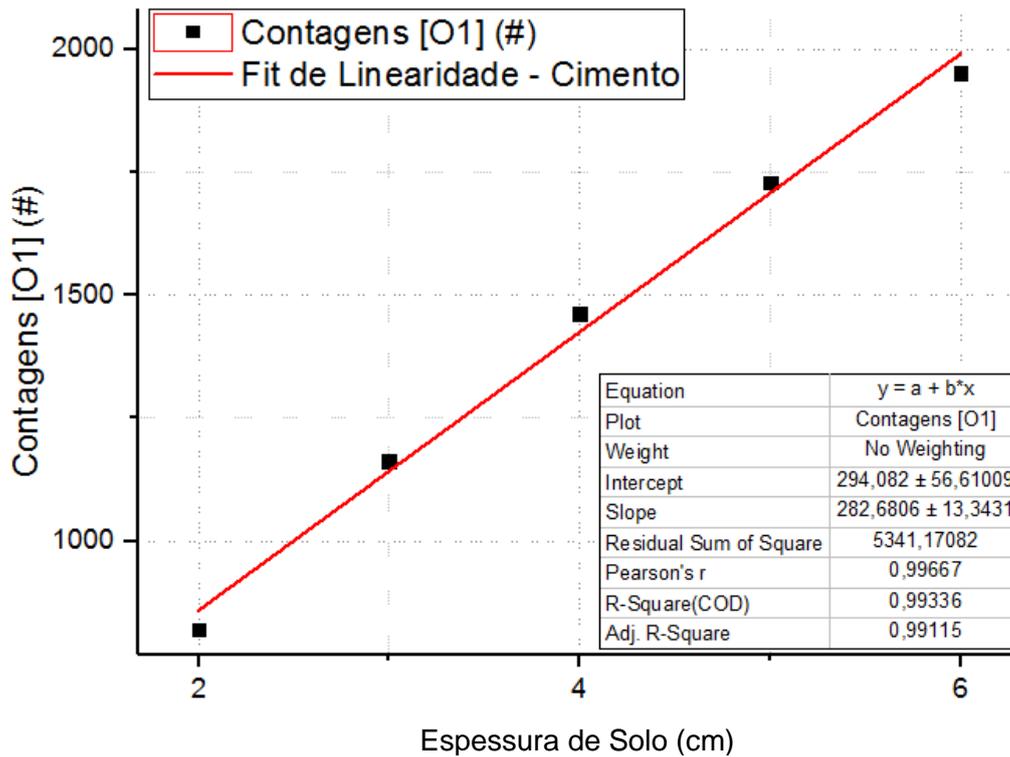


Figura 5.13: Ajuste da variação do pico de oxigênio no espectro do cimento com a variação da espessura da camada de solo. A variação linear se torna evidente.

Observamos nesses gráficos, que a variação da intensidade com a espessura do material é linear em ambos os casos. Dessa forma, realizamos o ajuste linear dessa variação e corroboramos a linearidade obtendo um ajuste linear excelente em ambos os casos, conforme pode ser verificado pela reta ajustada e pelos parâmetros do ajuste incluídos na ilustração dos gráficos nas Figuras 5.12 e 5.13.

Todos esses testes apresentados têm importância fundamental no estudo da compatibilidade das simulações de Monte Carlo com a ferramenta MCNP com os fatos, assim como no estudo dos espectros de emissão de cada um dos materiais envolvidos em nossa análise e de suas características principais. Nenhum deles, contudo, representa a situação que, de fato, desejamos estudar e o contexto em que realmente queremos distinguir um material do outro de forma a permitir uma avaliação da integridade da bainha cimentícia nos poços de petróleo, já que, nessa situação, temos a presença tanto do cimento – compondo a bainha cimentícia que envolve o tubo de aço do revestimento primário – quanto do solo – que faz interface com a bainha cimentícia e sua conexão com a terra e o ambiente natural. Para esse estudo, portanto, elaboramos novas geometrias para fazer as simulações, mantendo as camadas esféricas de ar, aço e cimento e acrescentando uma camada esférica de solo em interface com a camada

A Figura 5.15, por sua vez, ilustra todos esses espectros superpostos para fins de análise e comparação. Nessa superposição de espectros, foi incluído, para fins de teste e comparação, o espectro da configuração de espessuras 2/2 com a detecção sendo feita no aço em vez da detecção na superfície externa da camada de solo. Essa simulação foi legendada como 2/2' e está em coloração rosa na superposição.

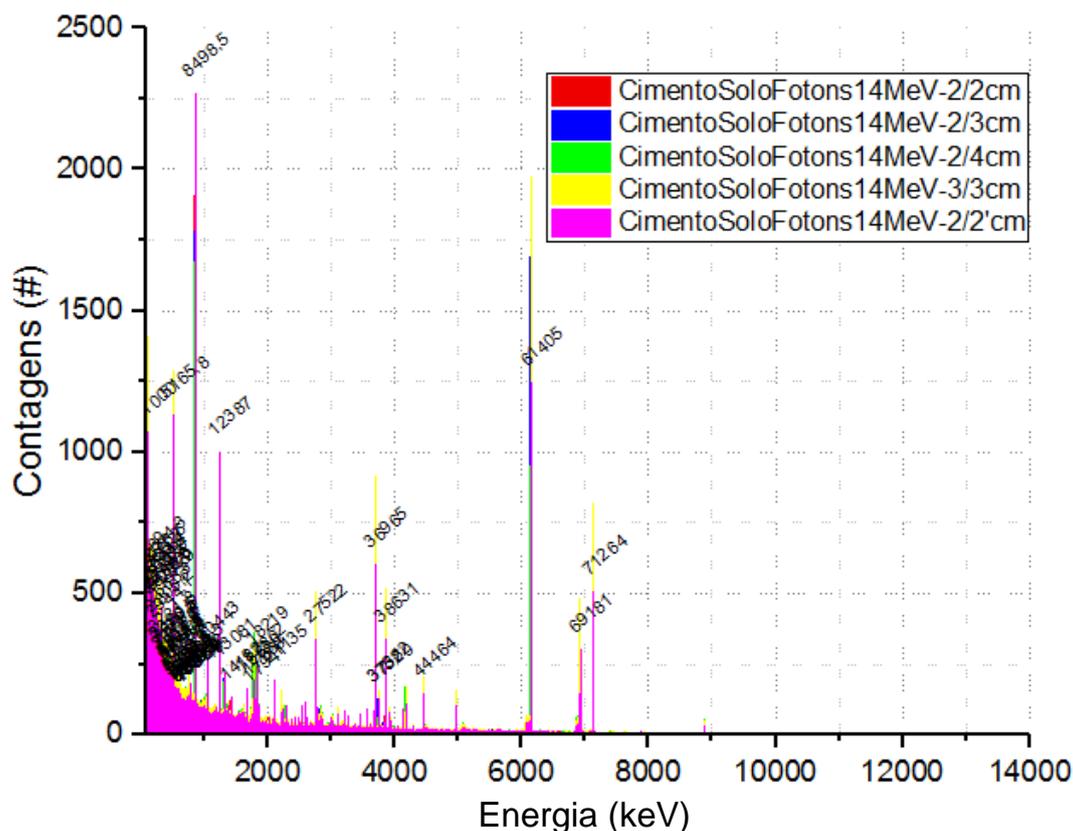


Figura 5.15: Espectros obtidos na configuração geométrica com uma camada esférica de solo envolvendo a camada esférica de cimento para diferentes espessuras das camadas de solo e de cimento superpostos.

Conforme mostramos anteriormente, alguns elementos apresentam picos mais acentuados em um material do que no outro. Para explorar esse fato, passamos a analisar as razões de emissão entre os diferentes elementos formadores do solo e do cimento. Para isso, calculamos inúmeras razões entre os valores dos diferentes picos observados na diversidade de simulações realizadas e verificamos o comportamento dessas razões com a variação das espessuras das diferentes camadas. A partir disso, observamos que algumas dessas razões não mantêm um bom padrão de comportamento que possa levar à distinção entre os materiais – que é o nosso foco de estudo nesse trabalho –, mas, que algumas outras razões, por sua vez, tem comportamentos interessantes e formam padrões que podem auxiliar na distinção dos materiais.

Apresentamos, na Figura 5.16, um gráfico com a superposição da variação de razões entre os picos de diferentes elementos com as espessuras do solo e do cimento. Nessa figura, a abscissa contém o valor da espessura do solo, enquanto a ordenada contém a razão entre o valor da razão desses elementos no solo e o valor da razão desses elementos no cimento, conforme a legenda. Observamos que, alguns elementos tem o valor da razão entre os elementos constante com a variação da espessura dos materiais tanto no solo quanto no cimento. Esses portanto, embora poderem servir para o estudo da distinção entre os materiais, não são os mais interessantes para isso. Outros, por outro lado, tem essa razão variando com a espessura de maneira diferente no solo e no cimento, mantendo, contudo, uma linearidade. Essas razões e, por conseguinte, esses elementos, serão os ideais para serem utilizados para a distinção entre os materiais baseada nos espectros de emissão.

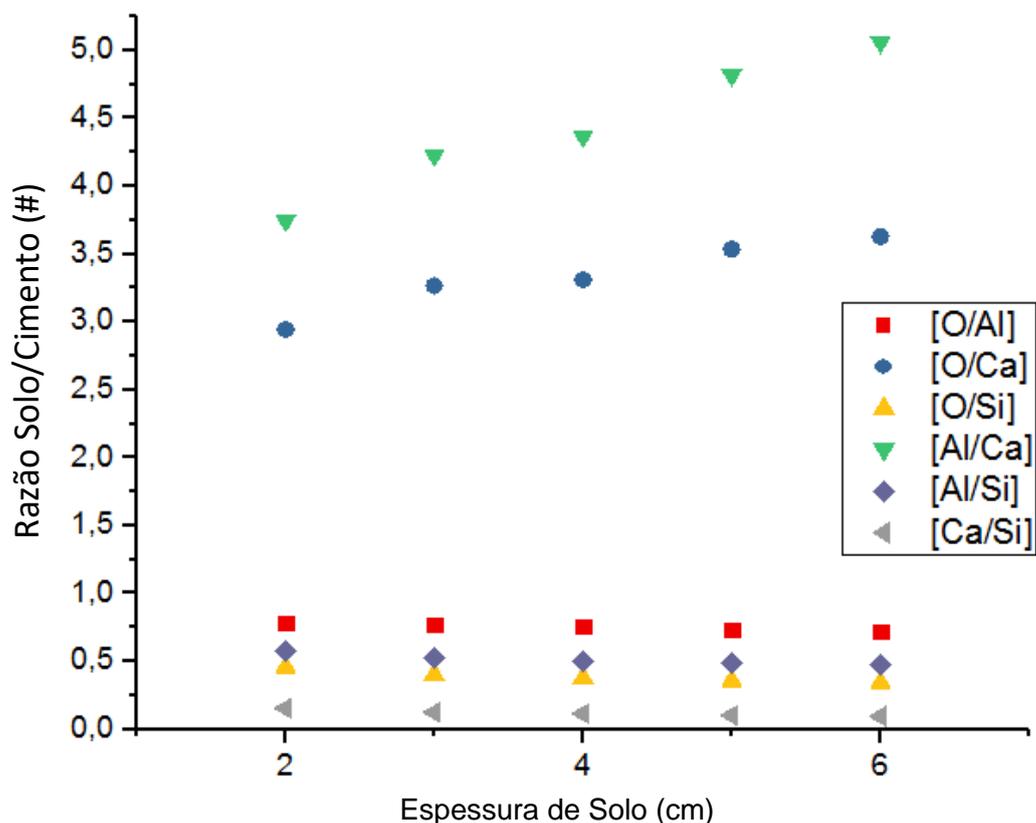


Figura 5.16: Razões, entre o solo e o cimento, das razões de emissão entre diferentes elementos em função da espessura do solo.

A partir de então, passamos a estudar a variação de cada uma das razões que ilustraram resultados interessantes com a variação das espessuras do cimento e do solo. De início, variamos a espessura do solo de 2 cm a 6 cm, mantendo fixa a espessura do cimento em 2cm, e estudamos a variação das razões de intensidade de emissão de determinados elementos com a variação de espessura do solo. Observamos, nos resultados, que algumas dessas razões variam de forma praticamente linear com a espessura do solo e, portanto, para cada uma delas, fizemos o ajuste linear de sua variação com a espessura do solo. Em seguida, para complementar o estudo, repetimos esse estudo para diferentes espessuras do cimento, variando-as entre 2 cm e 7 cm de unidade em unidade, obtendo assim, diferentes gráficos que ilustram o comportamento das razões de emissão de interesse em função da espessura do solo para diferentes espessuras do cimento, juntamente com os ajustes lineares dessas razões. Apresentamos, nas Figuras 5.17 a 5.22, os gráficos mencionados e os ajustes realizados. Os resultados dos ajustes lineares dessas razões são apresentados nas Tabelas C.3 a C.8 no Apêndice C, enquanto os valores dos picos de emissão dos elementos de interesse e das razões de interesse em questão são apresentados nas Tabelas C.1 e C.2 desse mesmo Apêndice.

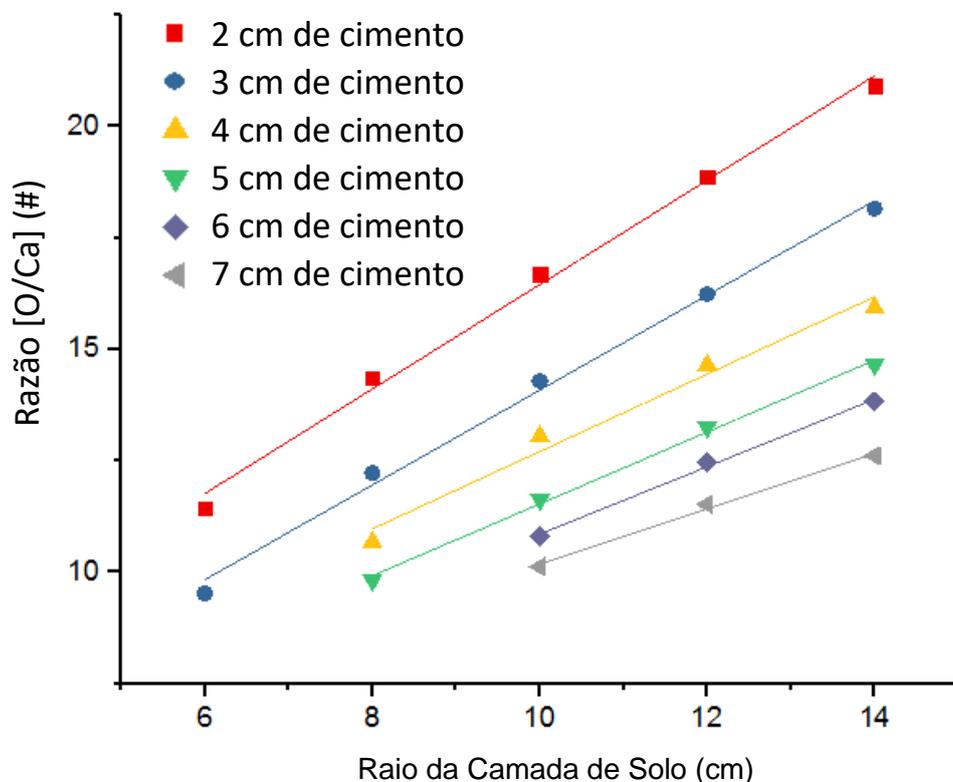


Figura 5.17: Razão de emissão [O/Ca] em função da espessura do solo.

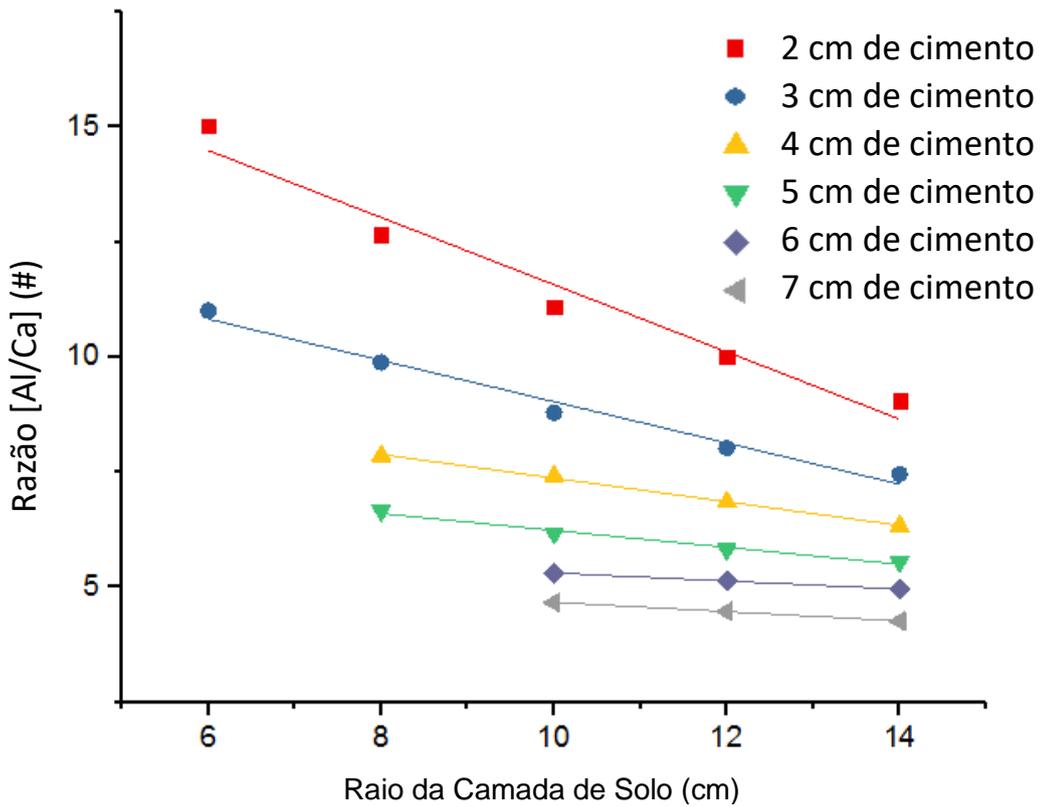


Figura 5.18: Razão de emissão [Al/Ca] em função da espessura do solo.

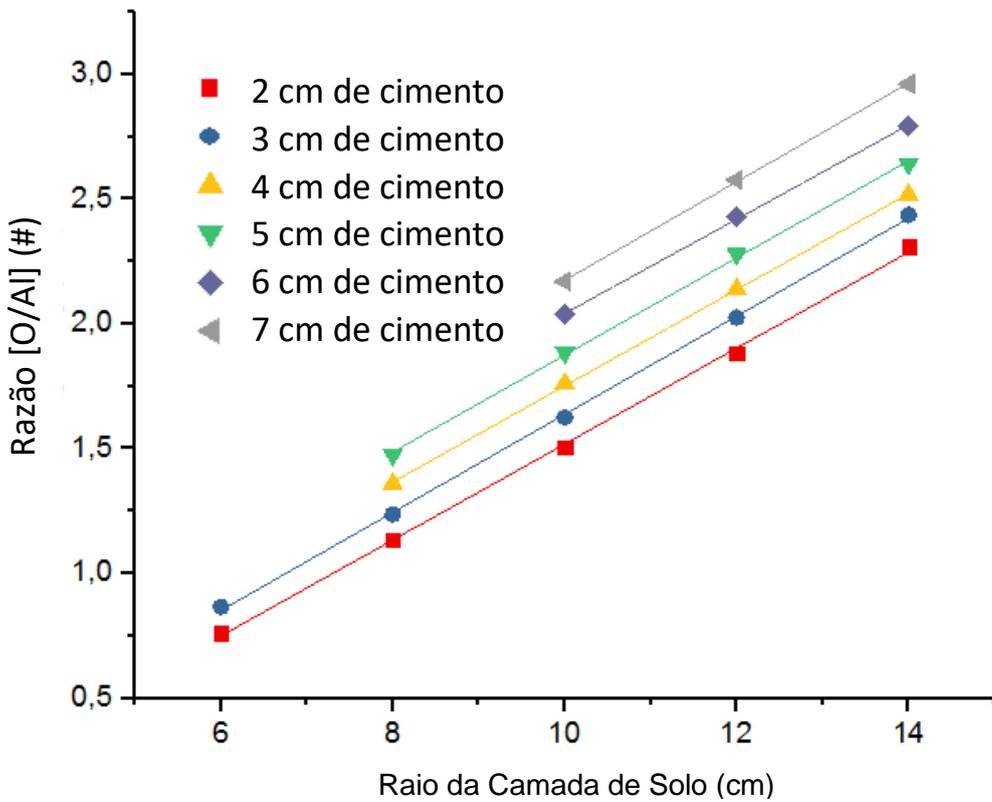


Figura 5.19: Razão de emissão [O/Al] em função da espessura do solo.

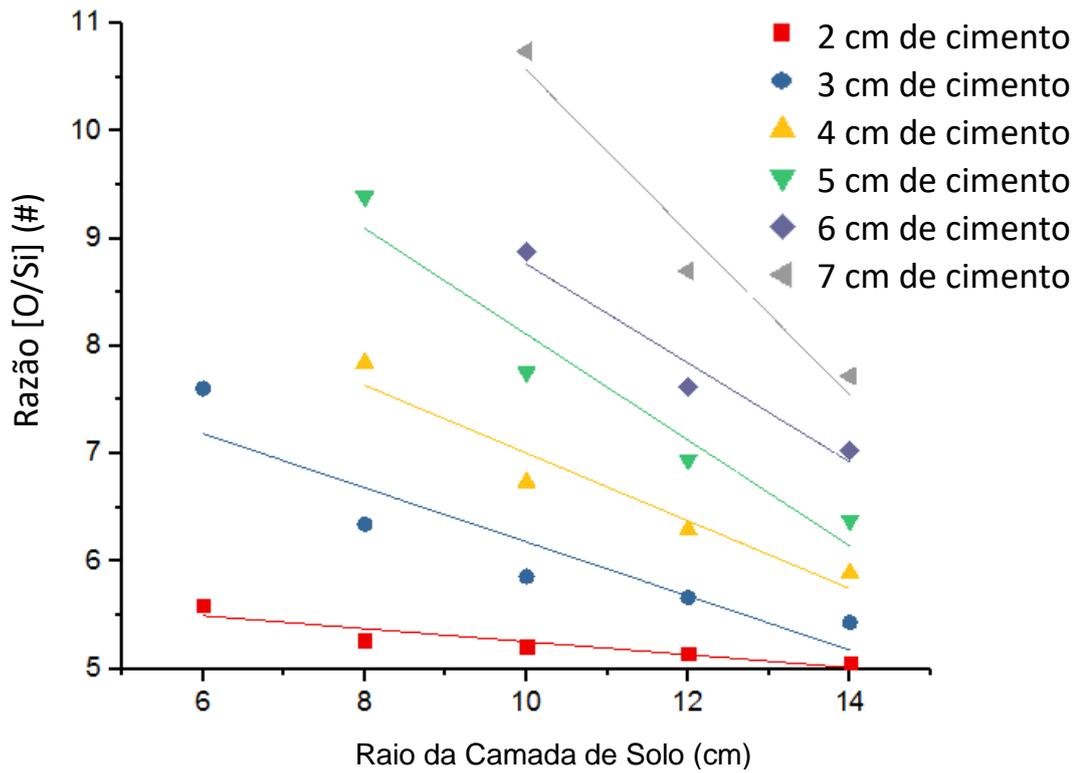


Figura 5.20: Razão de emissão [O/Si] em função da espessura do solo.

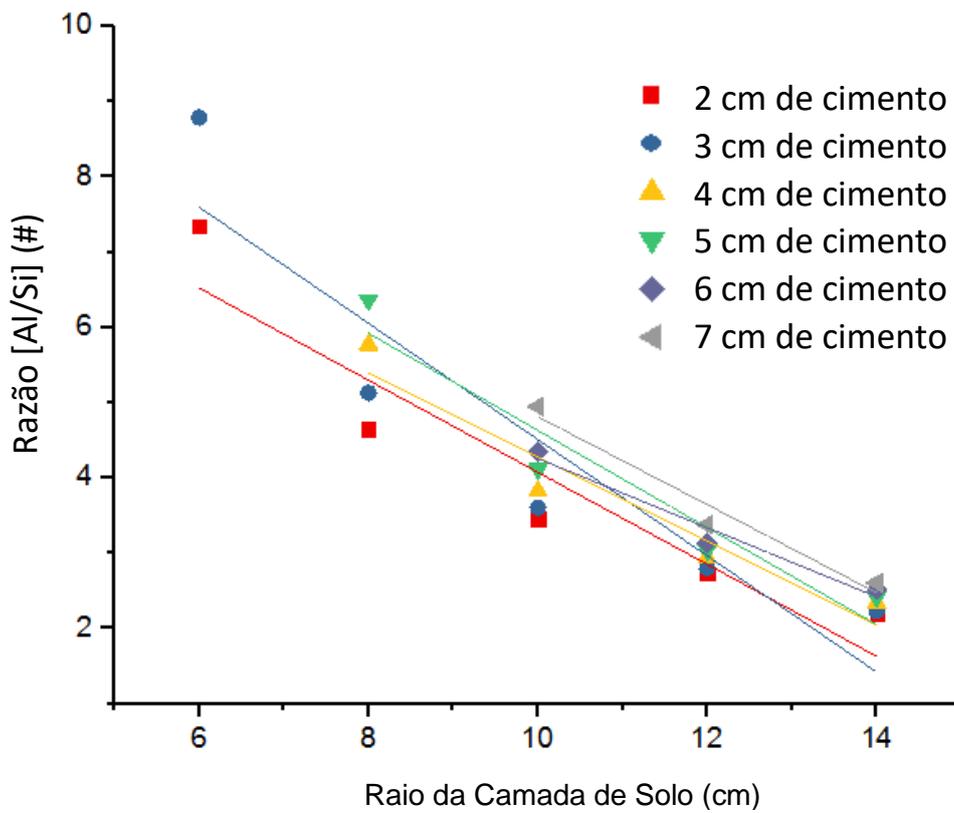


Figura 5.21: Razão de emissão [Al/Si] em função da espessura do solo.

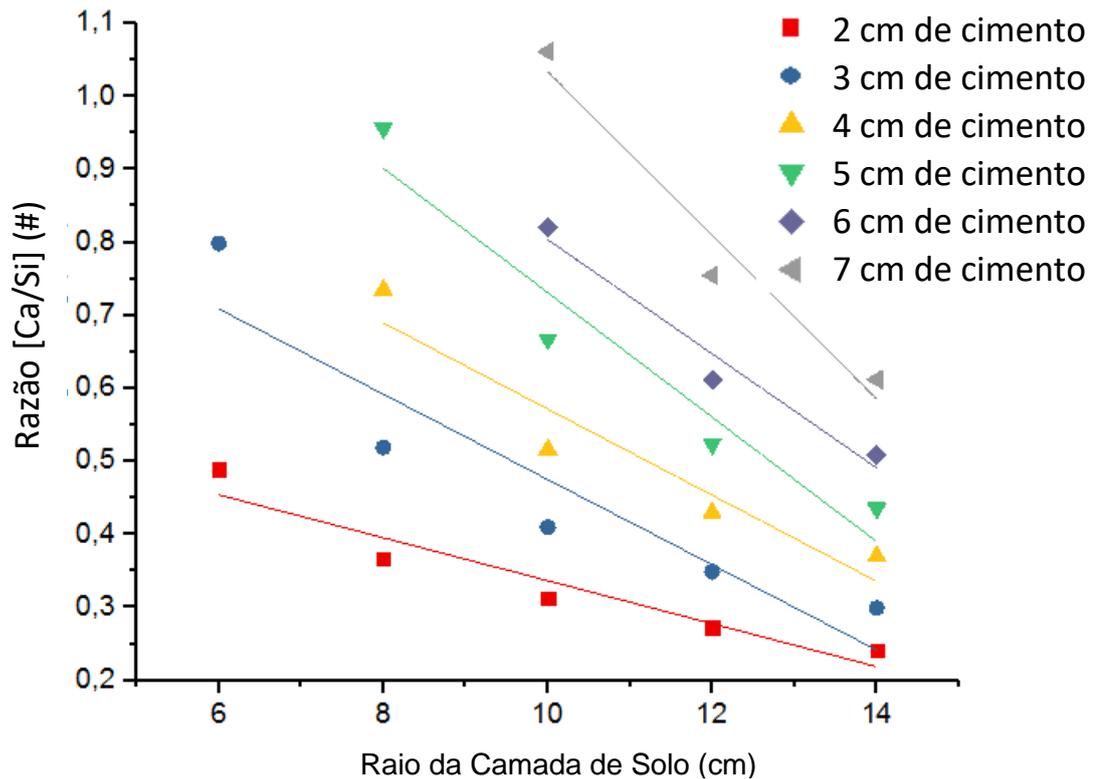


Figura 5.22: Razão de emissão [Ca/Si] em função da espessura do solo.

O estudo da tabela das razões de emissão entre elementos mostra que determinadas razões de emissão entre elementos apresentam domínios de valores distintos no cimento e no solo e, portanto, o valor dessas razões obtidas pode caracterizar a amostra como sendo de cimento ou de solo.

A razão $[O]/[Ca]$, por exemplo, apresenta, para o cimento, um domínio compreendido no intervalo $[7,6941 ; 8,62255]$, enquanto, para o solo, apresenta um domínio de valores compreendido no intervalo $[22,65446 ; 31,28322]$. Conforme pode ser notado, os intervalos são completamente distintos e, dessa forma, pelo valor assumido por essa razão, distingue-se facilmente um material do outro. O mesmo pode ser verificado para outras razões calculadas nesse trabalho, conforme apresentadas nas Tabelas C.1 e C.2 do Apêndice C.

Observamos, ainda, nos gráficos apresentados nas Figuras 5.17 a 5.22, que, algumas das razões entre emissão de raios gama por parte dos elementos têm uma linearidade muito bem definida em termos da variação com a espessura do material, a saber, o solo, sendo, portanto, de excelente utilidade na distinção do solo do cimento. Essa linearidade permite não só a caracterização do material como solo ou cimento como atende especificamente ao problema proposto nesse trabalho, que visa estudar a integridade da bainha de cimento nos poços de petróleo. A partir do resultado dessas simulações, temos diversas retas que ditarão o comportamento da razão de emissão entre diferentes elementos de acordo com a espessura do cimento e do solo e, assim, podemos construir um parâmetro que leva todos esses fatores em conta para não só caracterizar o material como cimento ou solo, mas, inclusive, para dizer qual a espessura de cimento na bainha cimentícia do referido poço ou de acusar a total ausência do mesmo, indicando uma falha mais grave.

Tomemos o comportamento da razão $[O]/[Al]$ como exemplo. Em uma situação em que a espessura padrão esperada da bainha cimentícia seja de 5 cm, esperaremos que, no espectro detectado na superfície exterior da camada de solo, a razão $[O]/[Al]$ siga a reta ajustada em cor verde no gráfico apresentado na Figura 5.19. Caso, em virtude de alguma falha de cimentação, de desgaste ou de qualquer outro fator, a bainha cimentícia tenha uma espessura menor que 5 cm, veremos a razão $[O]/[Al]$ desviando-se para baixo dessa reta, passando, por exemplo, para a reta ajustada em amarelo no mesmo gráfico caso a bainha cimentícia tenha uma espessura de 4 cm ou para a reta ajustada em azul caso a bainha cimentícia tenha uma espessura de 3 cm. Da mesma forma, se a espessura da bainha passar para mais de 5 cm – sendo 5 cm a espessura padrão assumida na explicação do presente exemplo –, veremos a razão $[O]/[Al]$ desviando-se para cima da reta ajustada em verde no gráfico em questão, passando, por exemplo, para a reta ajustada em violeta para o caso em que a bainha de cimento atingisse uma espessura de 6 cm.

O mesmo estudo comportamental e inferência de resultados, incluindo a medição da bainha cimentícia do poço, pode ser feito com as outras razões estudadas que apresentaram bons ajustes lineares, como também é o caso das razões $[O]/[Ca]$ e $[Al]/[Ca]$. As razões em que esse comportamento linear não é verificado ou as razões em que a distinção entre as retas de ajuste não seja nítido – como é o caso das razões $[O]/[Si]$ e $[Al]/[Si]$ apresentadas – não devem ser usadas para reduzir a chance de inferências e deduções equivocadas.

Um estudo com o comportamento dos nêutrons que ultrapassam todas as camadas geométricas nas simulações também foi realizado e, independentemente das condições experimentais modificadas nas várias análises apresentadas ao longo dessa dissertação, o resultado para esse comportamento dos nêutrons não teve alteração. Na Figura 5.23, apresentamos um exemplo do espectro de nêutrons obtido nas simulações na configuração com a fonte de nêutrons envolta por uma camada de ar de 1 cm, envolta por uma camada de aço de 1 cm, envolta por uma camada de cimento de 4 cm, envolta, enfim, por uma camada de solo de 10 cm.

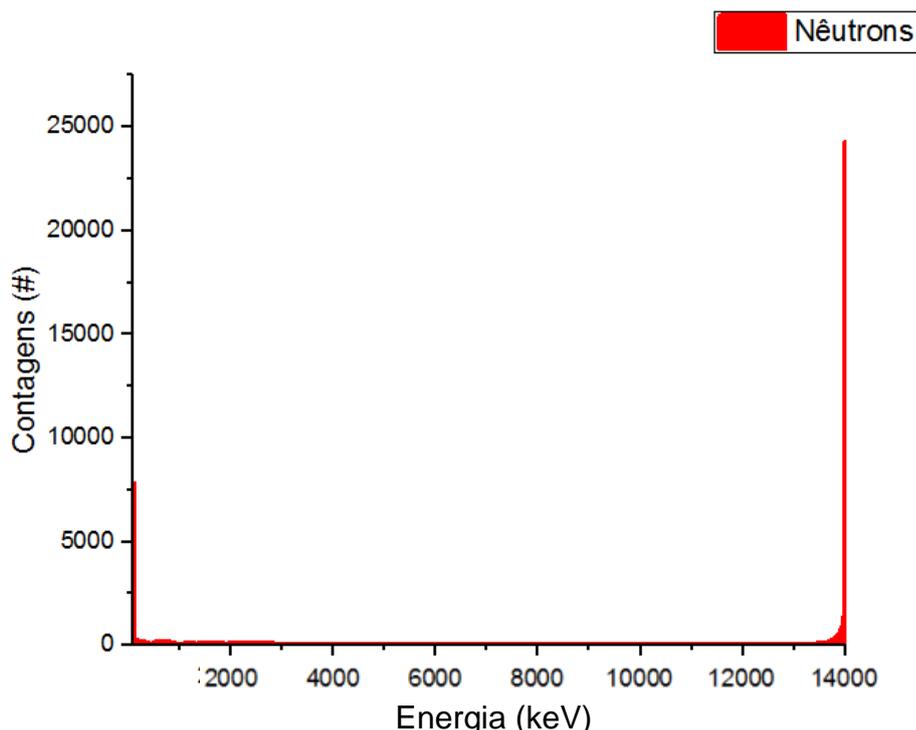


Figura 5.23: Exemplo de espectro de nêutrons detectado nas simulações ilustrando que a maioria deles interage pouco com os materiais.

Observamos, a partir do espectro de nêutrons apresentado acima, que o mesmo apresenta um único pico bem definido – atingido exponencialmente conforme a energia se aproxima do seu valor – próximo aos 14 MeV, indicando que a grande maioria dos nêutrons interage pouco com as camadas de materiais nas condições experimentais descritas nesse trabalho, emergindo com energias praticamente iguais àquelas com que foram produzidos.

Uma ideia interessante para melhorar essa eficiência de interação poderia ser o uso de um material moderador de nêutrons no meio, fazendo com que os nêutrons tenham suas energias diminuídas e que, por conseguinte, tenham uma maior interação com os núcleos dos materiais usados.

Os tipos de reações dos nêutrons e dos fótons ocorridas ao longo de suas trajetórias dentro da geometria de interesse e do balanço e do saldo dos mesmos nas simulações para uma melhor compreensão dos resultados são apresentados nas Tabelas D.1 e D.2 do Apêndice D, em que a primeira tabela faz referência aos nêutrons e a segunda tabela faz referência aos fótons. Podemos verificar, nessas tabelas, que as principais interações sofridas pelos nêutrons nessas simulações são, de fato, reações (n, xn) – reações com emissão de partículas. Quanto aos fótons, verificamos que eles são, majoritariamente, oriundos dos nêutrons. Além disso, também surgem a partir de bremsstrahlung, aniquilação de pares e fluorescências. O fim das trajetórias dos fótons, por sua vez, dá-se, principalmente, por meio da captura e, em segundo plano, por meio da produção de pares.

Essa verificação é importante para a corroboração dos resultados inferidos ao longo desse trabalho em bases teóricas da Física – conforme mencionadas, com brevidade, no Capítulo 2 dessa dissertação – e ter a certeza de que as reações ocorridas foram, realmente, as esperadas, levando à confirmação de características importantes dos espectros obtidos, como, por exemplo, a identificação do pico em torno de 0,511 MeV como sendo correspondente a um pico de produção de pares.

Capítulo 6

Conclusões e Perspectivas Futuras

Com os resultados obtidos, podemos extrair várias conclusões importantes, conforme apresenta-se a seguir:

- ✓ O Monte Carlo (MCNP) permite uma abordagem viável para a confirmação de resultados experimentais em espectrometria;
- ✓ Além dos picos característicos de elementos presentes na composição dos materiais usados, podem aparecer picos devidos a fenômenos físicos – como, por exemplo, os picos correspondentes à produção de pares e à fluorescências;
- ✓ A distinção mais óbvia entre elementos na análise por ativação com nêutrons é feita com a identificação de picos de um elemento determinado presente exclusivamente – ou em proporção muito maior – em um dos materiais sendo analisados – a exemplo da caracterização do solo a partir da identificação de picos de nitrogênio nesse trabalho;
- ✓ Uma outra possibilidade de distinção entre o solo e o concreto é a diferença na intensidade entre os picos de diferentes elementos – a exemplo dos picos do oxigênio – que, então, podem servir como parâmetros de distinção entre os materiais em casos mais simples;
- ✓ O comportamento da variação das intensidades dos picos também pode servir como parâmetro distintor. Nesse trabalho, a linearidade dos picos com a espessura pode servir para essa distinção com base nos parâmetros da reta ajustada, não sendo, contudo, a melhor técnica para esse fim com base nos estudos dessa dissertação por não fornecer identificadores e intervalos seguros que permitam a caracterização do material, uma vez que não aprofundamos a nossa análise nessa forma

de distinção por não ser eficaz para o nosso propósito – distinção dos materiais em nossas geometrias de interesse;

- ✓ Uma distinção importante entre os materiais pode ser feita com base nos valores das razões de intensidade de picos entre elementos específicos. A razão $[O]/[Ca]$, por exemplo, apresenta, para o cimento, um domínio compreendido no intervalo $[7,6941 ; 8,62255]$, enquanto, para o solo, apresenta um domínio de valores compreendido no intervalo $[22,65446; 31,28322]$;
- ✓ A forma de distinção mais útil para o propósito desse trabalho, conforme o presente estudo, baseia-se na diferença de linearidade (variação linear com a espessura das camadas dos materiais) das razões de intensidade de picos entre elementos específicos, uma vez que a variação dessa linearidade pode levar ao cálculo da espessura da camada de cimento – que é o nosso interesse principal –, conforme explicitado nas discussões.

Para a aplicação prática desse trabalho, é essencial construir o modelo geométrico simulado no MCNP de forma a representar corretamente a geometria real das medições nos poços petrolíferos – uma vez que o presente estudo utilizou apenas um modelo genérico para estudar a possibilidade de implementação do método e as possíveis formas de sua utilização.

Deve ser feito, também, num futuro trabalho, a avaliação quantitativa com a ativação por nêutrons de forma a calcular as concentrações de cada elemento nas amostras a partir dos espectros obtidos.

É interessante, para fins práticos – pode ser incluído em trabalhos futuros –, construir um parâmetro que leve em conta todos os fatores discutidos nesse trabalho e forneça uma probabilidade de caracterização do material.

Além disso, estudos adicionais para a otimização dos resultados, o aumento da eficácia e a automação da caracterização dos materiais, podem ser feitos. Nesse campo, a investigação de métodos de análise multivariada como redes neurais, árvores de decisão e separação de Fischer podem se mostrar muito úteis.

Referências Bibliográficas

- [1] Página Oficial do Governo Brasileiro (Ministério de Minas e Energia). Disponível em: <<http://www.brasil.gov.br/noticias/infraestrutura/2011/11/petroleo-e-derivados-constituem-base-da-economia-mundial>>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.
- [2] Página Oficial da Organização dos Países Exportadores de Petróleo. Disponível em: <https://www.opec.org/opec_web/en/900.htm>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.
- [3] TARGINO, 2006, Tese de Doutorado, UFRN, *Compósitos Portland-Biopolímero para Cimentação de Poços de Petróleo*. Disponível em: <<ftp://ftp.ufrn.br/pub/biblioteca/ext/bdtd/UlissesTB.pdf>>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.
- [4] THOMAS, José Eduardo et al. *Fundamentos de Engenharia de Petróleo*, 1 ed. Rio de Janeiro: Interciências/PETROBRÁS, 2001.
- [5] NÓBREGA, 2009, Tese de Doutorado, UFRN, *Formulação de Pastas Cimentícias com Adição de Suspensões de Quitosana para Cimentação de Poços de Petróleo*. Disponível em: <<ftp://ftp.ufrn.br/pub/biblioteca/ext/bdtd/AndrezaKC.pdf>>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.
- [6] SANTOS, 2006, *O Custo de Abandono nas Empresas Petrolíferas*. Disponível em: <<http://www.scielo.br/pdf/rcf/v17n41/v17n41a05.pdf>>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.
- [7] Hua Wang, Guo Tao e Xuefeng Shang, *Understanding acoustic methods for cement bond logging*. 2016. Disponível em: <<https://asa.scitation.org/doi/pdf/10.1121/1.4947511>>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.
- [8] K. HOEL, *Ultrasonic Evaluation of Well Integrity*, 2014. Disponível em: <https://brage.bibsys.no/xmlui/bitstream/handle/11250/240494/746629_FULLTEXT01.pdf?sequence=1>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.

- [9] A. Das and T. Ferbel, *Introduction to Nuclear and Particle Physics*, 2nd ed., 2003
- [10] B. H. Brandstein and C. J. Joachain, *Physics of Atoms and Molecules*, 2nd ed., 2003
- [11] Glascock, Michael. *An overview of neutron activation analysis*. 2003.
- [12] Gábor L. Molnár, *Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis with Neutron Beams*, Kluwer Academic Publishers. 1st ed., 2004.
- [13] J. Dostal, C. Elson, *General Principles of Neutron Activation Analysis*, Mineralogical Association of Canada. 1980.
- [14] De Soete, D., R. Gijbels, and J. Hoste (1972). *Neutron Activation Analysis*. John Wiley and Sons: New York, NY.
- [15] Leonardo Alves da Costa, 2007, *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.
- [16] R. A. Chaplin, *Nuclear Energy Materials and Reactors*, Vol. I, Eolss Publishers, 2010.
- [17] Página de Energia Nuclear. Disponível em: <<https://www.nuclear-power.net/nuclear-power/reactor-physics/nuclear-engineering-fundamentals/neutron-nuclear-reactions/compound-nucleus-reactions>>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.
- [18] Bill Garland, Nuclear Engineering. Disponível em: <http://www.nuceng.ca/igna/neutron_interactions.htm>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.
- [19] *CANDU Fundamentals*. Disponível em: <<https://canteach.candu.org/content%20library/20040700.pdf>>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.
- [20] David Bodansky, *Nuclear Energy, Principles, Practices and Prospects*, 2nd ed., 2004

[21] Vladivoj Valkovic, *14 MeV Neutrons Physics and Applications*, (2016, CRC Press)

[22] Edson Gonçalves Moreira, 2002, *Aplicação da análise de ativação com nêutrons ao estudo da composição química de materiais metálicos*, Dissertação de Mestrado. IPEN. 2002.

[23] Olga Shulyakova, Petr Avtonomov & Valeria Kornienko, Science Direct, 2015, *New Developments of Neutron Activation Analysis Applications*. Disponível em: <https://ac.els-cdn.com/S1877042815038598/1-s2.0-S1877042815038598-main.pdf?_tid=88227ba6-c345-11e7-85ad-00000aacb35e&acdnat=1510009086_aea14054e7ab6d95a587099b4237c4fd>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.

[24] M. E. Medhat, 2016, *Fast neutron activation analysis by means of low voltage neutron generator*. Disponível em: <<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0>>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.

[25] GLASCOCK, NEFF & HERRERA, 1999, *Ceramic Patterns, Social Interaction, and the Olmec: Neutron Activation Analysis of Early Formative Pottery in the Oaxaca Highlands of Mexico*. Disponível em: <https://s3.amazonaws.com/academia.edu.documents/36301706/Herrera_etal_1999_JAS.pdf?AWSAccessKeyId=AKIAIWOWYYGZ2Y53UL3A&Expires=1510010202&Signature=%2Bzk9N6iUNI5Ily9fYkQnIOBAbdc%3D&response-content-disposition=inline%3B%20filename%3DCeramic_patterns_social_interaction_and.pdf>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.

[26] Ruby, Lawrence & B. Rechen, Joseph. (1962). *A fast-neutron activation detector for 14-MeV pulsed neutron sources*. Nuclear Instruments and Methods. 15. 74-76. 10.1016/0029-554X(62)90030-7.

[27] Sowerby, B. D., 2009, *Nuclear techniques for the on-line bulk analysis of carbon in coal-fired power stations*.

[28] Philip C. Womble, Jon Paschal, Ryan Moore, 2005, *Cement analysis using d+d neutrons*.

[29] Nikitin, Anton & Bliven, Steven. (2010). *Needs of well logging industry in new nuclear detectors*. IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record. . 10.1109/NSSMIC.2010.5873961.

- [30] G. Vouropoulos, P. C. Womble, 2001, *Pulsed fast/thermal neutron analysis: a technique for explosives detection*.
- [31] Aleksandrov, V. D., Bogolubov, E. P., Bochkarev, O. V. et al. 2005. *Application of neutron generators for high explosives, toxic agents and fissile material detection*. Appl. Radiat. Isot. 63: 537–543.
- [32] Lanza, R. C. 2007. Nuclear techniques for explosive detection: Current prospects and requirements for future development, in *Combined Devices for Humanitarian Demining and Explosive Detection*. International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, ISBN 978-92-0-157007-9.
- [33] Barzilov, A. and Womble, P. C. 2003. *NELIS - A neutron inspection system for detection of illicit drugs*. AIP Conf. Proc. 680: 939–942, ISSN 1551-7616.
- [34] Reber, E. L., Blackwood, L. G., Edwards, A. J., Jewell, J. K., Rohde, K. W., Seabury, E. H., and Klinger, J. B. 2005. *Idaho explosives detection system*. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 241(1–4): 738–742.
- [35] Koltick, D. S., Kim, Y., McConchie, S., Novikov, I., Belbot, M., and Gardner, G. 2007. *A neutron based vehicle-borne improvised explosive device detection system*. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 261: 277–280.
- [36] Womble, P. C., Vouropoulos, G., Paschal, J., Novikov, I., and Barzilov, A. 2002. *Results of field trials for the PELAN system*. Proc. SPIE 4786: 52–57.
- [37] Holslin, D. T., Shyu, C. M., Sullivan, R. A., and Vouropoulos, G. 2006. *PELAN for nonintrusive inspection of ordnance, containers, and vehicles*. Proc. SPIE 6213: 621307.
- [38] E. Eftekhari Zadeh, A. Sadighzadeh, A. Salehizadeh, E. Nazemi, and G.H. Roshani, *Neutron Activation Analysis for Cement Elements Using IECF Device as a High Energy Neutron Source*. Analytical Methods, Royal Society of Chemistry.
- [39] Dahing, Redzuan Yahya, Roslan Yahya e Hearie Hassan, 2014, *Non destructive multi elemental analysis using prompt gamma neutron activation analysis techniques*:

Preliminary results for concrete sample, [AIP Conference Proceedings](#) **1614**, 20 (2014); doi: 10.1063/1.4895163.

[40] M.Ali-Abdallah, N.A.Mansour, M.A.Ali, M. Fayez-Hassan, 2011, *Neutron Activation Analysis of Cement Bulk Samples*, [Adv. Appl. Sci. Res.](#), 2011, 2 (4):613-620.

[41] N. Zaim, C. Dogan e Z. Camtakan, 2016, *Neutron Activation Analysis os Soil Samples from Different parts of Edirne in Turkey*, DOI 10.1007/s10812-016-0280-7, *Journal of Applied Spectroscopy*, Vol. 83, No. 2, May, 2016 (Russian Original Vol. 83, No. 2, March–April, 2016).

[42] A.M.G. Figueiredo, V. X. de Oliveira Júnior e A. J. Melfi, 1997, *Determinação de ouro a nível de traços em amostras de itabirito intemperizado do quadrilátero ferrífero por análise por ativação com nêutrons*, *Geochim. Brasil.*, 11(1):113-120, 1997.

[43] GANGADHARAN, S., YEGNASUBRAMANTAN, S., MSRA, S. C , GUPTA U. C. *Multielement analysis of minor components using a 14 MeV neutron generator*. *RADIOANAL NUCL CHEM.*, v. 24, p. 57-64, 1975.

[44] N. Sardesai, N & M. Dighe, P & R. Patil, R & Bhoraskar, Vasant & D. Gogte, V. (1988). *Elemental analysis of aluminium based alloys using 14 MeV neutrons*. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry - J RADIOANAL NUCL CHEM.* 127. 227-233. 10.1007/BF02221826.

[45] Kafala, Sami & Bahal, Beni & M. Gidrab, K. (1995). *14 MeV NAA of steel alloys by an absolute method*. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry - J RADIOANAL NUCL CHEM.* 189. 15-23. 10.1007/BF02040176.

[46] EL-ABBADY, W, H.; EL-TANAHY, Z. H.; EL-HAGG, A. A. *Limitations for qualitative and quantitative neutron activation analysis using reactor neutrons*, *Czech. J. Phys.*, v, 49, n. 7, p. 1097-1104, 1999.

[47] EHMANN, W. D.; VANCE, D. E. *Radiochemistry and nuclear methods of analysis*, 1st ed. New York. John Willey, 1991.

- [48] MIYAMOTO, Y ; HABA, H ; KAJIKAWA, A, MASUMOTO, K , NAKANTSHI, T., SAKAMOTO, K. *Interferences in neutron and photon activation analysis*. J. RADIOANAL NUCL CHEM., V. 239, n. 1, p. 165-175, 1999.
- [49] TRAVESI, A. *Análisis por activación neutronica - Teoría, práctica y aplicaciones*. Madrid, 1975.
- [50] AMIEL, S. *Nondestructive activation analysis*. New York, NY: Elsevier, 1981.
- [51] Amilton Reinaldo Aguiar, *Aplicação do método de análise por ativação com nêutrons à determinação de elementos traço em unhas humanas*, Dissertação de Mestrado, IPEN, 2001.
- [52] Carla Mitie Teruya, *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.
- [53] Julio Cezar de Oliveira Freitas, *Adição de poliuretana em pastas de cimento para poços de petróleo como agente de correção de filtrado*, Dissertação de Mestrado, UFRN, 2008.
- [54] Andrezza Kelly Costa Nóbrega, 2009, *Formulação de pastas cimentícias com adição de suspensões de quitosana para cimentação de poços de petróleo*, Tese de Doutorado, UFRN, 2009.
- [55] Shane Waterman, *Cement Well Logging Using Neutron Activation Analysis*, Worcester Polytechnic Institute, A Major Qualifying Project Submitted to the Faculty of WORCESTER POLYTECHNIC INSTITUTE in partial fulfillment of the requirements for the Degree of Bachelor of Science.
- [56] X-5 Monte Carlo Team, *MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5*, Volume I: Overview and Theory, 2003. Disponível em: <https://mcnp.lanl.gov/pdf_files/la-ur-03-1987.pdf>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.
- [57] RJ McConn Jr, CJ Gesh, RT Pagh, RA Rucker, RG Williams III, *Compendium of Material Composition Data for Radiation Transport Modeling*, Revision 1, 2011.

[58] Disponível em: <<http://cimento.org/wp-content/uploads/2013/09/FISPQ-Cimento-CPP-CLASSE-G-da-HOLCIM.pdf>>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.

[59] Disponível em:
<<http://www.cat.colacem.com/Products.aspx?Folder=Products&ID=86&mId=102>>.
Acesso em: 6 de Setembro de 2018.

[60] Disponível em:
<http://petrowiki.org/images/b/bc/Devol2_1102final_Page_386_Image_0001.png>.
Acesso em: 6 de Setembro de 2018.

[61] Disponível em: http://www.lafarge-iraq.com/wps/portal/ig/en/4_3-ProductsDetail?WCM_GLOBAL_CONTEXT=/wps/wcm/connect/lib_ig/Site_ig/AllProductDataSheet/Product_Cement_1386221746008/EM>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.

[62] Agência Internacional de Energia Atômica, *Neutron Generators for Analytical Purposes*. IAEA Radiation Technology Reports Series No. 1. Viena, 2012. Disponível em: <https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/P1535_web.pdf>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.

[63] D. O. Nellis *et al.*, *Neutron Scattering and Gamma Ray Production Cross Sections for N, O, Al, Si, Ca and Fe*, Nuclear Chicago Corporation, 1972. Disponível em: <<http://www.dtic.mil/dtic/tr/fulltext/u2/744666.pdf>>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.

[64] Agência Internacional de Energia Atômica, *Database for Prompt Gamma-ray Neutron Activation Analysis*. Disponível em: <<https://www-nds.iaea.org/pgaa/>>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.

[65] M. CUYPERS and J. CUYPERS, *Gamma-Ray Spectra and Sensitivities for 14 MeV Neutron Activation Analysis*. Disponível em: <www.dtic.mil/dtic/tr/fulltext/u2/816628.pdf>. Acesso em: 6 de Setembro de 2018.

Apêndice A

Comparações entre Simulações e Dados

Apresenta-se, nesse apêndice, os resultados encontrados para a verificação de consistência entre os espectros produzidos pelos elementos de interesse nas simulações de MCNP com aqueles esperados, assim como as comparações entre os picos encontrados nas simulações com aqueles da literatura. As Figuras A.1 a A.11 ilustram os espectros obtidos para as amostras dos elementos simulados e a Tabela A.1 resume os principais picos encontrados nos espectros obtidos em comparação com os valores tabelados e bem estabelecidos dos mesmos na literatura.

Essas simulações – assim como todas as outras cujos resultados foram apresentados ao longo da dissertação – foram feitas com uma fonte de nêutrons de 14 MeV centrada na origem com um milhão de histórias.

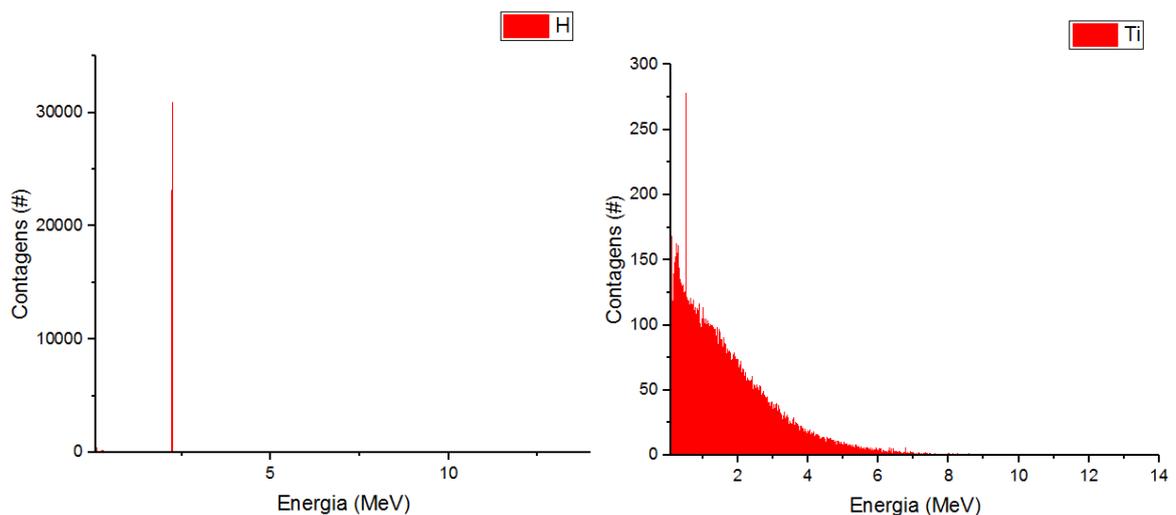


Figura A.1: Espectros obtidos no MCNP para: Hidrogênio (à esquerda) e Titânio (à direita)

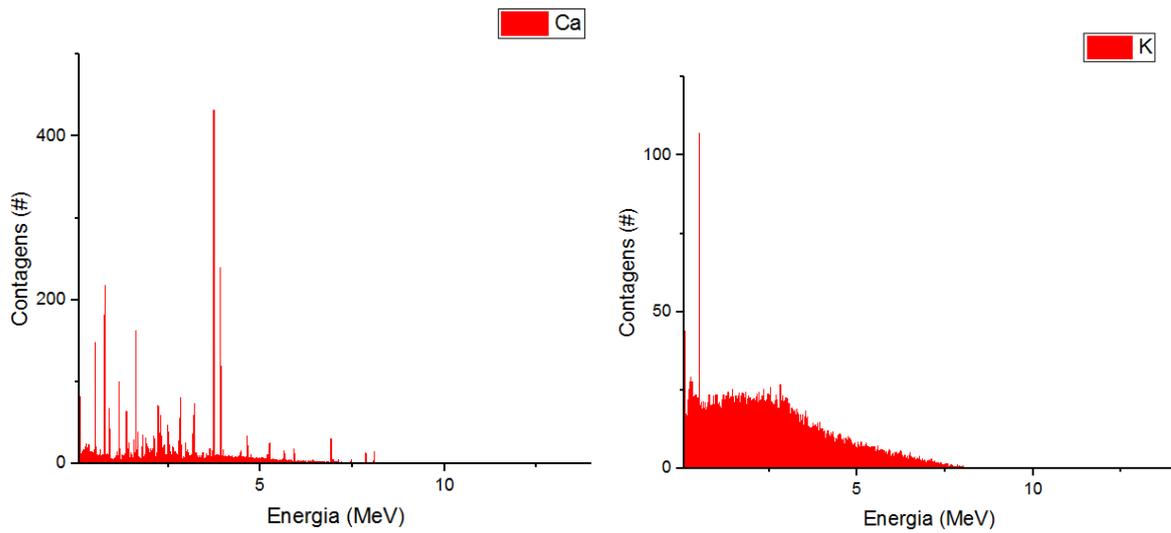


Figura A.2: Espectros obtidos no MCNP para: Cálcio (à esquerda) e Potássio (à direita)

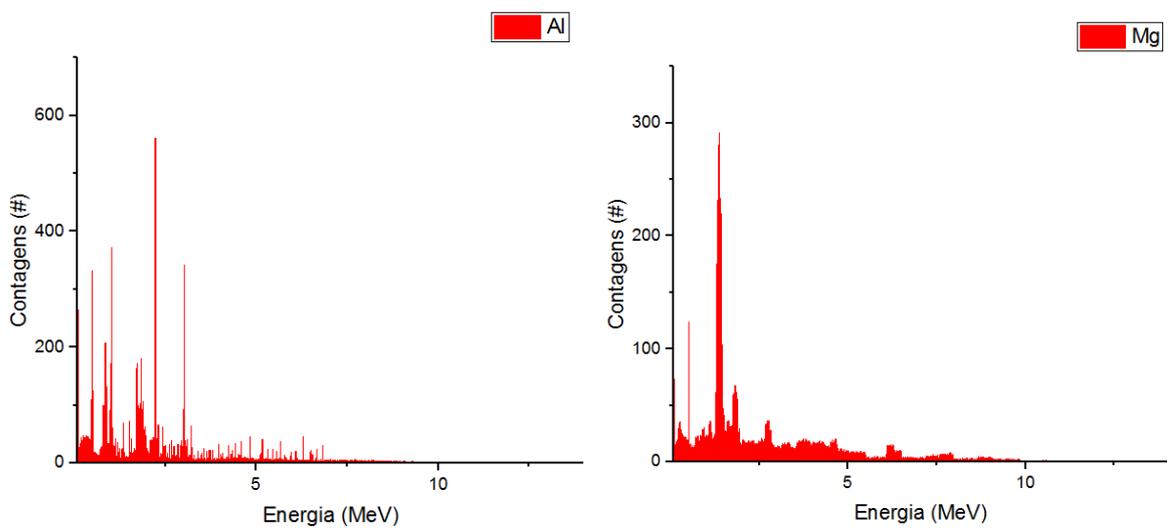


Figura A.3: Espectros obtidos no MCNP para: Alumínio (à esquerda) e Magnésio (à direita)

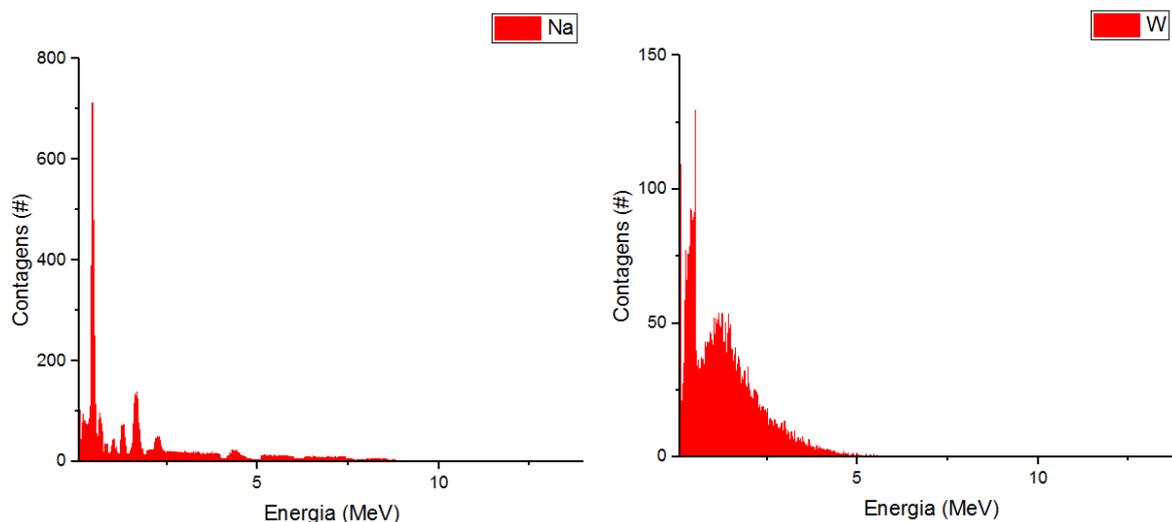


Figura A.4: Espectros obtidos no MCNP para: Sódio (à esquerda) e Tungstênio (à direita)

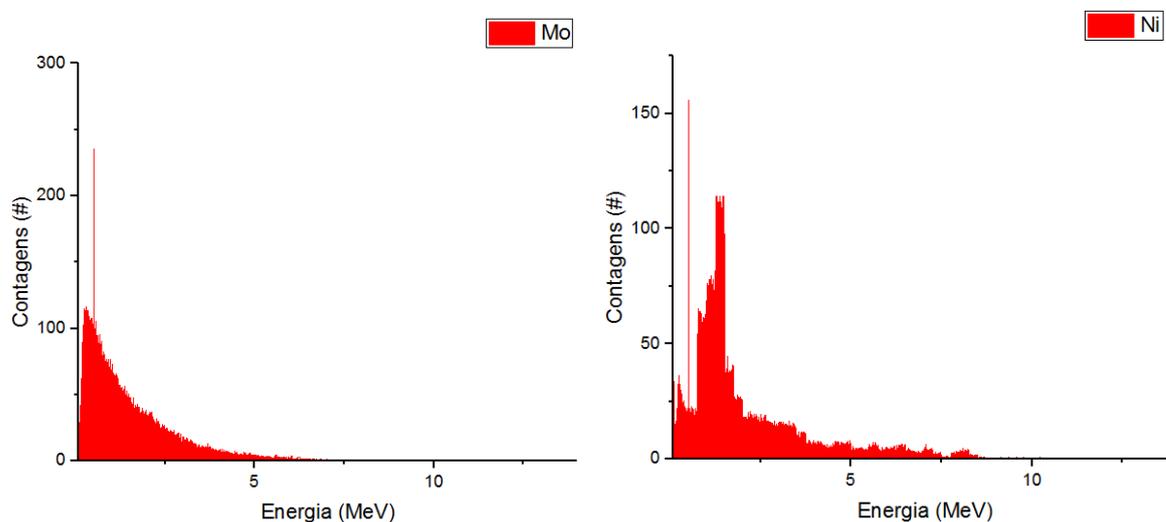


Figura A.5: Espectros obtidos no MCNP para: Molibidênio (à esquerda) e Níquel (à direita)

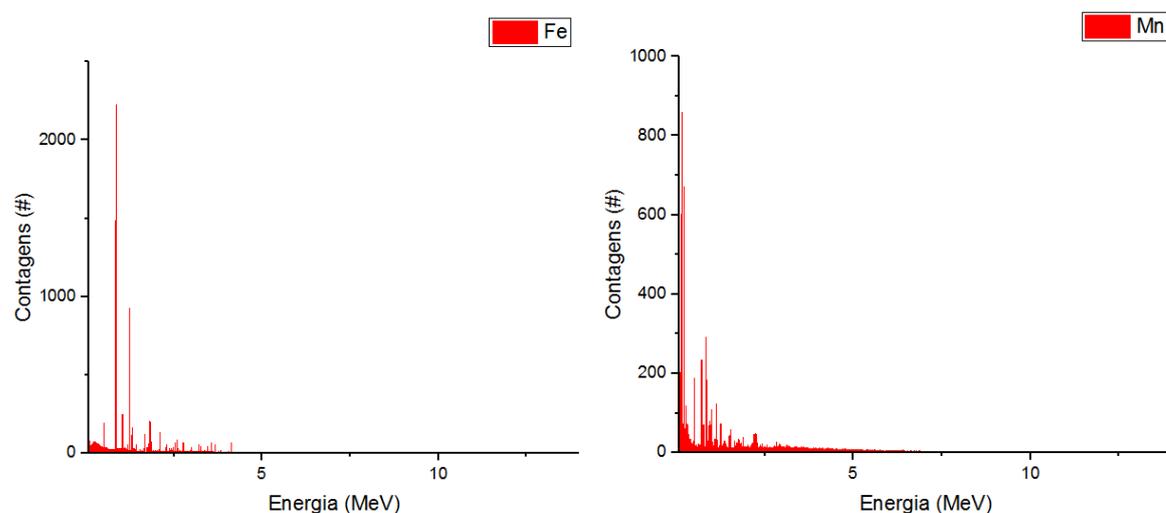


Figura A.6: Espectros obtidos no MCNP para: Ferro (à esquerda) e Manganês (à direita)

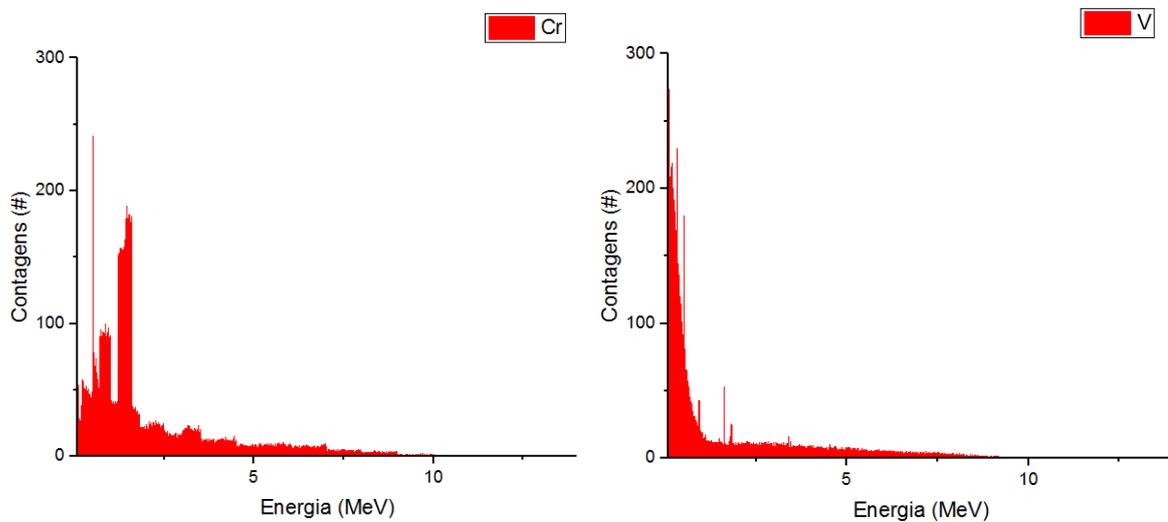


Figura A.7: Espectros obtidos no MCNP para: Crômio (à esquerda) e Vanádio (à direita)

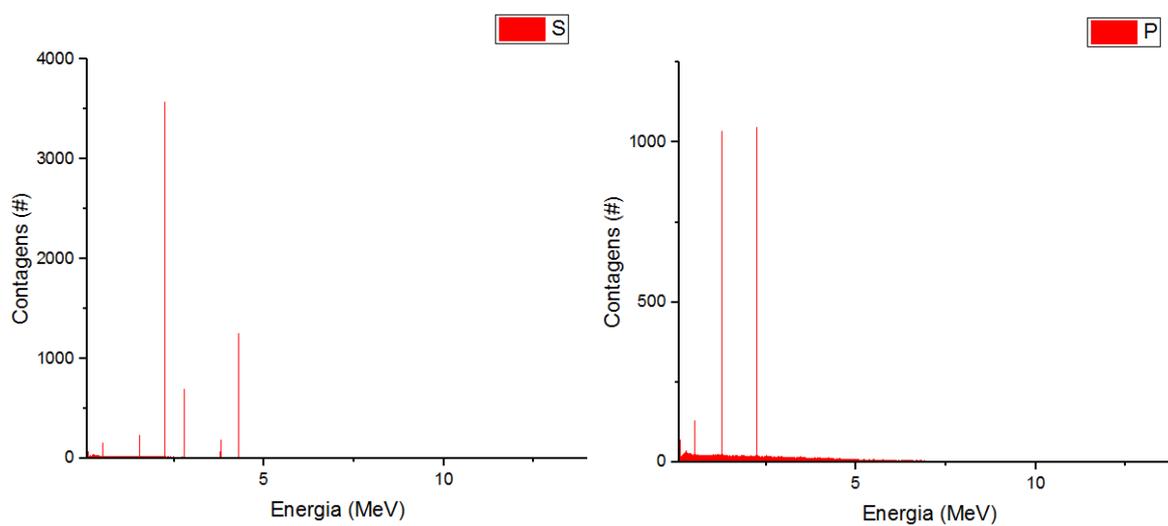


Figura A.8: Espectros obtidos no MCNP para: Enxofre (à esquerda) e Fósforo (à direita)

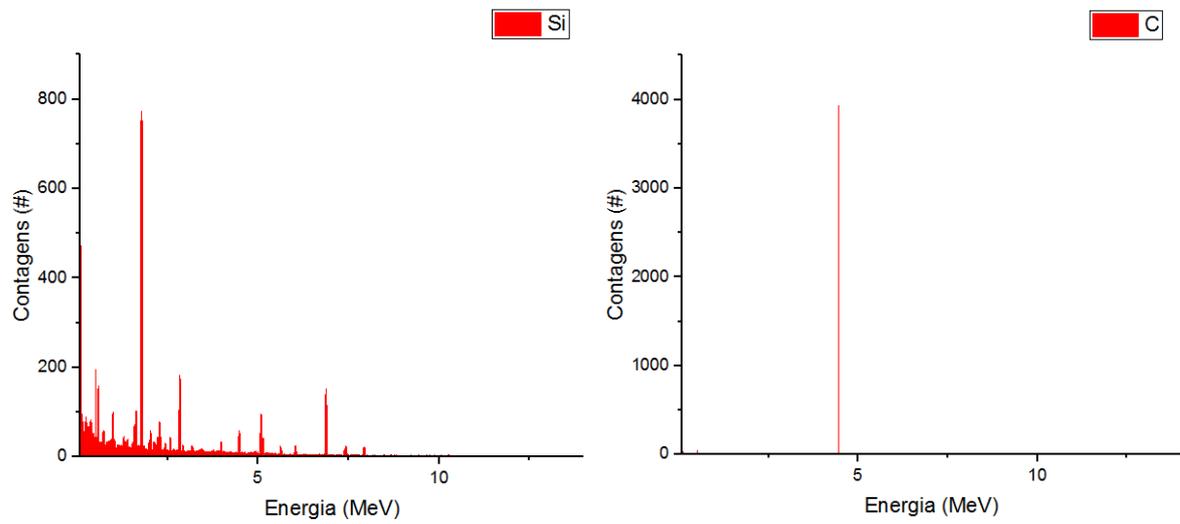


Figura A.9: Espectros obtidos no MCNP para: Silício (à esquerda) e Carbono (à direita)

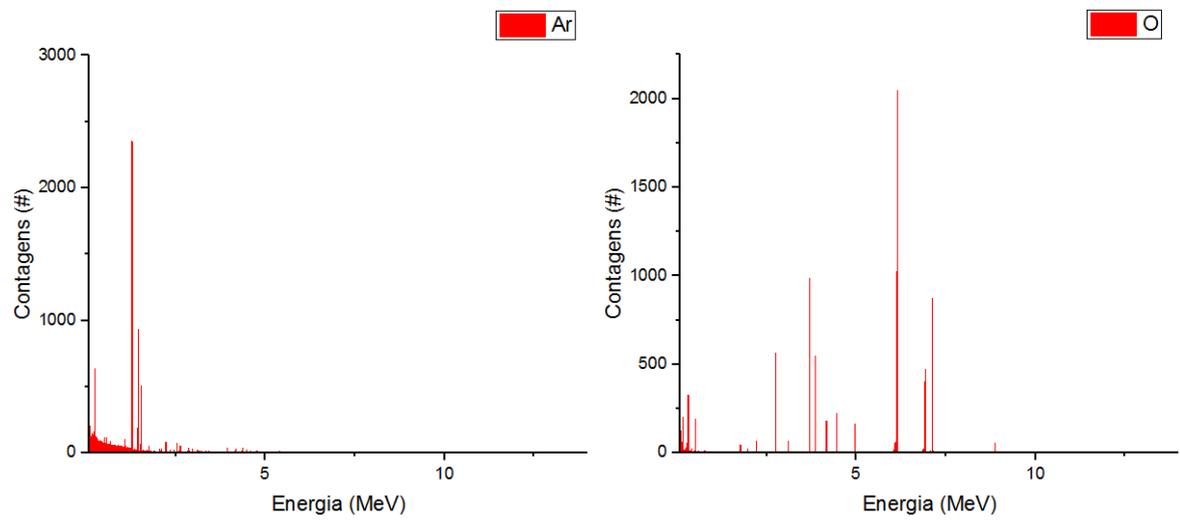


Figura A.10: Espectros obtidos no MCNP para: Argônio (à esquerda) e Oxigênio (à direita)

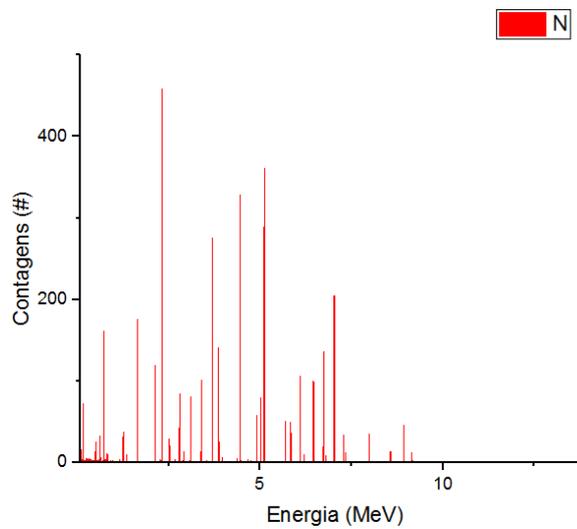


Figura A.11: Espectros obtidos no MCNP para: Nitrogênio

Tabela A.1: Comparação dos picos obtidos nas simulações feitas no MCNP com os valores dos picos tabelados [62, 63, 64, 65] para cada um dos elementos de interesse.

Elemento	Picos Tabelados (MeV) *	Picos Encontrados (MeV)
Hidrogênio (H)	2,22323	0,516 ± 0,014
		2,224 ± 0,014
Titânio (Ti)	0,52 0,89 0,99 1,12	0,516 ± 0,014
		0,892 ± 0,014
		0,989 ± 0,014
		1,128 ± 0,014
Cálcio (Ca)	3,73	0,516 ± 0,014
		0,767 ± 0,014
		1,169 ± 0,014
		1,614 ± 0,014
		3,738 ± 0,014
		3,752 ± 0,014
		3,919 ± 0,014
Potássio (K)	**	0,516 ± 0,014
Alumínio (Al)	0,84 1,01 1,83	0,516 ± 0,014
		0,794 ± 0,014
		0,850 ± 0,014
		0,878 ± 0,014
		1,017 ± 0,014
		1,725 ± 0,014
		1,822 ± 0,014

		1,877 ± 0,014
Magnésio (Mg)	1,37	0,516 ± 0,014 1,364 ± 0,014
	1,83	1,378 ± 0,014
	2,75	1,822 ± 0,014
		2,766 ± 0,014
Sódio (Na)	0,44	0,447 ± 0,014 0,516 ± 0,014
	1,65	1,628 ± 0,014 1,655 ± 0,014
		2,266 ± 0,014
Tungstênio (W)	**	0,516 ± 0,014 1,253 ± 0,014
		1,419 ± 0,014
Molibidênio (Mo)	**	0,516 ± 0,014
Níquel (Ni)		0,516 ± 0,014 1,280 ± 0,014
	1,37	1,364 ± 0,014 1,447 ± 0,014
		1,488 ± 0,014
Ferro (Fe)	0,84	0,516 ± 0,014
	0,845	0,850 ± 0,014
	2,11	1,044 ± 0,014

		1,239 ± 0,014 2,114 ± 0,014
Manganês (Mn)	0,84	0,128 ± 0,014 0,156 ± 0,014 0,516 ± 0,014 0,711 ± 0,014 0,836 ± 0,014 0,989 ± 0,014 1,128 ± 0,014 1,266 ± 0,014
Crômio (Cr)	1,43	0,516 ± 0,014 0,850 ± 0,014 1,433 ± 0,014 1,461 ± 0,014 1,516 ± 0,014
Vanádio (V)	0,32	0,322 ± 0,014 0,516 ± 0,014 1,822 ± 0,014
Enxofre (S)	2,2	0,516 ± 0,014 1,544 ± 0,014 2,239 ± 0,014 2,780 ± 0,014 4,294 ± 0,014

Fósforo (P)	1,27	0,516 ± 0,014
		1,266 ± 0,014
	2,24	2,239 ± 0,014
Silício (Si)		0,516 ± 0,014
		0,586 ± 0,014
	1,78	1,780 ± 0,014
		2,836 ± 0,014
Carbono (C)	4,44	0,516 ± 0,014 4,446 ± 0,014
Argônio (Ar)		0,253 ± 0,014
		0,516 ± 0,014
		0,572 ± 0,014
	0,51	1,072 ± 0,014
	0,56	1,280 ± 0,014
		1,461 ± 0,014
		1,530 ± 0,014
Oxigênio (O)		0,169 ± 0,014
		0,308 ± 0,014
	6,13	0,516 ± 0,014
	6,92	2,752 ± 0,014
	7,12	3,863 ± 0,014
		4,169 ± 0,014 4,446 ± 0,014

		4,960 ± 0,014
		6,141 ± 0,014
		6,918 ± 0,014
		7,126 ± 0,014
Nitrogênio (N)	**	0,169 ± 0,014
		0,516 ± 0,014
		0,614 ± 0,014
		0,739 ± 0,014
		1,253 ± 0,014
		1,641 ± 0,014
		2,127 ± 0,014
		2,322 ± 0,014
		2,502 ± 0,014
		2,530 ± 0,014
		2,794 ± 0,014
		3,391 ± 0,014
		3,696 ± 0,014
		3,863 ± 0,014
		4,446 ± 0,014
4,919 ± 0,014		
5,030 ± 0,014		
5,113 ± 0,014		
5,696 ± 0,014		

		5,835 ± 0,014
		5,863 ± 0,014
		6,098 ± 0,014
		6,460 ± 0,014
		6,738 ± 0,014
		7,015 ± 0,014
		7,029 ± 0,014
		7,293 ± 0,014
		8,932 ± 0,014

* somente foram listados os valores tabelados que foram registrados nas simulações.

** nenhum valor tabelado que tenha sido registrado nas simulações.

Apêndice B

Cálculo da Composição do Cimento Classe G usado

Apresentamos, na Tabela B.1, o resumo dos cálculos realizados para obter a composição do cimento classe G usado nessa dissertação a partir das informações sobre a sua composição apresentadas nas Tabelas 4.1 a 4.4 do Capítulo 4 e da informação de que, na formação dessa classe de cimento, há 44 gramas de água para cada 100 gramas de cimento.

Os pesos dos componentes sem água, presentes na sexta coluna da Tabela B.1, foram calculados conforme apresentado no Capítulo 4, com o resumo dos dados ilustrados na Tabela 4.5 do mesmo capítulo. Na última coluna da tabela, são apresentadas as frações finais de cada elemento no componente, já sendo considerada a presença da água em sua formação. A partir dessas composições finais – somando as frações de cada elemento em todos os componentes em que o elemento está presente –, calculou-se a fração final total dos elementos, apresentadas na Tabela 4.6 do Capítulo 4 dessa dissertação.

Tabela B.1: Composição Elementar do Cimento Classe G calculada para o uso desse material nas simulações com MCNP no presente trabalho.

#	Elemento	Massa Atômica	Nº de Átomos	Porcentagem da Massa	Peso do Componente Sem Água	Peso do Componente Com Água	Fração do Elemento
1	Ca	40,078	3	0,526611	0,54	0,375	0,197479125
	Si	28,0855	1	0,123011			0,046129125
	O	15,9994	5	0,350378			0,13139175
				1			0,375
2	Ca	40,078	2	0,465376	0,1	0,069444444	0,032317778
	Si	28,0855	1	0,163061			0,011323681
	O	15,9994	4	0,371563			0,025802986
				1			0,069444444
3	Ca	40,078	4	0,329888	0,21	0,145833333	0,048108667
	Al	26,9815386	2	0,111044			0,016193917
	Fe	55,485	2	0,229834			0,033517458
	O	15,9994	10	0,329234			0,048013292
				1			0,145833333
4	Ca	40,078	3	0,444992	0,03	0,020833333	0,009270667
	Al	26,9815386	2	0,19972			0,004160833
	O	15,9994	6	0,355288			0,007401833
				1			0,020833333
5	Ca	40,078	1	0,400432	0	0	0
	C	12,0107	1	0,120003			0
	O	15,9994	3	0,479565			0
				1			0

6	Ca	40,078	1	0,294387	0,02	0,013888889	0,004088708
	S	32,065	1	0,235529			0,003271236
	O	15,9994	4	0,470084			0,006528944
				1			0,013888889
7	Mg	24,305	1	0,603036	0,06	0,041666667	0,0251265
	O	15,9994	1	0,396964			0,016540167
				1			0,041666667
8	Ca	40,078	1	0,714691	0	0	0
	O	15,9994	1	0,285309			0
				1			0
9	S	32,065	1	0,400496	0,03	0,020833333	0,008343667
	O	15,9994	3	0,599504			0,012489667
				1			0,020833333
10	Na	0,229897693	2	0,741857	0,005	0,003472222	0,002575892
	O	15,9994	1	0,258143			0,00089633
				1			0,003472222
11	K	39,0983	2	0,830148	0,005	0,003472222	0,002882458
	O	15,9994	1	0,169852			0,000589764
				1			0,003472222
12	H	1,00794	2	0,111898	0	0,305555556	0,034191056
	O	15,9994	1	0,888102			0,2713645
				1			0,305555556
TOTAL					1	1	1

Apêndice C

Cálculos Auxiliares e Dados de Ajustes

Alguns dados importantes registrados no decorrer do trabalho foram omitidos do texto principal da presente dissertação. Apresentamos, nas Tabelas C.1 e C.2, os principais dados omitidos. As duas tabelas são semelhantes, contendo, a primeira, as informações relativas aos dados registrados para o cimento e, a segunda, as informações relativas aos dados registrados para o solo.

A coluna inicial das tabelas contém a espessura do material (cimento ou solo) na simulação feita. As quatro colunas seguintes contém as contagens de picos de Oxigênio, Alumínio, Cálcio e Silício registradas para as respectivas espessuras. As últimas seis colunas, por fim, contém os valores das razões de interesse entre as contagens dos quatro elementos anteriormente apresentados.

Já nas Tabelas C.3 a C.8, são apresentados os dados dos ajustes lineares das diferentes razões de interesse – conforme presentes nas Tabelas C.1 e C.2 –, cujos gráficos estão presentes nas Figuras 5.17 a 5.22 do Capítulo 5 dessa dissertação.

Tabela C.1: Valores dos picos de emissão dos elementos de interesse e das razões de emissão de interesse com a espessura da camada esférica de cimento variando numa geometria ar+aço+cimento (camadas de materiais de dentro para fora).

Espessura do Cimento (cm)	Contagens #	Contagens #	Contagens #	Contagens #	Razão #					
Elemento	[O]	[Al]	[Ca]	[Si]	[O/Al]	[O/Ca]	[O/Si]	[Al/Ca]	[Al/Si]	[Ca/Si]
2	820,322	2278,77	106,617	131,287	0,35998	7,6941	6,24831	21,37342	17,35716	0,81209
3	1162,31	2059,15	144,19	143,675	0,56446	8,06096	8,08986	14,28081	14,332	1,00358
4	1462,31	1844,44	177,475	154,169	0,79282	8,23953	9,48511	10,39268	11,96375	1,15117
5	1728,4	1654,39	203,733	164,252	1,04474	8,48365	10,52286	8,12038	10,07227	1,24037
6	1950,68	1496,2	226,23	172,793	1,30376	8,62255	11,28911	6,61362	8,65892	1,30925

Tabela C.2: Valores dos picos de emissão dos elementos de interesse e das razões de emissão de interesse com a espessura da camada esférica de solo variando numa geometria ar+aço+solo (camadas de materiais de dentro para fora).

Espessura do Solo (cm)	Contagens #	Contagens #	Contagens #	Contagens #	Razão #					
Elemento	[O]	[Al]	[Ca]	[Si]	[O/Al]	[O/Ca]	[O/Si]	[Al/Ca]	[Al/Si]	[Ca/Si]
2	695,562	2459,59	30,7031	244,311	0,2828	22,65446	2,84704	80,10885	10,06746	0,12567
3	990,068	2271,12	37,6068	303,674	0,43594	26,32683	3,2603	60,39121	7,47881	0,12384
4	1268,19	2109,84	46,4861	354,596	0,60108	27,28106	3,57644	45,38647	5,94998	0,1311
5	1521,1	1985,15	50,7237	404,555	0,76624	29,98795	3,75993	39,13654	4,907	0,12538
6	1753,14	1875,74	56,0409	452,451	0,93464	31,28322	3,87476	33,47091	4,14573	0,12386

Tabela C.3: Resultado do Ajuste Linear da razão [O]/[Ca] variando com a espessura do solo.

Equation	$y = a + b \cdot x$					
Plot	Ratio [O/Ca]					
Weight	No Weighting					
Intercept	4,73713 ± 0,50679	3,44981 ± 0,4648	4,02871 ± 0,98647	3,46734 ± 0,37419	3,2845 ± 0,52706	3,94914 ± 0,55049
Slope	1,17141 ± 0,04877	1,06341 ± 0,04473	0,86787 ± 0,08788	0,80639 ± 0,03334	0,75671 ± 0,04352	0,62238 ± 0,04546
Residual Sum of Squares	0,28537	0,24004	0,30893	0,04445	1,52E-02	1,65E-02
Pearson's r	0,99741	0,99736	0,9899	0,9983	0,99835	0,99734
R-Square(COD)	0,99483	0,99472	0,9799	0,99659	0,9967	0,99469
Adj. R-Square	0,9931	0,99296	0,96986	0,99489	0,99341	0,98939

Tabela C.4: Resultado do Ajuste Linear da razão [Al]/[Ca] variando com a espessura do solo.

Equation	$y = a + b \cdot x$					
Plot	Ratio [Al/Ca]	Ratio [Al/Ca]	Ratio [Al/Ca]	Ratio [Al/Ca]	Ratio [Al/Ca]	Ratio [Al/Ca]
Weight	No Weighting					
Intercept	18,87081 ± 0,86603	13,51541 ± 0,36839	9,93795 ± 0,09526	8,06603 ± 0,19554	6,18363 ± 0,02064	5,675 ± 0,03912
Slope	-0,73006 ± 0,08333	-0,44868 ± 0,03545	-0,25709 ± 0,00849	-0,18362 ± 0,01742	-0,08791 ± 0,0017	-0,10091 ± 0,00323
Residual Sum of Squares	0,83334	0,15079	0,00288	0,01214	2,32E-05	8,35E-05
Pearson's r	-0,98101	-0,99077	-0,99891	-0,99112	-0,99981	-0,99949
R-Square(COD)	0,96238	0,98162	0,99783	0,98232	0,99962	0,99898
Adj. R-Square	0,94984	0,97549	0,99674	0,97348	0,99925	0,99795

Tabela C.5: Resultado do Ajuste Linear da razão [O]/[Al] variando com a espessura do solo.

Equation	$y = a + b \cdot x$					
Plot	Ratio [O/Al]	Ratio [O/Al]	Ratio [O/Al]	Ratio [O/Al]	Ratio [O/Al]	Ratio [O/Al]
Weight	No Weighting					
Intercept	-0,40378 ± 0,03265	-0,32742 ± 0,02348	-0,17466 ± 0,02265	-0,06968 ± 0,04436	0,15142 ± 0,0477	0,19857 ± 0,03831
Slope	0,19223 ± 0,00314	0,19653 ± 0,00226	0,19262 ± 0,00202	0,19454 ± 0,00395	0,18901 ± 0,00394	0,19758 ± 0,00316
Residual Sum of Squares	0,00118	6,13E-04	1,63E-04	6,25E-04	1,24E-04	8,01E-05
Pearson's r	0,9996	0,9998	0,99989	0,99959	0,99978	0,99987
R-Square(COD)	0,9992	0,9996	0,99978	0,99918	0,99957	0,99974
Adj. R-Square	0,99893	0,99947	0,99967	0,99876	0,99913	0,99949

Tabela C.6: Resultado do Ajuste Linear da razão [O]/[Si] variando com a espessura do solo.

Equation	$y = a + b \cdot x$					
Plot	Ratio [O/Si]	Ratio [O/Si]	Ratio [O/Si]	Ratio [O/Si]	Ratio [O/Si]	Ratio [O/Si]
Weight	No Weighting					
Intercept	5,85656 ± 0,14969	8,69528 ± 0,64441	10,15543 ± 0,67688	13,02805 ± 0,97381	13,36414 ± 1,14104	18,11378 ± 1,86138
Slope	-0,06039 ± 0,0144	-0,25152 ± 0,06201	-0,31499 ± 0,0603	-0,49185 ± 0,08675	-0,46016 ± 0,09422	-0,75504 ± 0,1537
Residual Sum of Squares	0,0249	4,61E-01	1,45E-01	3,01E-01	7,10E-02	1,89E-01
Pearson's r	-0,92424	-0,91966	-0,96525	-0,97027	-0,97968	-0,9799
R-Square(COD)	0,85422	0,84578	0,93171	0,94142	0,95976	0,96021
Adj. R-Square	0,80563	0,79438	0,89756	0,91213	0,91953	0,92042

Tabela C.7: Resultado do Ajuste Linear da razão [Al]/[Si] variando com a espessura do solo.

Equation	$y = a + b*x$					
Plot	Ratio [Al/Si]					
Weight	No Weighting					
Intercept	10,19291 ± 1,28011	12,23368 ± 1,84151	9,8649 ± 1,23344	11,08738 ± 1,46759	8,85084 ± 1,03735	10,66545 ± 1,40592
Slope	-0,61184 ± 0,12318	-0,77246 ± 0,1772	-0,55869 ± 0,10988	-0,64564 ± 0,13074	-0,45947 ± 0,08566	-0,58515 ± 0,11609
Residual Sum of Squares	1,82077	3,77E+00	4,83E-01	6,84E-01	5,87E-02	1,08E-01
Pearson's r	-0,94424	-0,92933	-0,96343	-0,96135	-0,98306	-0,98088
R-Square(COD)	0,89159	0,86365	0,92819	0,9242	0,96641	0,96213
Adj. R-Square	0,85545	0,81821	0,89228	0,8863	0,93283	0,92426

Tabela C.8: Resultado do Ajuste Linear da razão [Ca]/[Si] variando com a espessura do solo.

Equation	$y = a + b*x$					
Plot	Ratio [Ca/Si] (2 cm de cimento)	Ratio [Ca/Si] (3 cm de cimento)	Ratio [Ca/Si] (4 cm de cimento)	Ratio [Ca/Si] (5 cm de cimento)	Ratio [Ca/Si] (6 cm de cimento)	Ratio [Ca/Si] (7 cm de cimento)
Weight	No Weighting					
Intercept	0,63076 ± 0,05345	1,0596 ± 0,13761	1,16223 ± 0,14723	1,58399 ± 0,18199	1,58579 ± 0,18605	2,15658 ± 0,28631
Slope	-0,02943 ± 0,00514	-0,05845 ± 0,01324	-0,05906 ± 0,01312	-0,0853 ± 0,01621	-0,07822 ± 0,01536	-0,11226 ± 0,02364
Residual Sum of Squares	0,00317	2,10E-02	6,88E-03	1,05E-02	1,89E-03	4,47E-03
Pearson's r	-0,95712	-0,9309	-0,95405	-0,96572	-0,98125	-0,97854
R-Square(COD)	0,91608	0,86657	0,91022	0,93261	0,96286	0,95753
Adj. R-Square	0,8881	0,82209	0,86533	0,89891	0,92572	0,91506

Apêndice D

Balanço de Partículas nas Simulações

Apresentamos, nesse apêndice, o balanço de nêutrons e fótons em uma das simulações realizadas no presente trabalho. A Tabela D.1 apresenta esse balanço para os nêutrons e a Tabela D.2 apresenta esse balanço para os fótons.

A partir desses dados – fornecidos nas tabelas supra mencionadas –, podemos ter um entendimento melhor da física que está tendo lugar por de trás das simulações, assim como a avaliação e a confirmação dos resultados obtidos. Nessas tabelas, por exemplo, são fornecidas as origens – como se deu a criação – e o fim – como as trajetórias das partículas criadas se configurou ao final da simulação – das partículas. Da mesma forma, são informados os quantitativos de cada uma das reações ocorridas na simulação, possibilitando a confirmação entre os fenômenos esperados e aqueles que realmente tiveram lugar, sendo, portanto, de crucial importância para o trabalho.

Tabela D.1: Balanço e saldo dos nêutrons com as principais reações e interações ocorridas ao longo de suas trajetórias nas simulações (exemplo para a configuração com a fonte circundada por 1 cm de ar, 1 cm de aço, 4 cm de cimento e 10 cm de solo).

neutron creation	tracks	weight (per source particle)	energy	neutron loss	tracks	weight (per source particle)	energy
source	1000000	1.0000E+00	1.4000E+01	escape	1040330	8.8068E-01	7.3295E+00
nucl. interaction	0	0.	0.	energy cutoff	0	0.	0.
particle decay	0	0.	0.	time cutoff	0	0.	0.
weight window	0	0.	0.	weight window	0	0.	0.
cell importance	0	0.	0.	cell importance	0	0.	0.
weight cutoff	0	4.9058E-04	2.4057E-04	weight cutoff	2410	5.1281E-04	3.0617E-04
energy importance	0	0.	0.	energy importance	0	0.	0.
dxtran	0	0.	0.	dxtran	0	0.	0.
forced collisions	0	0.	0.	forced collisions	0	0.	0.
exp. transform	0	0.	0.	exp. transform	0	0.	0.
upscattering	0	0.	3.8263E-09	downscattering	0	0.	4.2832E+00
photonuclear	0	0.	0.	capture	0	1.5809E-01	1.9390E+00
(n,xn)	85479	7.7571E-02	9.3265E-02	loss to (n,xn)	42739	3.8785E-02	5.4160E-01
prompt fission	0	0.	0.	loss to fission	0	0.	0.
delayed fission	0	0.	0.	nucl. interaction	0	0.	0.
tabular boundary	0	0.	0.	particle decay	0	0.	0.
tabular sampling	0	0.	0.	tabular boundary	0	0.	0.
total	1085479	1.0781E+00	1.4094E+01	total	1085479	1.0781E+00	1.4094E+01
number of neutrons banked			42740	average time of (shakes)			cutoffs
neutron tracks per source particle			1.0855E+00	escape	2.1271E+02		tco 1.0000E+34
neutron collisions per source particle			4.2299E+00	capture	2.8058E+02		eco 0.0000E+00
total neutron collisions			4229924	capture or escape	2.2304E+02		wc1 -5.0000E-01
net multiplication		1.0388E+00	0.0002	any termination	2.2092E+02		wc2 -2.5000E-01

Tabela D.2: Balanço e saldo dos fótons com as principais reações e interações ocorridas ao longo de suas trajetórias nas simulações (exemplo para a configuração geométrica com a fonte circundada por 1 cm de ar, 1 cm de aço, 4 cm de cimento e 10 cm de solo).

photon creation	tracks	weight (per source particle)	energy	photon loss	tracks	weight (per source particle)	energy
source	0	0.	0.	escape	622262	6.5635E-01	1.4320E+00
nucl. interaction	0	0.	0.	energy cutoff	0	0.	4.6350E-05
particle decay	0	0.	0.	time cutoff	0	0.	0.
weight window	0	0.	0.	weight window	0	0.	0.
cell importance	0	0.	0.	cell importance	0	0.	0.
weight cutoff	0	0.	0.	weight cutoff	0	0.	0.
energy importance	0	0.	0.	energy importance	0	0.	0.
dxtran	0	0.	0.	dxtran	0	0.	0.
forced collisions	0	0.	0.	forced collisions	0	0.	0.
exp. transform	0	0.	0.	exp. transform	0	0.	0.
from neutrons	757011	8.0394E-01	2.4713E+00	compton scatter	0	0.	8.8267E-01
bremsstrahlung	218533	2.3249E-01	2.5216E-02	capture	454041	4.8832E-01	2.7255E-02
p-annihilation	64648	6.7960E-02	3.4728E-02	pair production	32324	3.3980E-02	1.8988E-01
photonuclear	0	0.	0.	photonuclear abs	0	0.	0.
electron x-rays	0	0.	0.				
1st fluorescence	67712	7.3448E-02	6.2031E-04				
2nd fluorescence (gamma,xgamma)	723	8.0663E-04	6.7115E-06				
tabular sampling	0	0.	0.				
total	1108627	1.1787E+00	2.5319E+00	total	1108627	1.1787E+00	2.5319E+00
number of photons banked			1008591	average time of (shakes)			cutoffs
photon tracks per source particle			1.1086E+00	escape	1.1085E+02		tco 1.0000E+34
photon collisions per source particle			2.4415E+00	capture	9.6802E+01		eco 1.0000E-03
total photon collisions			2441513	capture or escape	1.0486E+02		wc1 -5.0000E-01
				any termination	1.0184E+02		wc2 -2.5000E-01

Apêndice E

Código MCNP Usado nas Simulações

O código utilizado para realizar as simulações no MCNP foi escrito para uma configuração inicial mais simples e, conforme o trabalho foi progredindo, o código foi sendo adaptado de acordo com as necessidades e requisitos da nova etapa do trabalho.

Apresentamos, nas Figuras E.1 e E.2, um exemplo do código utilizado. O presente código foi usado para realizar a simulação para a configuração de uma esfera de ar de 1 cm, circundada por uma camada esférica de aço de 1 cm, circundada, por sua vez, por uma camada esférica de cimento de 4 cm, envolta, por fim, por uma camada de solo de 4 cm. A fonte de nêutrons, localizada no centro da esfera de ar, emite nêutrons com 14 MeV de energia e, nessa versão do código, a detecção das energias ocorre na superfície externa da camada de solo, com o preenchimento de histogramas de 1000 bins no intervalo de energias de 0 a 14 MeV. O ar e o aço descritos nesse código correspondem às definições de ar e de aço feitas no Compêndio de Dados de Composição de Materiais para Modelos de Transporte de Radiação publicado pelo Departamento de Homeland Security dos EUA [30]. O cimento definido nesse código corresponde ao cimento calculado no Apêndice B dessa dissertação e resumido na Tabela 4.6 do Capítulo 4. O número de histórias é de 1000000 (um milhão de histórias).

<u>Bloco de Células</u>	<u>Bloco de Superfícies</u>
1 11 -0.00125 -21 IMP:N=1 IMP:P=1	21 SO 1
2 12 -7.874 21 -22 IMP:N=1 IMP:P=1	22 SO 2
3 14 -1.52 22 -23 IMP:N=1 IMP:P=1	23 SO 6
4 13 -2.25 23 -24 IMP:N=1 IMP:P=1	24 SO 10
5 0 24 IMP:N=0 IMP:P=0 \$ Fora do universo	

Figura E.1: Código dos blocos de células e de superfícies utilizados na simulação na configuração de uma esfera de ar de 1 cm de raio, circundada por uma camada esférica de aço de 1 cm de espessura, circundada, por sua vez, por uma camada esférica de cimento de 4 cm de espessura, envolta, por fim, por uma camada de solo de 4 cm de espessura.

```

Bloco de Dados

MODE P N $Photons and
neutrons
SDEF POS 0 0 0 ERG=14 PAR=1
C
C Definindo materiais
C
C AR
M11 7014 -0.755 $ Nitrogenio
      8016 -0.232 $ Oxigenio
      18040 -0.013 $ Argonio
C AÇO
M12 6000 -0.002
      14000 -0.004
      15031 -0.0003
      16000 -0.0002
      23000 -0.003
      24000 -0.115
      25055 -0.006
      26000 -0.8495
      28000 -0.005
      42000 -0.01
      74000 -0.005

```

```

C CIMENTO
M13 20000 -0.291265
      8016 -0.521019
      14000 -0.057453
      13027 -0.020355
      26000 -0.033517
      12000 -0.025127
      16000 -0.011615
      11023 -0.002576
      19000 -0.002882
      1001 -0.034191
C SOLO
M14 8016 -0.513713
      11023 -0.006140
      12000 -0.013303
      13027 -0.068563
      14000 -0.271183
      19000 -0.014327
      20000 -0.051167
      22000 -0.004605
      25055 -0.000716
      26000 -0.056283
C
C Tally definitions
F11:P 24
E11 0.1 1000I 14
F21:N 24
E21 0.1 1000I 14
C Numero de historias
NPS 1000000

```

Figura E.2: Código do bloco de dados utilizado na simulação na configuração de uma esfera de ar de 1 cm, circundada por uma camada esférica de aço de 1 cm, circundada, por sua vez, por uma camada esférica de cimento de 4 cm, envolta, por fim, por uma camada de solo de 4 cm.

