

BR9023015
JNIS-BR--1947

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**DESENVOLVIMENTO DE UM SISTEMA DE COINCIDÊNCIA PARA A
MEDIDA ABSOLUTA DA ATIVIDADE DE RADIONUCLÍDEOS
EMPREGANDO DETECTORES DE BARREIRA DE SUPERFÍCIE**

MARINA FALLONE KOSKINAS

Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau
de Doutor em Tecnologia Nuclear.

Orientador: Dr. Laércio Antonio Vinhas



SÃO PAULO
1988

AGRADECIMENTOS:

ao Dr. Laércio Antonio Vinhas, que foi meu orientador nesta tese, a paciência e estímulo constantes;

ao MSc. Mauro da Silva Dias, pelas valiosas sugestões e discussões, além do apoio e incentivo durante toda a realização deste trabalho;

à Srt^ª Eliane Pocobi, pela preparação das amostras e confecção dos desenhos;

aos demais integrantes do Laboratório de Metrologia Nuclear, Carlos A.M. da Silva e Rodolfo R. Machado, pelo apoio e colaboração;

à Dr^ª Linda V.E. Caldas, chefe da Divisão de Dosimetria e Calibração, pelo incentivo constante;

ao pessoal da Oficina Mecânica, pela confecção do arranjo experimental;

aos colegas da Divisão de Física Nuclear e do Departamento de Proteção Radiológica, pela amizade e estímulo;

à Srt^ª Virgínia Gonçalves França (Gina), pelo trabalho de dactilografia;

e, finalmente, ao Dr. Cláudio Rodrigues, Superintendente do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, pela oportunidade de realização deste trabalho.

**DESENVOLVIMENTO DE UM SISTEMA DE COINCIDÊNCIA PARA A MEDIDA ABSOLUTA DA
ATIVIDADE DE RADIONUCLÍDEOS EMPREGANDO DETECTORES DE BARREIRA DE
SUPERFÍCIE**

MARINA FALLONE KOSKINAS

R E S U M O

O presente trabalho descreve um sistema de padronização de radionuclídeos desenvolvidos para emissores alfa-gama e elétron-X. O sistema consiste de um ou dois detectores de barreira de superfície para detecção de partículas alfa ou elétrons, acoplados a dois cristais de NaI(Tl) de janela fina adequados para detecção de raio-X ou gama de baixa energia. O desempenho do sistema foi verificado através da padronização de soluções de ^{241}Am , ^{137}Cs e ^{109}Cd .

A atividade foi obtida usando o método de extrapolação aplicado à técnica de coincidência $4\pi\alpha\text{-}\gamma$ e $2\pi e\text{-}X$.

A eficiência de detecção para o detector de barreira de superfície foi variada colocando-se absorvedores sobre as fontes radioativas ou alterando-se a distância fonte-detector. Os resultados foram comparados àqueles obtidos utilizando sistemas de medida absoluta convencionais, baseados em contadores proporcionais em geometria 4π do tipo gás-fluente ou pressurizados. Estes resultados foram, também, comparados aos obtidos em comparações internacionais patrocinadas pelo Bureau International de Poids et Mesure.

As atividades medidas concordaram com os valores esperados dentro das incertezas experimentais que foram: 0.2% para o ^{241}Am ; 0.7 % para o ^{137}Cs e 0.6 % para o ^{109}Cd .

A razão entre as probabilidades (captura + conversão interna) de elétrons K pela probabilidade de conversão interna de elétrons K foi determinada. O resultado é: $(2,8883 \pm 0,016)$.

DEVELOPMENT OF A COINCIDENCE SYSTEM FOR RADIONUCLIDE STANDARDIZATION
USING SURFACE BARRIER DETECTORS

MARINA FALLORE KOSKINAS

A B S T R A C T

A system for the standardization of alpha-gamma or electron-X radionuclide emitters has been developed in the present work. The system consists of one or two surface barrier detectors for alpha or electron detection which are coupled to thin-window NaI(Tl) crystals suitable for low energy X or gamma ray detection. The performance of the system has been verified by means of the standardization of ^{241}Am , ^{137}Cs and ^{109}Cd solutions. The activity has been obtained using the extrapolation method applied to the $4\pi\alpha\text{-}\gamma$ and $2\pi e\text{-}X$ coincidence technique. The surface barrier detection efficiency was varied by placing absorbers over the radioactive sources or by changing the source to detector distance. The results were compared to those obtained using conventional absolute systems based on gas-flow and pressurized 4π proportional counters, or using radioactive solutions standardized in international comparisons sponsored by the Bureau International des Poids et Mesures.

The expect and measured activities agree within the experimental uncertainties which were: 0.2 % for ^{241}Am , 0.7 % for ^{137}Cs and 0.6 % for ^{109}Cd .

The ratio between the probabilities of (electron capture + internal conversion) and internal conversion for the K-shell of ^{109}Cd has been determined. The result is: 2.8883 ± 0.016 .

Í N D I C E

INTRODUÇÃO	4
I. MÉTODOS DE MEDIDA ABSOLUTA DE ATIVIDADE	3
I.1. Método de Coincidência	3
I.1.1. Formalismo	3
I.1.1.1. Princípio do Método	3
I.1.1.1.1. Método de Extrapolação Linear da Eficiência	7
I.1.1.1.2. Cálculo do Termo de Eficiência pelo Método de Monte Carlo	10
I.1.1.1.3. Correções Aplicadas	12
I.1.1.1.3.1. Correção de Tempo Morto	12
I.1.1.1.3.2. Correção de Tempo de Resolução	13
I.1.1.1.3.3. Correção de Decaimento	15
I.1.1.1.4. Incertezas nas Medidas da Atividade ..	16
I.1.1.2. Método do Traçador	17
I.1.1.3. Método do Pico Soma	20
I.1.2. Sistemas de Detecção pelo Método de Coincidência ..	21
I.1.2.1. Sistema de Coincidência $4\pi(PC)-NaI(Tl)$	21
I.1.2.2. Sistema de Coincidência $4\pi(LS)-NaI(Tl)$	22
I.1.2.3. Sistema de Coincidência $4\pi(PS)-NaI(Tl)$	23
I.1.2.4. Sistema de Coincidência $NaI(Tl)-NaI(Tl)$	23
I.1.2.5. Sistema de Coincidência $4\pi(BS)-NaI(Tl)$	23
I.2. Método de Contagem Direta	24
I.2.1. Sistema de Geometria Definida	24
I.2.2. Espectrômetros	25
I.2.2.1. Sistema $4\pi PPC$ e $4\pi PC$	25
I.2.2.2. Cintilador Líquido	26
I.2.2.3. $NaI(Tl)$ Tipo Poço	26
II. ARRANJO EXPERIMENTAL DO SISTEMA $4\pi(BS)-NaI(Tl)$	27
II.1. Considerações Gerais	27
II.2. Descrição do Arranjo Experimental	29
II.3. Detetores Utilizados	31
II.3.1. Detetores Alfa - Detetores de Barreira de Superfície	31
II.3.2. Detetores Gama - Detetores de Cintilação	34
II.4. Sistema Eletrônico Associado	34
II.4.1. Via Alfa	36
II.4.2. Via Gama	36
II.4.3. Via de Coincidência	36
II.4.4. Medida do Tempo Morto e do Tempo de Resolução	37
II.5. Preparação de Fontes	39

III. PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS NOS SISTEMAS 4π(BS)-NaI(Tl) E 2π(BS)-NaI(Tl)	42
III.1. Padronização do ^{241}Am	42
III.1.1. Medida Absoluta da Atividade pelo Método 4π(PC)_α Total	45
III.1.1.1. Sistema de Detecção utilizado no Método 4π(PC)_α Total ..	46
III.1.1.2. Fatores de Correção envolvidos na Padronização do ^{241}Am	46
a) Fator de Correção para Extrapolação do Espectro para Altura de Pulso Zero	49
b) Fator de Correção para Absorção no Suporte da Fonte	51
III.1.2. Método de Coincidência 4π(BS)-NaI(Tl)	52
III.1.2.1. Aplicação da Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência na Padronização do ^{241}Am	57
a) Método A	57
b) Método B	61
III.1.2.2. Método de Coincidência 2π(BS)-NaI(Tl)	66
III.1.3. Resultados da Padronização do ^{241}Am	68
III.2. Padronização de Nuclídeos Metaestáveis pelo Sistema de Coincidência 2π(BS)-NaI(Tl)	70
III.2.1. Padronização do ^{137}Cs	71
III.2.1.1. Padronização do ^{137}Cs pelo Sistema 2π(BS)-NaI(Tl) ..	74
III.2.1.1.1. Fatores de Correção Envolvidos na Medida do ^{137}Cs ..	78
a) Fator de Correção para Radiação Beta	78
b) Fator de Correção para Radiação Gama	84
c) Fator de Correção para Razão das Eficiências	89
III.2.1.2. Resultados da Padronização do ^{137}Cs	91
III.2.2. Padronização do ^{109}Cd	97
III.2.2.1. Padronização do ^{109}Cd pelo Sistema 4π(PPC)_e	99
III.2.2.1.1. Fatores de Correção Envolvidos na Padronização do ^{109}Cd pelo Sistema 4πPPC	103
a) Fator de Correção para Extrapolação do Espectro para Altura de Pulso Zero	103
b) Fator de Correção para Eficiência do Detetor para Radiação Gama	105
III.2.2.2. Padronização do ^{109}Cd pelo Sistema 2π(BS)-NaI(Tl) ..	106
III.2.2.2.1. Fatores de Correção Envolvidos na Medida do ^{109}Cd ..	108
III.2.2.3. Resultados da padronização do ^{109}Cd	112
III.2.2.3.1. Resultados de Atividade	112
III.2.2.3.2. Determinação da Razão $(P_{\alpha} + \alpha_{\alpha}/1 + \alpha_{\alpha}) / (\alpha_{\alpha}/1 + \alpha_{\alpha})$ para o ^{109}Cd	119

IV. ANÁLISE DOS RESULTADOS	121
IV.1. Padronização do ^{241}Am	121
IV.2. Padronização do ^{137}Cs	122
IV.3. Padronização do ^{109}Cd	124
V. CONCLUSÕES	127
APÊNDICE	129
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	134

INTRODUÇÃO:

A metrologia de radionuclídeos é o ramo da Física Nuclear, que se ocupa da medida absoluta da atividade de fontes radioativas.

Entende-se como medida absoluta de atividade não a medida "sem erro", como sugere o termo "absoluto", mas sim a medida da atividade, independente de resultados de qualquer outro sistema de medidas.

A metrologia de radionuclídeos apresentou grande progresso nas décadas de 60 e 70, quando do desenvolvimento por Campion, Taylor, Baerg e outros^{02,03,18,80}, de métodos de coincidência, que possibilitam alcançar resultados com incertezas da ordem de décimos de por cento.

Muitos trabalhos são encontrados na literatura que datam desse período e que versam sobre aperfeiçoamentos de técnicas e métodos de padronização de radionuclídeos^{36, 37, 38, 41, 91}.

Com o desenvolvimento e aprimoramento de máquinas para produção de radioisótopos, o uso de radionuclídeos tem aumentado continuamente em vários campos de pesquisa básica e aplicada, assim como na indústria, na medicina, em controle ambiental etc.. Juntamente com o aumento do uso de radionuclídeos cresce a necessidade de padrões, sendo que cada nuclídeo requer o seu próprio padrão e cada padronização sua técnica especial^{53,62}.

Atualmente, tem-se dado maior ênfase à aplicação de técnicas e métodos de medida para padronização de certos radioisótopos, cuja sistemática de medida apresente problemas relacionados aos esquemas de desintegração e na determinação de parâmetros nucleares mais consistentes^{23,34,35,60,77}.

A finalidade deste trabalho é desenvolver um sistema de medida absoluta de atividade, que emprega detectores de barreira de superfície e cintiladores, pelo método da coincidência, para a padronização de nuclídeos emissores alfa-gama e elétron-X.

O desenvolvimento deste sistema visa, também, dotar o Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN de um sistema auxiliar independente a ser usado para a verificação da consistência de

resultados obtidos por outros sistemas de medida e para a determinação de parâmetros nucleares.

Para a avaliação do desempenho do sistema proposto, foram selecionados três radionuclídeos de grande interesse nas várias áreas que utilizam radioisótopos como ferramenta de suas investigações^{23,40}.

Os radioisótopos escolhidos foram: ^{241}Am , ^{109}Cd e ^{137}Cs .

O sistema ^{241}Am é muito usado como padrão para calibração de espectrômetros alfa e também como padrão gama, pois juntamente com o ^{109}Cd emite gamas na região de energia entre 10 e 100 keV, onde somente uns poucos radionuclídeos são disponíveis para serem usados na calibração em eficiência de detectores de fótons. Nesta região de energia, a maioria das curvas de eficiência variam rapidamente ou apresentam descontinuidades sendo por isso importante o uso de todos os padrões disponíveis²⁷.

O ^{109}Cd é usado também como padrão para a análise de fluorescência de raio-X.

O ^{137}Cs também é usado na calibração em eficiência de detectores de fótons, em cálculos de queima de combustíveis, pois é produzido na fissão do urânio e em medidas ambientais para verificação de "fall out".

O capítulo I, do presente trabalho, apresenta um estudo geral do método de coincidência.

O arranjo experimental do sistema proposto é descrito juntamente com as técnicas de preparação de fontes, no capítulo II.

A padronização dos nuclídeos selecionados no sistema proposto e em sistemas convencionais é apresentada no capítulo III, onde são apresentados também os resultados obtidos.

A análise e discussão dos resultados obtidos, assim como a avaliação do desempenho do sistema proposto, estão nos capítulos IV e V.

I. MÉTODOS PARA MEDIDA ABSOLUTA DE ATIVIDADE

Os métodos utilizados na medida absoluta de atividade podem ser divididos em⁷⁴:

- método direto, que necessita do conhecimento prévio da eficiência de detecção e da geometria do arranjo experimental;
- método de coincidência que não depende do conhecimento prévio da eficiência de detecção.

Este último, em geral é o mais exato e, portanto, o mais utilizado na medida absoluta da atividade. No entanto, devemos ressaltar que a escolha do método de medida depende principalmente do esquema de desintegração do radionuclídeo a ser padronizado.

I.1. Método de Coincidência

Um dos métodos mais utilizados na medida absoluta da atividade de radionuclídeos, é o método de coincidência^{02,03,18,63,80}. Este método é aplicado, principalmente, a núclídeos que se desintegram pela emissão de duas radiações, α - γ , β - γ , EC- γ , e-X, simultâneas, ou que podem ser consideradas simultâneas, se o período de transição ao nível fundamental, for desprezível comparado com os tempos de resolução eletrônicos.

I.1.1. Formalismo

I.1.1.1. Princípio do Método

A principal característica do método de coincidência^{03,18,63}, é que, em primeira aproximação, o resultado obtido (taxa de desintegração), não depende da eficiência de detecção e tão pouco dos

parâmetros do esquema de desintegração.

O método de coincidência se baseia no uso de dois detectores, um para cada tipo de radiação, e na determinação dos eventos coincidentes, isto é, detectados simultaneamente nos dois detectores.

As considerações a seguir aplicam-se também a radionuclídeos emissores β - γ , EC- γ e e-X, bastando substituir o símbolo α por β , EC ou e.

As equações utilizadas no método de coincidência, são obtidas considerando, inicialmente, um emissor genérico alfa-gama, com esquema de desintegração simples.

Para uma fonte puntiforme, com taxa de desintegração N_0 , teremos em cada via de detecção:

$$N_{\alpha} = N_0 \epsilon_{\alpha} \quad (I.1)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \epsilon_{\gamma} \quad (I.2)$$

$$N_c = N_0 \epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma} \quad (I.3)$$

Sendo N_{α} , N_{γ} e N_c as taxas de contagem, corrigidas para contagens de fundo e tempo morto e ϵ_{α} e ϵ_{γ} as eficiências do detector alfa e do detector gama, respectivamente.

Multiplicando as equações (I.1) e (I.2) e dividindo pela equação (I.3), teremos

$$\frac{N_{\alpha} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \quad (I.4)$$

Pode-se assim obter a taxa de desintegração em função apenas das contagens observadas.

Para o caso de uma fonte extensa, as equações utilizadas no método de coincidência serão:

$$N_{\alpha} = N_0 \overline{\epsilon_{\alpha}} \quad (I.5)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \overline{\epsilon_{\gamma}} \quad (I.6)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \overline{\epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma}} \quad (I.7)$$

Destas equações, podemos obter

$$N_0 = \frac{N_{\alpha} N_{\gamma}}{N_c} \cdot \frac{\overline{\epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma}}}{\overline{\epsilon_{\alpha}} \overline{\epsilon_{\gamma}}} \quad (I.8)$$

sendo $\overline{\epsilon_{\alpha}}$ e $\overline{\epsilon_{\gamma}}$ eficiências médias num volume elementar integradas sobre todo o volume da fonte e $\overline{\epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma}}$ o produto médio das eficiências elementares.

Método de coincidência é aplicável a fontes não puntiformes sem correção geométrica, se a relação

$$\frac{\overline{\epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma}}}{\overline{\epsilon_{\alpha}} \overline{\epsilon_{\gamma}}} = 1 \quad (I.9)$$

Para que esta condição seja satisfeita, é suficiente que, pelo menos um dos detectores, apresente a mesma eficiência elementar sobre toda a fonte, de modo que o produto das eficiências elementares $\overline{\epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma}}$ é igual ao produto das eficiências totais $\overline{\epsilon_{\alpha}} \overline{\epsilon_{\gamma}}$ ⁰².

A condição indicada na expressão (I.9) deve ser verificada para cada sistema de medida em particular. Para o caso do sistema do presente trabalho esta condição foi verificada por meio de cálculo por Monte Carlo descrito no item I.1.1.1.2.

Na prática, a expressão (I.4) não pode ser empregada diretamente, apenas utilizando as contagens reais, pois os detectores

apresentam certa sensibilidade para a outra radiação que não aquela de interesse. Outras correções devem ser introduzidas no cálculo para levar em conta as características do esquema de desintegração do radionuclídeo em estudo ou a efeitos experimentais dos detectores e eletrônica associadas, tais como: influência do tempo morto e tempo de resolução do sistema^{36,37,38}.

As expressões gerais das taxas de contagem, de cada via de detecção, no caso de um esquema de desintegração complexo, com n ramos alfa e m ramos gama, serão dadas por⁶³

$$N_{\alpha} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r [\epsilon_{\alpha r} + (1 - \epsilon_{\alpha r}) \left(\frac{\epsilon_{\alpha c} + \epsilon_{\alpha \gamma}}{1 + \alpha} \right)_r] \quad (I.10)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \sum_{r=1}^m a_r \epsilon'_{\gamma r} \quad (I.11)$$

$$\text{com } \epsilon'_{\gamma r} = \frac{\epsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r}$$

$$N_c = N_0 \sum_{r=1}^n a_r [\epsilon_{\alpha r} \epsilon'_{\gamma r} + (1 - \epsilon_{\alpha r}) \epsilon_{c r}] \quad (I.12)$$

onde: a_r - abundância do r -ésimo grupo alfa;
 $\epsilon_{\alpha r}$ - eficiência para o r -ésimo grupo alfa;
 $\epsilon'_{\gamma r}$ - eficiência para o gama correspondente ao r -ésimo grupo alfa;

- α_r - coeficiente de conversão interna total para o r-ésimo grupo alfa;
 ϵ_{cr} - eficiência para contagens de coincidência gama-gama;
 ϵ_{ec} - eficiência do detector alfa para elétrons de conversão;
 $\epsilon_{\alpha\gamma}$ - eficiência do detector alfa para radiação gama.

Reunindo as equações (I.10), (I.11) e (I.12), teremos que a taxa de desintegração N_0 é dada por

$$N_0 = \frac{N_\alpha N_\gamma}{N_c} \cdot \frac{\sum_{r=1}^n a_r [\epsilon_{\alpha r} \epsilon'_{\gamma r} + (1 - \epsilon_{\alpha r}) \epsilon_{cr}]}{\sum_{r=1}^n a_r [\epsilon_{\alpha r} + (1 - \epsilon_{\alpha r}) \left(\frac{\epsilon_{ec} + \epsilon_{\alpha\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r] \left[\sum_{r=1}^n a_r \epsilon'_{\gamma 0} \right]} \quad (I.13)$$

A equação (I.13) mostra que, para determinação da taxa de desintegração N_0 é necessário o conhecimento dos parâmetros do esquema de desintegração e das probabilidades de detecção.

Para contornar este problema, *Campion*¹⁸ e *Baerg*⁰² desenvolveram uma técnica de medida que permite a determinação da atividade absoluta sem o conhecimento prévio dos parâmetros do esquema de desintegração e eficiências de detecção. Esta técnica é conhecida como "Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência".

I.1.1.1.1. Método de Extrapolação Linear da Eficiência:

A técnica de extrapolação linear da eficiência já foi apresentada, discutida e comentada exaustivamente por vários autores^{02,03,80,41}. Nesta seção vamos descrevê-la apenas em linhas gerais.

Segundo esta técnica, a determinação de N_0 só será possível se pudermos estabelecer uma relação entre N_0 e N_c/N_γ tal que

$$N_0 \rightarrow N_0 \text{ quando } \frac{N_c}{N_\gamma} \rightarrow 1$$

Esta condição ocorre quando a eficiência dos vários ramos alfa $\epsilon_{\alpha R}$ puder ser representada como uma função de uma eficiência única $\epsilon_{\alpha S}$

$$\epsilon_{\alpha R} = f_R(\epsilon_{\alpha S})$$

e que esta relação se conserve para o caso em que a eficiência é um e seja tal que

$$f_R \rightarrow 1 \text{ quando } \epsilon_{\alpha S} \rightarrow 1$$

Isto implica que os valores $\epsilon_{\alpha S}$, $\epsilon_{\alpha \gamma}$, e ϵ_γ sejam constantes ou nulos.

Das equações (I.11) e (I.12) obtém-se que

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = \frac{\sum a_R \epsilon'_{\gamma R} [\epsilon_{\alpha R} + (1 - \epsilon_{\alpha R}) \epsilon_{\gamma R} / \epsilon'_{\gamma R}]}{\sum a_R \epsilon'_{\gamma R}} \quad (\text{I.14})$$

$$\text{onde } \frac{a_R \epsilon'_{\gamma R}}{\sum a_R \epsilon'_{\gamma R}} = k_R$$

sendo k_R constante para uma dada eficiência alfa e $\sum k_R = 1$.

Assim

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = 1 - \Sigma k'_r [1 - f_r(\epsilon_{\alpha S})] \quad (I.15)$$

com $k_r = k_T(1 - \epsilon_{Cr}/\epsilon_{\alpha r})$

e

$$\frac{N_c}{N_\gamma} \rightarrow 1 \text{ quando } \epsilon_{\gamma S} \rightarrow 1$$

A taxa de contagem alfa é função do termo N_c/N_γ

$$N_\gamma = N_0 F(N_c/N_\gamma)$$

onde a função $F \rightarrow 1$ quando $N_c/N_\gamma \rightarrow 1$.

Baerg⁰² sugere que esta fórmula que é a fórmula geral de coincidências^{03,18,63,80} seja escrita de um modo mais conveniente como

$$\frac{N_\alpha N_\gamma}{N_c} = N_0 G\left(\frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma}\right) \quad (I.16)$$

onde a função $G \rightarrow 1$ quando $[(1 - N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)] \rightarrow 0$.

Estas funções (G ou F) serão determinadas experimentalmente pela variação do termo N_c/N_γ , chamado parâmetro de eficiência.

A variação do parâmetro de eficiência N_c/N_γ , pode ser obtida de vários modos: pelo uso de absorvedores externos, por auto-absorção na fonte, ou qualquer outro método que possibilite a variação da eficiência alfa.

Determina-se, portanto, a taxa de desintegração N_0 a partir do gráfico de $N_e N_p / N_0$ versus $(1 - N_e / N_p) / (N_e / N_p)$, onde o valor de N_0 é obtido pela extrapolação linear dos dados experimentais para a condição de $(1 - N_e / N_p) / (N_e / N_p) = 0$.

O valor extrapolado é obtido por ajuste polinomial dos dados experimentais.

I.1.1.1.2. Cálculo do Termo de Eficiência pelo Método de Monte Carlo

Para comprovação das considerações teóricas apresentadas no capítulo I, item I.1.1.1., relacionadas ao termo de eficiência, foi elaborado um programa de cálculo da eficiência geométrica de cada detector, pelo método de Monte Carlo²⁰.

O programa determina as eficiências geométricas de cada detector para várias distâncias fonte-detector alfa, mantendo o detector gama fixo. Calcula, também, a eficiência de coincidência, ou seja, o número de eventos detectados simultaneamente nos dois detectores. O termo de eficiência foi determinado pela razão do produto das eficiências de cada detector pela eficiência de coincidência calculada pelo programa.

A figura I.1 mostra o gráfico do termo de eficiência calculado pelo programa em função da distância fonte-detector.

Para obtenção dos valores calculados o número de histórias foi variado de 1.10^6 a 5.10^6 de modo a mantermos uma incerteza da ordem de 0,3%. A distância fonte-detector gama foi fixada em 4,0 cm, e o raio da fonte fixado em 4 mm, considerando-se este raio como um raio limite para as dimensões das fontes utilizadas.

Pode-se observar no gráfico que o termo de eficiência, realmente pode ser considerado igual a unidade como esperado pelas considerações teóricas.

As expressões utilizadas no cálculo de Monte Carlo serão discutidas no Apêndice.

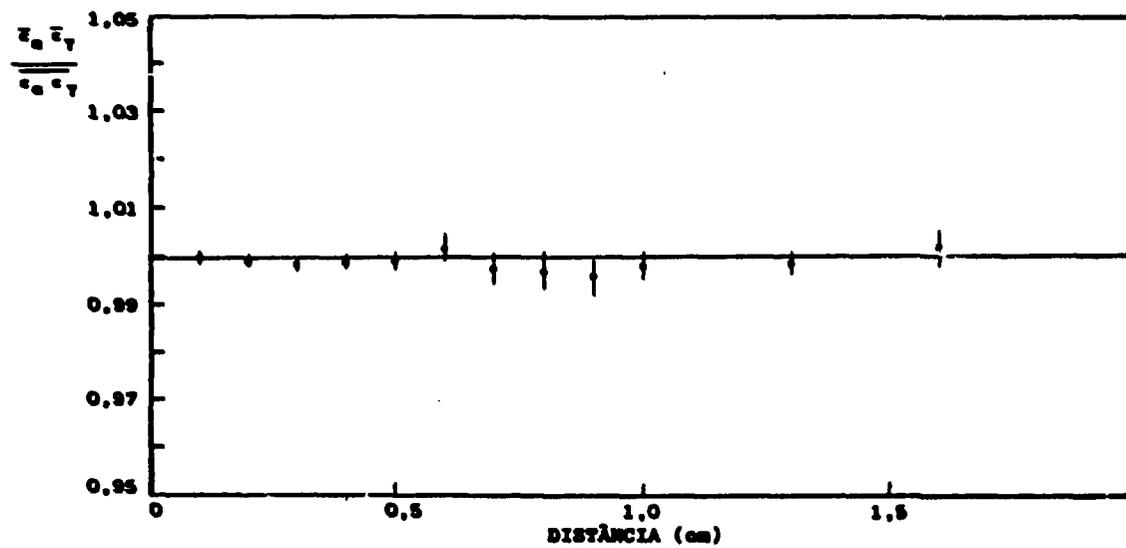


Figura I.1 Curva do termo de eficiência em função da distância calculado pelo método de Monte Carlo.

I.1.1.1.3. Correções Aplicadas:

As taxas de contagens observadas deverão ser corrigidas para tempo morto, tempo de resolução, coincidências espúrias, radiação de fundo, para serem usadas na determinação da taxa de desintegração, assim como deve ser determinada a função $G[(1-N_c/N_r)/(N_c/N_r)]$ para correção devida ao esquema de desintegração 16,33,64,65.

I.1.1.1.3.1. Correção de Tempo Morto:

O tempo morto é um tempo de parada imposto à eletrônica associada ao detector. Deve ser maior que o tempo de resolução do detector e da eletrônica associada, de maneira a termos um valor fixo e que corrija a perda de contagens reais. Seu valor é escolhido para que seja no mínimo duas vezes maior que o tempo de resolução.

Quando o tempo morto é fixado previamente, a correção aplicada às taxas de contagem observadas é dada por:

$$N = \frac{N_m}{1 - N_m r_M} \quad (I.17)$$

onde N - taxa de contagem verdadeira;

N_m - taxa de contagem medida;

r_M - tempo morto fixado eletronicamente.

As taxas contagem das vias alfa e gama são corrigidas para tempo morto pela expressão (I.17)

$$N'_\alpha = \frac{N''_\alpha}{1 - N''_\alpha r_\alpha} \quad (I.18)$$

•

$$N'_{\gamma} = \frac{N''_{\gamma}}{1 - N''_{\gamma} r_{\gamma}} - Bg_{\gamma} \quad (I.19)$$

sendo N''_{α} e N''_{γ} as taxas de contagem observadas;

N'_{α} e N'_{γ} as taxas de contagem corrigidas pelos tempos mortos

$$r_{\alpha} \text{ e } r_{\gamma}.$$

Para obtermos as taxas de contagens verdadeiras, deverá ser descontada a radiação de fundo de cada via.

$$N_{\alpha} = \frac{N''_{\alpha}}{1 - N''_{\alpha} r_{\alpha}} - Bg_{\alpha} \quad (I.20)$$

$$N_{\gamma} = \frac{N''_{\gamma}}{1 - N''_{\gamma} r_{\gamma}} - Bg_{\gamma} \quad (I.21)$$

I.1.1.1.3.2. Correção de Tempo de Resolução:

A taxa de coincidência é fornecida pela detecção das duas radiações, que são consideradas simultâneas, em relação ao tempo de resolução fixado eletronicamente. De modo que, são considerados coincidentes dois pulsos que chegam na via de coincidência dentro de um intervalo igual ao dobro do tempo de resolução fixado. No entanto, devido ao valor finito do tempo de resolução, do sistema eletrônico, podem ser detectados como coincidentes, pulsos não relacionados. Estes pulsos são chamados de coincidências espúrias ou acidentais.

As considerações teóricas envolvidas na correção para coincidências espúrias foram desenvolvidas por vários autores tais como: Bryant¹⁶, Gandy^{36,37,38}, Campion¹⁸. Entretanto, as soluções são sempre aproximações matemáticas de segunda ordem, restritas a tempo morto fixo

e igual para as duas vias de detecção, e a taxas de contagem baixas, da ordem de no máximo $2 \cdot 10^3$ contagens por segundo.

Para taxas de contagens altas ($2 \cdot 10^4 - 2 \cdot 10^5 \text{s}^{-1}$) as aproximações não são válidas e sérias diferenças são encontradas nos resultados⁷⁵.

Para contornar este problema, Cox e Isham²⁴ desenvolveram uma fórmula matemática que leva em conta todos os possíveis casos de coincidências acidentais. Esta fórmula é exata para os casos em que os tempos mortos são iguais. No caso de tempos mortos diferentes, esta fórmula é uma aproximação de quarta ordem.

Smith^{75,76} desenvolveu esta formulação de um modelo prático de modo que permite sua aplicação diretamente às taxas de contagem observadas.

Citaremos apenas as considerações usadas no desenvolvimento da fórmula de correção, já que nas referências^{24,75,76} são apresentadas todas as deduções em detalhes.

Das considerações feitas por Cox-Isham²⁴ temos que a taxa de coincidências corrigida para coincidência espúria é dada por

$$N_c = \frac{[N_c^0 (\rho_1 e^{\rho_1 \tau \alpha} - \rho_2 e^{\rho_2 \tau \gamma})]}{[\rho_1 e^{\rho_1 \tau \alpha} e^{(\rho_2 - \rho_1)(\tau \tau + \delta)} - \rho_2 e^{\rho_2 \tau \gamma} e^{(\rho_1 - \rho_2)(\tau \tau + \delta)}] + \frac{N_c^0 (e^{\rho_1 \tau \alpha} - e^{\rho_2 \tau \gamma})}{P_1 P_2}} \quad (I.22)$$

$$\text{com } N_c^0 = N_c' - 2\tau_r N_\alpha^0 N_\gamma^0$$

$$P_1 = 1 - \tau_\alpha N_\alpha'$$

$$P_2 = 1 - \tau_\gamma N_\gamma'$$

$$N_\alpha = \rho_1 = \frac{N_\alpha^0}{1 - N_\alpha^0 \tau_\alpha} - B E_\alpha$$

$$N_\gamma = \rho_2 = \frac{N_\gamma^0}{1 - N_\gamma^0 \tau_\gamma} - B E_\gamma$$

sendo $N_{\alpha}^{\circ}, N_{\gamma}^{\circ}, N_{c}^{\circ}$ taxas de contagens observadas nas vias alfa, gama e coincidência, respectivamente;

N_{α}, N_{γ} taxas de contagens corrigidas para radiação de fundo e tempo morto;

N'_{c} taxa de contagens corrigida para radiação de fundo;

$\tau_{\alpha}, \tau_{\gamma}$ tempo morto nos canais alfa e gama;

τ_{r} tempo de resolução;

δ "delay mismatch" positivo se o pulso gama chega antes.

Desse modo a taxa de desintegração N_0 , utilizando a fórmula Cox-Isham²⁴, é dada por

$$N_0 = \frac{N_{\alpha}^{\circ} N_{\gamma}^{\circ} [\rho_1 e^{\rho_1 \tau_{\alpha}} e^{(\rho_2 - \rho_1)(\tau_{r} - \delta)} - \rho_2 e^{\rho_2 \tau_{\gamma}} e^{(\rho_1 - \rho_2)(\tau_{r} + \delta)} + \frac{N_{c}^{\circ}}{P_1 P_2} (e^{\rho_1 \tau_{\alpha}} - e^{\rho_2 \tau_{\gamma}})]}{[N_{c}^{\circ} (\rho_1 e^{\rho_1 \tau_{\alpha}} - \rho_2 e^{\rho_2 \tau_{\gamma}}) (1 + K_e)]} \quad (I.23)$$

onde $(1 + K_e)$ é o fator de correção devido ao esquema de desintegração.

I.1.1.1.3.3. Correção de Decaimento:

Esta correção é aplicada à taxa de desintegração N_0 .

No caso em que a meia-vida $T_{1/2}$ é muito maior que o tempo medido t teremos a expressão usual

$$N_t = N_m e^{\lambda(tm - tr)} \quad (I.24)$$

onde N_t taxa de desintegração N_0 no instante de referência t_r ;

N_m taxa de desintegração N_0 no instante da medida t_m ;

λ constante de desintegração do radionuclídeo;

t tempo de uma medida;

t_r instante de referência, também chamado de data de referência;

t_m instante da medida, considerado em geral um tempo médio no número n de medidas ($t_m = nt/2$) também chamado data da medida.

No caso de $T_{1/2} > t$ é necessário corrigir a contagem para o decaimento durante a medida e teremos, então

$$N_r = N_m \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}} e^{\lambda(t_m - t_r)} \quad (I.25)$$

onde t_m , neste caso, será o instante inicial da medida.

As correções para decaimento dadas pelas expressões (I.25) e (I.24) são aplicadas à fórmula (I.23) para determinação da taxa de desintegração na data de referência estabelecida.

I.1.1.1.4. Incertezas nas Medidas de Atividade

A determinação da medida absoluta da atividade envolve uma série de parâmetros com incertezas associadas, contribuindo na incerteza total sobre o resultado final. Estas incertezas podem ser divididas em: incertezas sistemáticas e incertezas aleatórias ou estatísticas.

As incertezas sistemáticas têm duas origens distintas: de um lado as incertezas nos parâmetros do sistema de medida e do outro a incerteza nos parâmetros nucleares do radionuclídeo medido.

As incertezas nos parâmetros do sistema de medida são:

- incerteza no tempo morto;
- incerteza no tempo de resolução;
- incerteza no tempo de medida;
- incerteza nos fatores de correção, devido a sensibilidade nos detectores à radiações não coincidentes.

As incertezas nos parâmetros nucleares são:

- incerteza na constante de desintegração;
- incerteza nas probabilidades de emissão das radiações envolvidas na medida.

Além destas incertezas, no caso de determinação da atividade

específica de soluções radiotivas, deve-se considerar as incertezas sistemáticas nas massas das fontes e nos fatores de diluição, quando necessário.

A incerteza no valor extrapolado, obtido pelo método de mínimos quadrados, envolve tanto fatores estatísticos, por exemplo, flutuações no número de contagens, como fatores sistemáticos, por exemplo, a forma da curva obtida que pode estar relacionada com os parâmetros do esquema de desintegração.

As incertezas aleatórias ou estatísticas envolvidas na determinação da taxa de desintegração são calculadas considerando-se a forte correlação entre as taxas de contagem de cada via de detecção, devido às coincidências reais. A expressão usada, em termos de desvio padrão fracional, é expressa por⁰¹:

$$\sigma = \frac{1}{N_c} [-(2\epsilon_\alpha\epsilon_\gamma - \epsilon_\alpha - \epsilon_\gamma + 1)]^{1/2} \quad (1.26)$$

onde N_c é o número total de coincidências reais observadas durante a medida.

A incerteza total considerada foi obtida pela combinação das incertezas estatísticas e sistemáticas quadraticamente.

1.1.1.2. Método do Traçador

A padronização de radionuclídeos que decaem por emissão de radiação beta-gama não coincidentes, ou que decaem apenas por emissão beta (beta puro), pode ser conseguida pelo método do traçador^{59,72,88}.

Este método consiste na padronização pelo método de coincidência da mistura de um emissor beta puro e um emissor β - γ , quimicamente compatíveis e com energias beta próximas, onde o emissor

β - γ atua como traçador^{06,07}.

A medida é feita pelo método de coincidência, sendo aplicada a técnica de extrapolação linear da eficiência^{19,45}.

O emissor β - γ deve ser previamente padronizado no sistema de coincidência.

O método do traçador se baseia no fato de que, quando um emissor beta e um outro emissor beta-gama (o traçador) são combinados em uma fonte, há uma única função que relaciona as eficiências de detecção para as duas espécies radioativas.

Esta função é tradicionalmente considerada como sendo uma função linear, mas que, de modo geral, pode ser escrita como

$$\epsilon_x = f(\epsilon_t) \quad (I.27)$$

sendo ϵ_x e ϵ_t as eficiências de detecção do emissor β (X) e do traçador (t).

Assim, pela variação da eficiência de detecção do traçador (ϵ_t) teremos que

$$\epsilon_x \rightarrow 1 \text{ e } f(\epsilon_t) \rightarrow 1$$

no limite, quando $\epsilon_t \rightarrow 1$.

Isto é, as duas eficiências se aproximam da unidade simultaneamente, para as duas espécies.

A equação do método do traçador pode ser escrita como

$$N_x^0 f(\epsilon_t) = [N_\beta - N_t^0 \epsilon_t] \quad (I.28)$$

Sendo que quando $\epsilon_t \rightarrow 1$.

Teremos

$$N_x^0 = N_\beta - N_t^0 \quad (I.29)$$

Como a eficiência do traçador é determinada pelo parâmetro de eficiência (apresentado no item I.1.1.1.1.), podemos escrever a equação (I.28) como

$$N_X F_X \left(\frac{N_C}{N_Y} \right) = [N_\beta - N_C F_C \left(\frac{N_C}{N_Y} \right)] \quad (I.30)$$

de modo que

$$N_X^0 = N_\beta - N_C^0 \quad (I.31)$$

quando $(N_C/N_Y) \rightarrow 1$ e, portanto, $F_X(N_C/N_Y) \rightarrow 1$ e $F_C(N_C/N_Y) \rightarrow 1$.

Sendo N_X^0 a taxa de desintegração procurada;

$F_X(N_C/N_Y)$ a função a ser determinada pela variação dos parâmetros de eficiência;

N_β a taxa de contagens da mistura das duas espécies, corrigida para contagem de fundo e tempo morto;

N_C^0 a taxa de desintegração do traçador, previamente determinada;

$F_C(N_C/N_Y)$ função do parâmetro de eficiência previamente determinada.

As correções aplicadas no método do traçador são descritas no item I.1.1.1.3.

Este método vem sendo usado por muitos laboratórios, apesar de trabalhoso, por ser um dos métodos de calibração de emissores beta puros, que alcançam exatidões da ordem de 99,8%.

I.1.1.2. Método do Pico Soma

O método do pico soma é um método de coincidência que, em geral, pode ser aplicado para padronização de nuclídeos que decaem por captura eletrônica. A medida é feita com o uso de apenas um detector de cintilação³⁰. A coincidência é produzida pela detecção simultânea de um fóton X, proveniente de um evento de captura eletrônica, e um fóton gama proveniente de deexcitação do núcleo filho correspondente. Em lugar do fóton gama, a deexcitação pode dar origem a um outro fóton x, proveniente de um processo de conversão interna, também coincidente com o fóton-x da captura. Este evento de coincidência originará um pulso de energia mais alto correspondente à soma das energias depositadas pelas radiações simultâneas.

Para o caso de um radionuclídeo que se desintegre por um evento de captura eletrônica, seguida de emissão gama, as equações que exprimem as contagens no detector são dadas por:

$$N_1 = N_0[(P_1 + P_2) - P_1P_2\epsilon_x]\epsilon_x \quad (I.32)$$

$$N_2 = N_0P_1P_2\epsilon_x^2 \quad (I.33)$$

onde N_1 - taxa de contagem dos fótons γ e fótons X;

N_2 - taxa de contagem do pico soma (γ +X);

P_1 - probabilidade de emissão X da captura eletrônica;

P_2 - probabilidade de emissão gama ou X da conversão interna.

Portanto,

$$N_0 = \frac{P_1P_2}{(P_1+P_2)^2} \frac{(N_1+2N_2)^2}{N_2} \quad (I.34)$$

Note-se que a atividade é dependente dos parâmetros de desintegração P_1 e P_2 .

Uma dificuldade experimental deste método está em assegurar uma boa separação entre as contagens N_1 e N_2 , que podem estar sobrepostas em razão de problemas de resolução no espectro do detector.

Este método pode ser aplicado, também, a outros tipos de radiação que produzam eventos de coincidência no mesmo detector (β^+ - γ , e_A -ec etc.)⁴⁴.

O método do pico-soma é bastante simples e alcança exatidões da ordem de até 99,6%.

I.1.2. Sistemas de Detecção pelo Método de Coincidência

O método de coincidência há décadas é reconhecido como o melhor método utilizado na padronização de uma vasta gama de radionuclédeos^{18,41,66,68,78}. Inicialmente, foi desenvolvido somente para padronização de nuclídeos emissores beta-gama, com esquema de desintegração simples e utilizando um detector proporcional 4π para detecção beta e cintilador NaI(Tl) para a detecção gama. Atualmente, vem sendo utilizado em sua essência básica, com outros tipos de detectores e aplicado para um grande número de radionuclédeos com esquemas de desintegração complexos, produzidos em reatores e aceleradores de partículas.

A seguir serão descritos os sistemas de coincidência mais comumente utilizados e que apresentam resultados mais exatos.

I.1.2.1. Sistema de Coincidência 4π PC-NaI(Tl):

O sistema de coincidência 4π PC-NaI(Tl)⁶³ é constituído de um detector proporcional com geometria 4π à gás fluente utilizado para detecção alfa, beta, raios x ou elétrons de conversão e de um ou dois cristais de iodato de sódio usados para a detecção gama emitida simultaneamente. Este sistema apresenta alta eficiência de detecção beta, da ordem de 95% e uma eficiência de praticamente de 100% para detecção alfa.

O detector 4π PC apresenta baixo ruído, baixa sensibilidade

para radiação gama (<1%) e tempo de recuperação de ≈ 100 ns. Estes aspectos o tornam a melhor opção como detector primário para medidas de coincidência⁰⁴. É, geralmente, operado à pressão atmosférica como contador de eventos, pois em geral os betas depositam somente uma fração de sua energia no volume sensível.

Pode ser construído com diferentes dimensões, em geral em forma de "pill-box". Os anodos utilizados são de aço ou tungstênio recoberto com ouro com diâmetros que variam de 0,025 mm a 0,050 mm. São construídos geralmente em latão, podendo também serem feitos de lucite metalizado ou alumínio. Alguns têm possibilidade de montagens de janela fina (Be), permitindo sua aplicação no método de coincidência para padronização de nuclídeos que emitem gamas de baixa energia, que seriam absorvidos em detectores com paredes mais grossas.

Com este sistema consegue-se exatidões da ordem de 99,9% na taxa de desintegração o que o torna o melhor sistema de padronização, além do fato de preencher todos os requisitos para a aplicação da técnica de extrapolação linear da eficiência.

Quando o detector proporcional é de janela fina, pode ser usado na padronização de nuclídeos por coincidência e^-X , ou $\alpha-\gamma$ (com gama de baixa energia) ou $Ec-\gamma$ de baixa energia, pois a janela permite ao gama atingir o cintilador^{46,57}.

I.1.2.2. Sistema de Coincidência 4π (LS)-NaI(Tl):

O sistema de coincidência 4π (LS)-NaI(Tl)^{67,85} é constituído de uma solução cintiladora à qual é incorporada uma alíquota de solução radioativa, emissora alfa-gama ou beta-gama. O sistema é completado pelo uso de um cristal de NaI(Tl) para detecção do gama coincidente.

O uso de cintilador líquido apresenta algumas vantagens como: ausência de auto-absorção devido à solução radioativa estar intimamente ligada ao detector que é a solução cintiladora; rapidez e simplicidade na preparação de amostras, além da eficiência 4π . Entretanto, há também algumas desvantagens, como alta eficiência do detector para radiação gama, efeitos de parede, pulsos atrasados.

O sistema $4\pi\text{LS-NaI(Tl)}$ é bastante usado para nuclídeos emissores beta de baixa energia, alfa-gama, $\text{Ec-}\gamma$ e também $e\text{-X}^{22,79}$. As exatidões alcançadas são da ordem de 99.7%.

I.1.2.3. Sistema de Coincidência $4\pi\text{PS-Na(Tl)}$

É um sistema de coincidência que emprega um cintilador plástico para detecção da radiação α ou β em coincidência com um cristal NaI(Tl) para detecção gama⁵⁴. Este tipo de detector é muito versátil pois pode ter várias formas geométricas, de acordo com o interesse da medida. Apresenta, no entanto, algumas desvantagens como alta eficiência para gamas. Não é muito utilizado na padronização absoluta, mas pode alcançar exatidões da ordem de 99%.

I.1.2.4. Sistema de Coincidência NaI-NaI

Este sistema é constituído de dois cintiladores de NaI(Tl) posicionados frontalmente com a fonte entre eles^{42,73,81}. O método de coincidência usado é o convencional sendo que, a variação da eficiência para aplicação da técnica de extrapolação é feita pela variação da distância fonte-detector. É, geralmente, empregado para nuclídeos que decaem por captura eletrônica seguido de deexcitação gama, sendo contados em coincidência os raios X característicos emitidos após a captura eletrônica e o gama coincidente. Com este sistema, atinge-se exatidões da ordem de 99,8%.

I.1.2.5. Sistema de Coincidência $4\pi\text{BS-NaI(Tl)}$

O sistema de coincidência $4\pi\text{BS-NaI(Tl)}$ ou $2\pi\text{BS-NaI(Tl)}$ é o proposto por este trabalho e emprega detectores de barreira de superfície para detecção alfa e cintilador de NaI(Tl) para detecção da radiação gama. Pode atingir precisões da ordem de 99,5% para emissões alfa-gama. É também utilizado na padronização de nuclídeos metaestáveis

pelo método de coincidência. Suas características e aplicações são discutidas neste trabalho. Além dos sistemas de coincidência aqui citados, outros tipos de detectores podem ser empregados em sistemas de coincidência^{39,65}.

1.2. Métodos de Contagem Direta

1.2.1. Sistema de Geometria Definida

O sistema de contagens sob um ângulo sólido definido¹⁰ é um dos mais antigos métodos estabelecidos para medida da taxa de desintegração de fontes radioativas.

O princípio do método consiste da determinação de N_0 pela equação⁷⁴:

$$N_0 = \frac{N_m}{\Omega \epsilon} \quad (I.35)$$

onde N_0 - taxa de desintegração da fonte;

N_m - taxa de contagem por unidade de tempo corrigida para radiação de fundo e tempo morto;

Ω - ângulo sólido subentendido;

ϵ - eficiência intrínseca de detecção.

Para nuclídeos que se desintegram por emissão beta, o método não é muito preciso, pois há muitos fatores de correção que devem ser considerados, tais como retroespalhamento, auto-absorção na fonte, absorção no ar. Todavia, este método é muito usado na medida de atividade de emissores alfa, raio X e gamas de baixa energia.

Atualmente, são muito usados detectores semicondutores tipo barreira de superfície, em sistema de geometria definida, principalmente para padronização de fontes eletro-depositadas. Estes detectores têm eficiência intrínseca de 100% e podem ser colocados em vácuo, de modo que não haja atenuação das partículas alfa no ar. O único fator que influi na eficiência é praticamente o fator geométrico, o qual pode ser

determinado com precisão⁶⁵. Em condições apropriadamente escolhidas chega-se a incertezas da ordem de 0,1% na determinação do fator geométrico.

Para detecção de alfas, raio-X e gama de baixa energia, são usados pelo sistema de geometria definida vários tipos de detectores como: proporcionais de janela fina, telas de sulfeto de zinco, cristais de CsI(Tl) e NaI(Tl)^{43,74} e detectores plásticos.

I.2.2. Espectrômetros

I.2.2.1. Sistema 4 π PPC ou 4 π PC

Contadores proporcionais a alta pressão foram desenvolvidos essencialmente para medida absoluta de radioisótopos que se desintegram por captura de eletrônica^{04,49,82}. Este tipo de detector pode ser utilizado também na padronização de nuclídeos que se deexcitam por conversão interna, pois a eficiência para elétrons pode alcançar a unidade se a pressão do gás for suficiente para que o elétron seja totalmente absorvido no volume sensível do detector. Nestas condições, o detector proporcional pressurizado se torna um espectrômetro.

Os detectores proporcionais são pressurizados com pressões da ordem de 10 atmosferas ou mais. O gás mais utilizado é uma mistura de 90% de argônio com 10% de metano (P-10). A pressão usada pode variar em função da energia dos elétrons a serem detectados, para uma dada dimensão do detector.

Os detectores 4 π PC à pressão atmosférica podem também se empregados na padronização de radionuclídeos que se desintegram por emissão de partículas alfa ou por conversão interna.

Já no caso dos elétrons de conversão, a sua detecção requer detectores de dimensões adequadas para que todos os elétrons sejam absorvidos no volume sensível do detector. No entanto, o uso de um detector proporcional à pressão atmosférica para detecção de elétrons, tem a vantagem de ter eficiência à radiação gama menor que o pressurizado, além de usar uma tensão de operação menor. Estes sistemas

apresentam precisões da ordem de 99,8%.

I.1.2.2. Cintilador Líquido

O cintilador líquido é muito usado na medida absoluta de emissores beta puros e também para núclídeos que se desintegram por emissão de partículas alfa. Para energias beta (energia máxima) maiores que 150 keV e alfas, apresenta precisões comparáveis com o método de coincidência^{52,79,84}. A atividade absoluta é determinada pelo método de extrapolação a zero. Apresenta, no entanto, algumas desvantagens como alta eficiência a radiação gama e efeito de parede. Para betas de menor energia e captura eletrônica, outros métodos de medida são usados como o de coincidência citado no item I.1.1.1.1.

I.2.2.3. NaI(Tl) Tipo Poço

Radionuclídeos que se deexcitam por emissão gama de baixa energia, (< 150 keV) podem ser padronizados por espectrometria gama, utilizando detector de cintilação de NaI(Tl) ou CsI(Tl) do tipo poço^{08,86}. A eficiência geométrica nesses casos é alta, e o fator de correção aplicado a N_0 devida a: ângulo sólido, efeito bremsstrahlung proveniente dos elétrons de conversão, absorção fotoelétrica nas paredes, escape fotoelétrico e retroespalhamento Compton, estão numa faixa de 0,30% a 1,64% dependendo das características do detector usado, introduzindo uma incerteza de 0,4% na medida da taxa de emissão⁵⁵.

II. ARRANJO EXPERIMENTAL DO SISTEMA 4π (BS)-NaI(Tl)

II.1. Considerações Gerais

Visando a instalação de um sistema de coincidência para padronização de núcleos emissores alfa-gama e elétron-X, foi desenvolvido um sistema que emprega detectores de silício tipo barreira de superfície acoplados a cintiladores de NaI(Tl).

A escolha dos detectores de silício tipo barreira de superfície, baseou-se nas suas características mais importantes⁶⁵, entre as quais podemos citar:

- excelente resolução em energia;
- resposta linear em energia, tanto para partículas carregadas pesadas, como alfas e prótons, como também para partículas carregadas leves, como betas e elétrons;
- tempo de resposta da ordem de 1 nseg;
- estabilidade eletrônica;
- baixa sensibilidade para radiação de fundo;
- baixa sensibilidade para radiação gama.

Os detectores de barreira de superfície apresentam algumas vantagens em relação ao detector proporcional comumente usado em medidas absolutas; entre elas destacamos: método de preparação de fontes mais simples; não utiliza gás; permite medir fontes radioativas com taxas de desintegração mais altas devido a ter um tempo de resposta menor, 1 nseg comparado com 100 nseg dos detectores proporcionais, aceitando taxas de contagens mais altas, mantendo pequenas as correções de tempo morto; não

requer a instalação de anodos como no 4π PC, trabalhosa e delicadíssima; não apresenta problemas inerentes ao uso de alta tensão, pois sua tensão de operação é da ordem de 300 a 500 volts.

Apresenta, entretanto, algumas desvantagens; entre elas podemos citar a fragilidade, nível de ruído alto quando utilizado para medida de radiação de baixa energia, como no caso dos elétrons de conversão da ordem de 60 keV, vida útil de $\approx 10^8$ alfas/cm² 87.

Para a detecção dos fótons gama e X foram utilizados cristais cintiladores de NaI(Tl).

A escolha deste tipo de detector deve-se a sua alta eficiência de detecção, estabilidade eletrônica e disponibilidade em diferentes geometrias. Os detectores utilizados no presente trabalho são cintiladores de NaI(Tl) de janela fina, indicados para detecção de fótons X, serão descritos no item II.2⁴⁷.

O arranjo experimental, descrito no item II.2, foi projetado de modo a constituir um arranjo que permita a montagem de diferentes sistemas de medida bastando, para isso, retirar ou acrescentar os detectores de interesse. No item II.2 são apresentados os sistemas utilizados no presente trabalho.

Neste arranjo a posição da fonte é fixa enquanto que a distância fonte-detector pode ser variada, tanto para os detectores de barreira de superfície, como para os cintiladores, permitindo a medida da atividade em várias distâncias.

II.2. Descrição do Arranjo Experimental

O esquema do arranjo experimental do sistema de coincidência $4\pi\text{BSc-}\gamma$ é mostrado na figura II.1.

O arranjo é constituído de uma haste principal de alumínio com 70 cm de altura (A), soldada à uma base de sustentação também de alumínio com 25 cm de lado (B).

À haste principal estão acoplados, na parte central, o suporte de fontes (S) confeccionado em lucite, assim como dois suportes também em lucite para sustentação dos detetores de cintilação (C), que são dispostos frontalmente. O posicionamento dos detetores em relação à fonte pode ser variado de modo simétrico. A distância máxima e mínima entre fonte-detector é de 14 cm e 0,8 cm, respectivamente; o posicionamento fonte-detector é alterado por meio de um dispositivo que permite variação milimétrica da distância fonte-detector.

Do lado oposto, soldado à mesma base de sustentação temos outra haste (D), a qual é acoplado o sistema de suportes para os detetores de barreira de superfície, confeccionada em alumínio. Os detetores são dispostos frontalmente, tendo um dispositivo semelhante ao descrito acima para posicionamento fonte-detector, permitindo uma variação milimétrica (máxima de 15 mm e mínima de 3 mm).

À esta haste estão fixados os pré-amplificadores dos detetores de barreira de superfície, evitando o uso de cabos longos.

O arranjo permite a montagem de diferentes sistemas de detecção. No presente trabalho foram montados:

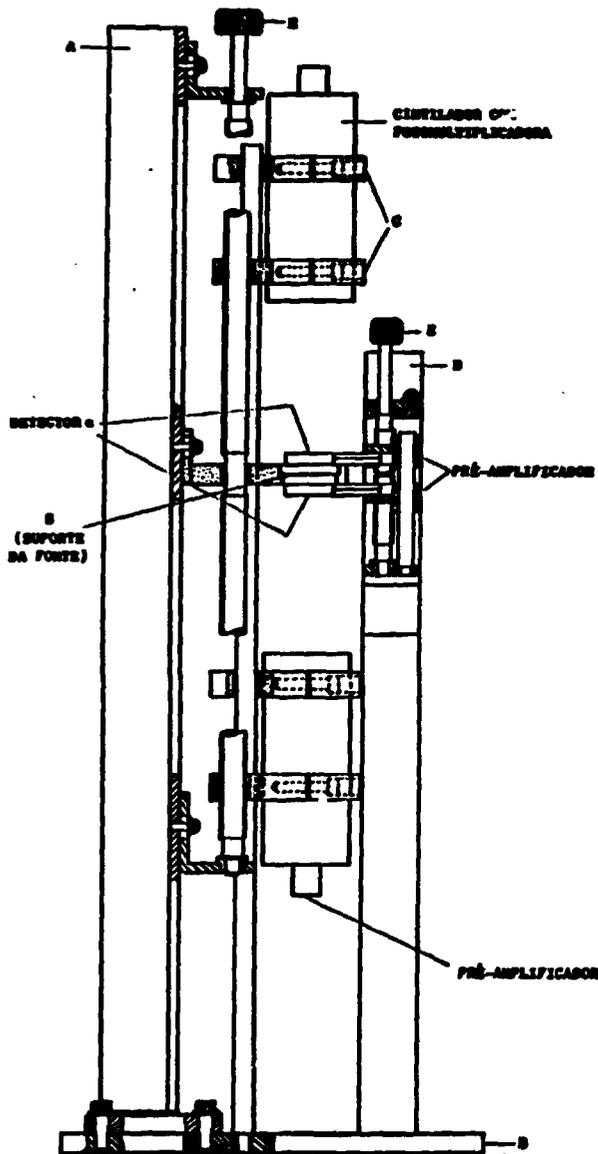


Figura II.1 Arranjo do sistema de coincidência
 $4\pi(\text{BS}) - \text{NaI}(\text{Tl})$.

1. 4 π BS-NaI(Tl)

Sistema de coincidência que utiliza dois detectores de silício tipo barreira de superfície de transmissão acoplados a dois cintiladores de iodeto de sódio ativado com tálio, de janela fina. Esse sistema foi utilizado na padronização do ^{241}Am descrito no capítulo III.

2. 2 π BS-NaI(Tl)

Sistema de coincidência que utiliza um detector de barreira de superfície e um detector de cintilação NaI(Tl) de janela fina. Esse sistema foi utilizado na padronização do ^{137}Cs , do ^{109}Cd e do ^{241}Am .

Além destes, o arranjo permite a montagem do sistema de coincidência $4\pi\text{NaI(Tl)}$, que utiliza dois detectores de cintilação de NaI(Tl) para padronização de radionuclídeos pela coincidência X-X ou X- γ .

Todo o conjunto foi encerrado numa blindagem com 10 cm de chumbo, para minimizar a influência da radiação de fundo.

II.3. Detectores Utilizados

II.3.1. Detectores Alfa - Detectores de Barreira de Superfície

Os detectores de estado sólido são análogos às câmaras de ionização gasosas, com a diferença de que enquanto na câmara de ionização a radiação incidente produz pares de elétrons-íons, em um sólido, a partícula incidente produz pares de elétron-lacuna. A coleção da carga liberada pela partícula incidente é feita pela aplicação de um campo elétrico.

Uma diferença importante, entre o sólido e o gás é que são produzidos muito mais pares elétron-lacuna do que o número de pares

elétron-íons por unidade de energia dissipada, de maneira a haver uma menor flutuação estatística no número de pares formados e, portanto, uma resolução melhor na medida da energia da partícula incidente. Outra característica dos detectores semicondutores é que devido à alta densidade dos sólidos comparada com a do gás, pode-se confeccionar detectores menores e com pulsos mais rápidos, isto é, com menor tempo de formação.

Em semicondutores dois fenômenos podem alterar a coleção de cargas: a recombinação dos pares criados e a sua captura. A captura é feita por centros de impurezas, que liberam novamente os pares capturados após um intervalo de tempo de até alguns microsegundos, prejudicando, portanto, a coleção de cargas. Estes centros de captura são criados por impurezas indesejáveis existentes nos cristais sendo, portanto, necessária a utilização de cristais de altíssima pureza para confecção de detectores¹².

Na prática, os materiais semicondutores utilizados não são puros, mas dopados de modo controlado com impurezas ricas em elétrons ou lacunas, que são as responsáveis pela condutividade dos detectores.

Os detectores semicondutores são, geralmente, constituídos de um único cristal dopado de um lado com impurezas doadoras (ricas em elétrons, tipo n) e do outro com impurezas receptoras (ricas em lacunas, tipo p). Quando aplicada uma diferença de potencial no cristal, haverá migração dos elétrons e lacunas aos seus respectivos eletrodos, formando uma região central neutra (região de depleção), que constitui a região sensível ao detector, região esta em que ocorre a dissipação da energia da partícula incidente^{14,25,26}.

Neste tipo de detectores, há a formação de uma camada morta - "dead layer" - que pode absorver parte da energia da partícula incidente.

Quando da detecção de partículas de curto alcance, são utilizados detectores de barreira de superfície, pois neste tipo de detector, todo volume sensível é acessível a estas partículas, já que a camada morta é extremamente fina.

Os detectores de barreira de superfície são, geralmente,

constituídos de uma lâmina de cristal dopado com uma impureza (tipo n). Esta lâmina é submetida a uma ataque químico²⁶, que oxida apenas uma camada fina do cristal, formando uma região predominantemente aceitadora de elétrons (barreira de superfície). A conexão elétrica na camada da superfície é feita por evaporação de uma fina película de metal, geralmente ouro (200Å).

Os primeiros estudos visando o uso de materiais semicondutores como detectores de partículas nucleares encontrados na literatura datam de 1932¹². Entretanto, problemas relativos à pureza e confecção desses detectores fizeram com que estes estudos fossem suplantados pelos estudos para desenvolvimento de câmaras de ionização, Geigers e contadores proporcionais.

Somente entre 1960-66^{32,61}, ocorreu o desenvolvimento de pesquisas sobre a física de detectores de barreira de superfície, que produziram o desenvolvimento tecnológico utilizado na fabricação dos detectores tipo barreira de superfície disponíveis comercialmente.

No início, apenas detectores Au-Si tipo barreira de superfície eram disponíveis; entretanto, estes detectores são muito frágeis, sensíveis à luz ambiente e a danos mecânicos, pois a película de Au não pode ser tocada, caso contrário ocorre a destruição do contato elétrico e a danificação permanente no detector.

Atualmente, através de estudos sobre influência da camada morta a ser atravessada pela radiação incidente, foram desenvolvidos detectores de barreira de superfície mais resistentes chamados "RUGGEDIZED" constituídos de um cristal do tipo p, e que utilizam alumínio com espessura de 2500Å, como contato elétrico. Estes detectores são mais robustos, podendo ser utilizados para monitoração ambiental à luz ambiente e podendo ser limpos em caso de contaminação.

Os detectores alfa, empregados no presente trabalho, são deste último tipo descrito acima.

No sistema 4πSS, os detectores empregados foram os tipo transmissão modelo TR-022-200-1000-S da linha "Ruggedized" MARCA ORTEC, com 200mm² de área ativa e 1000 μm de espessura, totalmente depletado.

No sistema 2 π BS, o detector empregado foi o modelo BR-022-300-1000 da linha "Ruggedized" MARCA ORTEC, com 300 mm² de área ativa e 1000 μ m de espessura.

II.3.2. Detectores Gama - Detectores de Cintilação

O detector de cintilação empregado no presente trabalho é um cristal inorgânico NaI(Tl), um dos mais utilizados para detecção da radiação gama⁷⁴. Este tipo de detector apresenta um rendimento de luz excelente, maior do que qualquer outro material cintilador conhecido⁴⁷. É considerado como material padrão para espectroscopia gama. O cristal é frágil e higroscópico, devendo ser encapsulado, não podendo ser exposto ao ambiente.

Os detectores gama utilizados são cintiladores de iodeto de sódio ativado com tálio de janela fina MODELO 2XM.040/2A MARCA BICRON com 50,8 mm de diâmetro e 1 mm de espessura, com janela de 0,00254 mm de Al.

Estes detectores são acoplados à fotomultiplicadoras tipo 52B01-2. A este conjunto foi acoplada uma base com pré-amplificador modelo 276 MARCA ORTEC.

As resoluções para o pico de 5 keV do ⁵⁵Fe foram de 44,9 e 46,1% a uma tensão de 1200 V. Como os detectores não têm resolução idêntica usamos tensões um pouco diferentes para cada detector.

II.4. Sistema Eletrônico Associado

O sistema eletrônico associado, figura II.2. é o convencional para este tipo de medida. Este sistema pode ser dividido em três vias distintas:

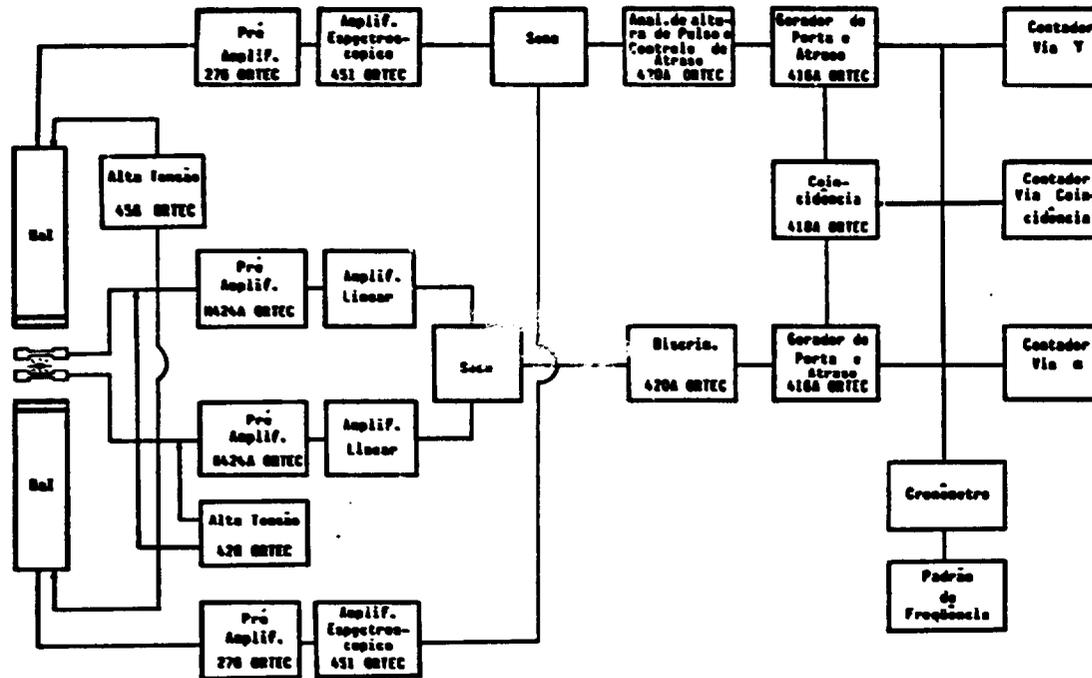


Figura II.2 Diagrama de bloco do sistema de coincidência $4\pi(\text{BS}) - \text{NaI}(\text{Tl})$

II.4.1. Via Alfa

Na via alfa são processados os pulsos provenientes dos dois detectores de barreira de superfície, somados após sua amplificação, sendo a seguir selecionados os intervalos de energia de interesse por meio de um analisador de altura de pulso monocanal. Os pulsos selecionados são enviados a um dispositivo que permite fixar eletronicamente o tempo morto e o tempo de resolução do sistema. Os pulsos assim "preparados" são enviados simultaneamente a um contador e à via de coincidência.

II.4.2. Via Gama

De modo análogo ao da via alfa os pulsos provenientes dos cintiladores são somados após sua amplificação e o intervalo de energia de interesse é selecionado através de um analisador de altura de pulso monocanal. O tempo morto e o tempo de resolução são fixados eletronicamente por um dispositivo semelhante ao da via alfa, sendo os pulsos enviados simultaneamente a um contador e à via de coincidência.

II.4.3. Via de Coincidência

A via de coincidência é constituída de um dispositivo que irá registrar os eventos provenientes de radiações emitidas simultaneamente.

Entretanto, as radiações provenientes da desintegração radioativa simultânea em estudo, são detetadas e processadas por detectores diferentes, passando por diversos módulos eletrônicos, que irão ocasionar uma defasagem no tempo de chegada ao dispositivo de coincidência dos pulsos, na realidade coincidentes, isto é, genuinamente coincidentes.

Esta defasagem é corrigida pelo uso de uma linha de atraso incorporada ao analisador monocanal, que permite posicionar os pulsos da via alfa e da via gama em fase, de modo que atinjam o dispositivo de

coincidência ao mesmo tempo⁹⁰.

A unidade de coincidência utilizada é um módulo eletrônico que atua como uma porta "E", registrando a coincidência apenas quando os pulsos provenientes das duas vias de detecção atingem a unidade de tempo pré-estabelecido, conhecido como tempo de resolução " τ_r ".

Os contadores das três vias de detecção alfa, gama e coincidência estão ligados a um temporizador que utiliza, como referência de tempo, a frequência de um oscilador de cristal, garantindo uma precisão no tempo de 0,01%.

O sistema eletrônico para o sistema de coincidência 2 π BS é semelhante ao descrito acima. Foram suprimidos os amplificadores sobressalentes e os módulos soma. Neste sistema, os detectores de barreira e de cintilação foram dispostos frontalmente com a fonte radioativa entre eles.

II.4.4. Medida do Tempo Morto e do Tempo de Resolução

O método experimental usado para medida do tempo morto do sistema de coincidência é uma variação do método das duas fontes, conhecido como "método do pulso periódico"⁹¹.

Este método utiliza uma fonte radioativa e um gerador de pulsos periódicos atuando como uma outra fonte.

O tempo morto é determinado pela expressão:

$$\tau = \frac{1}{n_r} \left[1 - \left(\frac{n_{rp} - n_r}{n_p} \right)^{1/2} \right] \quad (\text{II.1})$$

onde n_r é a taxa de contagens por unidade de tempo da fonte radioativa;

n_p é a taxa de contagens por unidade de tempo do gerador (frequência do gerador);

n_{rp} é a taxa de contagens por unidade de tempo da combinação gerador mais fonte.

Na medida do tempo morto, foi utilizada uma fonte de ^{241}Am com uma taxa de contagens da ordem de 20000 cps. O gerador utilizado foi o TIME MARK GENERATOR MODELO 429 TEKTRONIX e a frequência usada foi de 20000s^{-1} .

O valor do tempo morto determinado foi de $(3,105 \pm 0,009)$ seg.

O tempo de resolução é determinado pela contagem de coincidências acidentais produzidas por fontes não correlacionadas no tempo, incidindo no módulo de coincidência provenientes das duas vias de detecção. O tempo de resolução será função da taxa de contagens acidentais N_{acc} e das taxas de contagens individuais das duas vias, N_α e N_γ , de modo que:

$$\tau_r = \frac{N_{acc}}{2N_\alpha N_\gamma} \quad (II.2)$$

Na medida do tempo de resolução foram utilizadas duas fontes de ^{241}Am . Na figura II.3 é mostrado como foram dispostas as fontes para esta medida.

Para obter eventos independentes nos detectores foi usada uma chapa de chumbo de 2,7 mm que impede a radiação gama da fonte 2 atingir o detector gama.

Dessa forma a partir das contagens registradas nos três canais de contagens N_α , N_γ e N_c obtém-se o tempo de resolução.

A taxa de contagens de uma das vias foi variada por discriminação eletrônica.

O valor determinado para τ_r é de $(0,9664 \pm 0,0053) \cdot 10^{-8}$ seg.

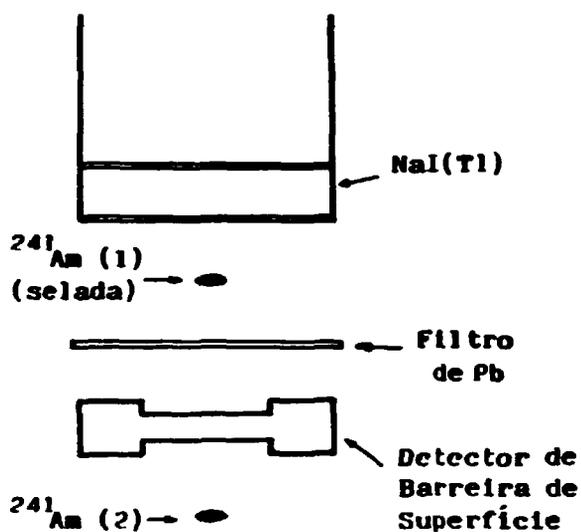


Figura II.3. Esquema do posicionamento fonte-detector para a medição do tempo de resolução.

II.5. Preparação de Fontes

Geralmente os radionuclídeos são mantidos na forma de soluções aquosas, que são padronizadas quantificando-se a concentração em atividade, isto é, atividade específica da solução (taxa de desintegração por unidade de massa).

Uma solução radioativa padrão deve ser: homogênea e quimicamente estável, possibilitando a retirada de alíquotas representativas⁵⁸.

As fontes radioativas utilizadas no presente trabalho foram reparadas pela deposição de alíquotas conhecidas de material radioativo num substrato de COLLODION (nitrato de celulose), com densidade superficial de 10 a 20 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$.

O substrato utilizado é constituído de uma arandela de aço inox de 4 cm e 2,5 cm de diâmetro externo e interno, respectivamente. Sobre este substrato metálico adere-se o filme de COLLODION.

Na padronização de radionuclídeos que emitem partículas alfa beta, as fontes radioativas utilizadas devem ser finas, homogêneas e estáveis para evitar perdas de contagens devido à auto-absorção. Entretanto, durante o processo de secagem, o resíduo tende a cristalizar de modo visivelmente não uniforme. Em geral, a atividade se concentra num algum cristal grande no limiar da gota original²⁹.

Para minimizar este efeito, a fonte é submetida a um tratamento apropriado que consiste:

- aplicação de um agente umectante para diminuir a formação de cristais grandes. Este agente é uma espécie de detergente que rompe a tensão superficial da gota e evita a formação de cristais grandes. O agente usado é o CYASTAT S.N.. Numa concentração de 1% esta concentração foi estabelecida por Renner⁷⁰;
- secagem em jato de nitrogénio aquecido ($\approx 45^\circ\text{C}$) que permite a obtenção de depósitos mais uniformes^{70,92}.

A massa da alíquota de material radioativo, é determinada gravimetricamente pelo método do picnómetro¹⁷.

O método do picnómetro consiste na determinação da massa da alíquota pela diferença obtida da pesagem do picnómetro que contém a solução radioativa antes e depois da deposição da alíquota no substrato.

As medidas da massa das fontes radioativas é feita em balança analítica MARCA METTLER MODELO M5SA, com incerteza de 15 μg .

As fontes usadas no sistema proposto neste trabalho não necessitam um substrato condutor, o que simplifica bastante o procedimento de preparação de fontes. Todavia, como foram medidas também no sistema convencional $4\pi(\text{PC})$ e $4\pi(\text{PPC})$, o qual têm como pré-

requisito o uso de substratos condutores, as fontes foram preparadas em substratos de COLLODION metalizadas com Au.

III. PADRONIZAÇÃO E RADIONUCLÍDEOS NOS SISTEMAS 4π (BS) E 2π (BS)-NaI(Tl)

III.1. Padronização do ^{241}Am

O ^{241}Am é um radionuclídeo produzido artificialmente (filho do ^{241}Pu), que se desintegra com uma meia-vida de $(432,7 \pm 0,5)\text{a}^{83}$, por emissão de partículas alfa, populando os níveis excitados do ^{237}Np . Na figura III.1 é mostrado o esquema de desintegração do $^{241}\text{Am}^{56}$.

Os três ramos alfa mais intensos, têm energias de: 5,485 MeV, 5,443 MeV e 5,388 MeV com probabilidade de emissão de 85,2%, 12,8% e 1,4%³¹, respectivamente.

Os níveis excitados do ^{237}Np se deexcitam por emissão de fótons gama ou por conversão interna, para o nível fundamental do ^{237}Np , que tem uma meia-vida de $2,14 \times 10^6$ anos¹⁵. Na tabela III.1 são apresentadas as energias e intensidades absolutas maiores que 0,1% dos vários tipos de radiação emitidos no decaimento do ^{241}Am .

Como a meia-vida do ^{237}Np , é muito longa comparada com a meia-vida do ^{241}Am , a atividade do ^{237}Np pode ser considerada desprezível em uma fonte de ^{241}Am . Assim o ^{237}Np pode ser tratado como um núcleo estável, ignorando-se o seu decaimento alfa para o ^{233}Pa .

A padronização do ^{241}Am , devido as características do seu esquema de desintegração pode ser feita tanto por medida absoluta direta, como pelo método de coincidência, pois as partículas alfa emitidas são coincidentes com os fótons emitidos na deexcitação dos níveis do ^{237}Np , em tempos menores que o tempo de resolução utilizado.

Entre os métodos convencionais mais usados na padronização do ^{241}Am , destacam-se: o método de coincidência 4π (PC)-NaI(Tl), que utiliza detector proporcional à gás fluente em geometria 4π , de "janela fina", acoplado a um cintilador de NaI(Tl), e o método 4π (PC) α_{total} , que utiliza a técnica de extrapolação ao nível zero^{51,65}. Estes métodos são os que apresentam maior exatidão, da ordem de 99,8% na determinação absoluta da atividade.

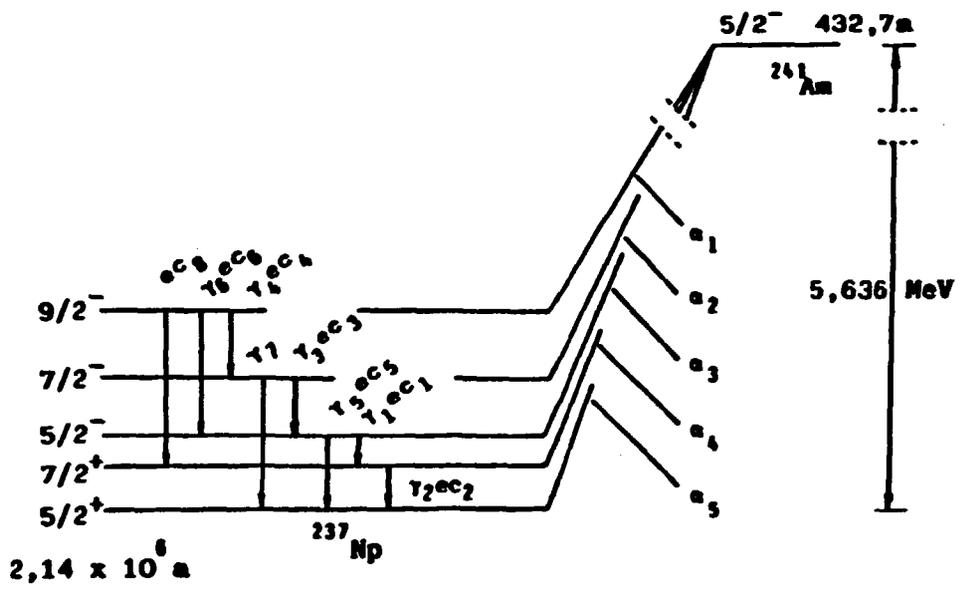


Figura III.1 Esquema de desintegração do $^{241}\text{Am}^{56}$

No presente trabalho, o método convencional empregado na avaliação do desempenho do sistema $4\pi(\text{BS})\text{-NaI}$ para padronização do ^{241}Am todo $4\pi(\text{PC})\alpha_{\text{total}}$, que emprega a técnica de extrapolação ao nível

Tabela III.1.

o alfa

Energia ³¹ MeV	Intensidade ³¹ Absoluta %
5,388 ± 0,001	1,4 ± 0,2
5,4429 ± 0,0013	12,8 ± 0,2
5,4856 ± 0,0012	85,2 ± 0,8
5,512 ± 0,002	0,20 ± 0,05
5,544 ± 0,001	0,34 ± 0,05

o fotônica

Energia ⁵⁶ keV	Intensidade Absoluta %
13,94	29 ± 1 ⁵⁶
26,35 ± 0,01	2,4 ± 0,1 ⁰⁹
33,20 ± 0,01	0,12 ± 0,01 ⁰⁹
59,536 ± 0,001	35,9 ± 0,4 ⁰⁹

o eletrônica

Energia ⁵⁶ keV	Intensidade ⁵⁶ Absoluta %
4,75 ± 0,01	8,7 ± 0,7
10,09	36 ± 1
11,60 ± 0,01	11,4 ± 0,8
24,85 ± 0,01	1,1 ± 0,1
27,48 ± 0,01	3,7 ± 0,4
31,70 ± 0,01	1,4 ± 0,2
37,936 ± 0,002	34,0 ± 0,9
53,813 ± 0,004	10,3 ± 0,5
58,035 ± 0,002	3,7 ± 0,3

III.1.1. Medida Absoluta de Atividade pelo Método $4\pi(PC)\alpha_{total}$

Um dos métodos convencionais de medida absoluta de atividade de fontes radioativas é o método de contagem total das partículas emitidas.

Este método se aplica a nuclídeos que se desintegram por emissão de partículas monoenergéticas, como pode ser considerado o caso do ^{241}Am .

A medida é, geralmente, feita utilizando-se detectores do tipo cintiladores líquidos⁶⁷ que tem geometria intrínseca 4π , ou contadores proporcionais à gás fluente em geometria 4π ou 2π ⁵¹.

A medida absoluta da atividade, obtida pela determinação da taxa de contagem total de partículas alfa, independentemente do sistema de detecção usado, requer que seja registrado o espectro de altura de pulso das partículas alfa, e que este seja extrapolado para altura de pulso zero.

O detector empregado na calibração do ^{241}Am foi o contador proporcional em geometria 4π à gás fluente. Este detector possui eficiência intrínseca de detecção de partículas alfa igual a 100%, assim como uma eficiência geométrica igual à unidade.

A equação usada na determinação da atividade é dada por:

$$N_0 = N_\alpha C_{SP} C_{SF} \quad (\text{III.1})$$

onde N_0 é a taxa de desintegração (atividade);

N_α é a taxa de contagens acima do nível de discriminação, corrigida para contagens de fundo e tempo morto;

C_{SP} é o fator de correção para extrapolação do espectro de altura de pulso zero;

C_{SF} é o fator de correção para absorção no suporte da fonte.

1.1.1. Sistema de Detecção utilizado no Método $4\pi(PC)\alpha_{total}$

O detector proporcional usado, do tipo "pill box", mostrado figura III.2 é descrito em detalhes por L.P. Moura⁶³.

Este detector foi operado à pressão atmosférica. O gás do foi a mistura gasosa P-10, constituida de 90% de argônio e 10% de ar.

As fontes radioativas foram preparadas pela técnica de paração de fontes finas, apresentada no capítulo II.

O sistema eletrônico utilizado é o convencional para este o de medida.

Na figura III.3 é apresentada o diagrama de bloco do sistema trônico e do sistema eletrônico auxiliar, utilizado na determinação fator de correção para extrapolação de espectro.

1.1.2. Fatores de Correção envolvidos na Padronização do ^{241}Am

Na padronização do ^{241}Am pelo método $4\pi(PC)\alpha_{total}$, dois ores de correção devem ser aplicados para obtenção da atividade, a tir das taxas de contagem observadas. Estes dois fatores são: o or de correção para extrapolação do espectro para altura de pulso o, C_{sp} , e o fator de correção para absorção no suporte da fonte C_{sp} .

O fator de correção da eficiência do detector para sua isibilidade à radiação gama e aos elétrons do processo de conversão erna provenientes da desintegração do ^{241}Am , pode ser considerado izeível devido às características do próprio detector, que é pouco isível à radiação gama e às condições da medida. Como as partículas a têm energia da ordem de MeVs, o fator de amplificação usado é lxo, de modo que os elétrons e os fótons que têm energia da ordem de enas de keVs, darão origem, quando detectados, a pulsos de baixa plitude, que serão discriminados juntamente com o ruído eletrônico.

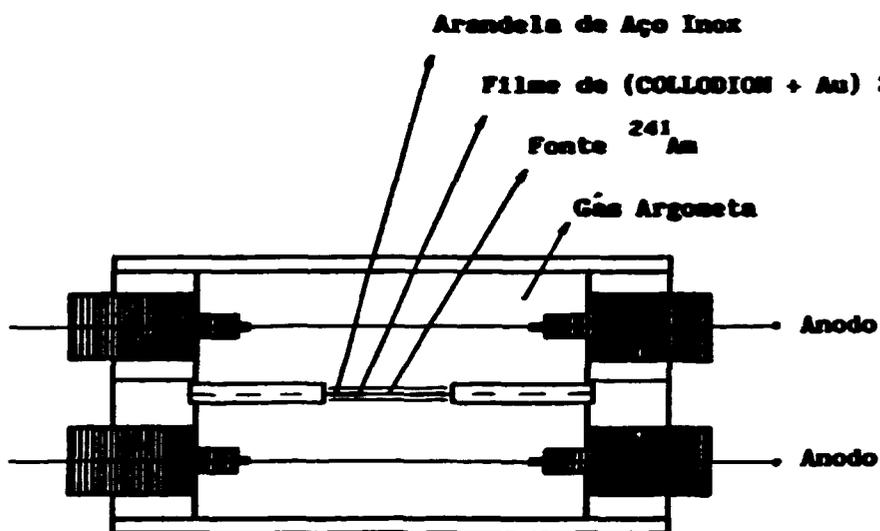


Figura III.2 Detector proporcional (PC) em geometria 4π ⁶³

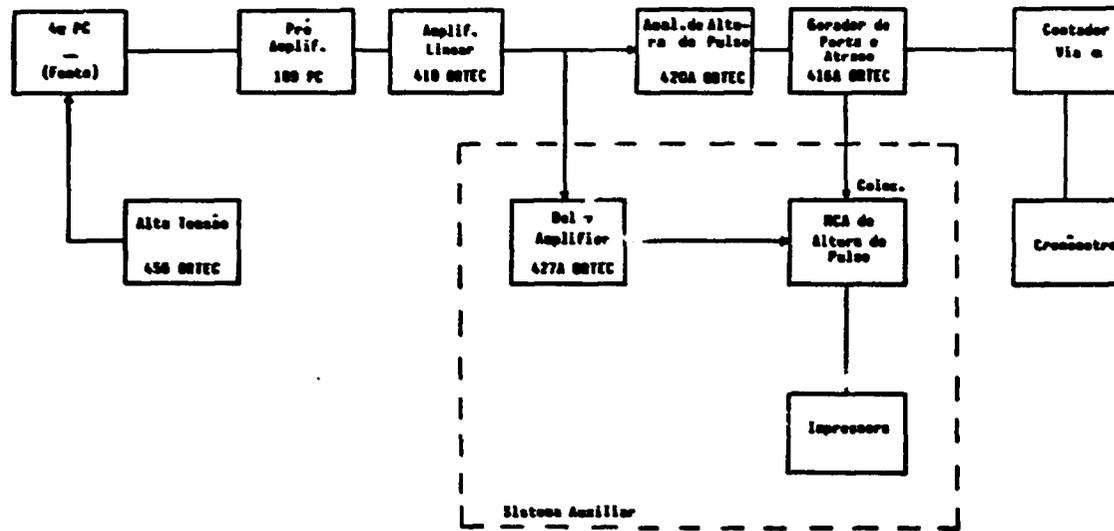


Figura III.3 Diagrama de bloco do sistema 4 π (PC) α -total, com sistema auxiliar para determinação do espectro de altura de pulso.

a) Fator de Correção para Extrapolação do Espectro para Altura de Pulso Zero

O fator de correção para extrapolação do espectro para altura de pulso zero é aplicado para corrigir a taxa de contagem total das perdas devido à discriminação eletrônica imposta pelas condições da medida⁵¹.

Este fator é determinado extrapolando-se a região do espectro constante para o nível de discriminação zero.

O fator de correção para extrapolação (C_{sp}) é determinado utilizando-se um sistema eletrônico auxiliar, apresentado na figura III.3, em que é utilizado um módulo analisador multicanal que registra o espectro de altura de pulso das partículas alfa em função das contagens.

Esse fator de correção é dado por:

$$C_S = \frac{Y_e \cdot (b-a) + \sum_{i=b}^c Y_i}{\sum_{i=b}^c Y_i} \quad (\text{III.2})$$

sendo Y_i as contagens do i -ésimo canal;

Y_e a contagem média de cinco canais adjacentes na região constante do espectro logo acima do nível de discriminação;

($b-a$) o intervalo de extrapolação;

b canal correspondente ao nível de discriminação usado;

c canal correspondente à altura de pulso máxima.

Na figura III.4 é apresentado o espectro das partículas alfa em função da altura de pulso, obtido por meio do analisador multicanal.

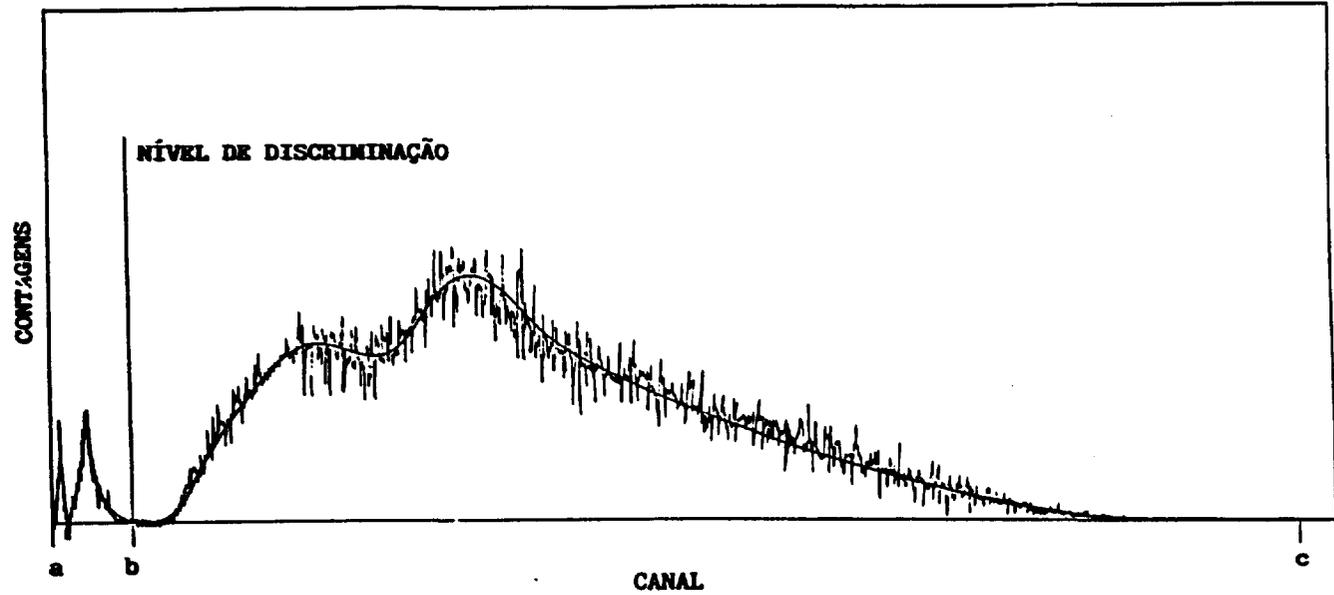


Figura III.4 Espectro alfa de altura de pulso do ^{241}Am obtido com detector $4\pi(\text{PC})$.

b) Fator de Correção para Absorção no Suporte da Fonte

O fator de correção para absorção no suporte da fonte foi estimado considerando o ângulo correspondente à absorção da partícula alfa emitida tangencialmente ao suporte. A partícula alfa emitida em um ângulo maior que este será detectada.

A figura III.5 mostra, de modo esquemático, as considerações geométricas.

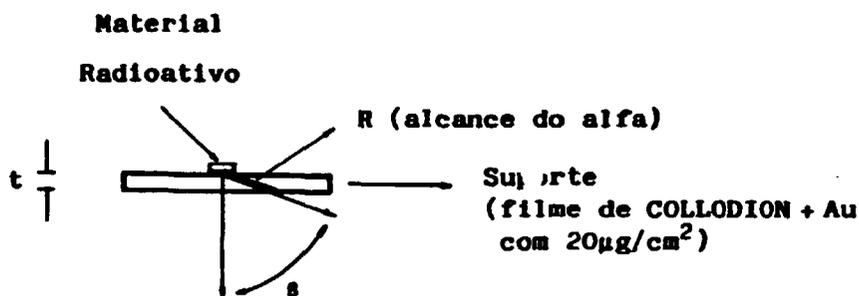


Figura III.5. Esquema ampliado da fonte radioativa em suporte de Collodion para o cálculo do fator de absorção de partículas alfa no suporte

$$\beta = \arccos\left(\frac{t}{R}\right)$$

$$f\Omega = \frac{1}{2}[1 - \cos \beta] \quad (\text{III.3})$$

$$C_{SF} = \frac{1}{0,5 + f\Omega} \quad (\text{III.4})$$

Sendo Ω o ângulo sólido, onde a partícula alfa atravessa o filme de COLLODION penetrando no volume sensível do detector proporcional;

C_{SF} é o fator de correção para a absorção no suporte.

III.1.2. Método de Coincidência 4π (BS)-NaI(Tl)

A padronização do ^{241}Am pelo sistema de medida proposto por este trabalho é feita pelo método de coincidência, utilizando-se o sistema em geometria 4π , ou seja, dois detectores de barreira de superfície para detecção da radiação alfa emitida e dois cintiladores de NaI(Tl), para detecção da radiação gama coincidente.

As considerações teóricas e o formalismo do método de coincidência foram apresentadas no capítulo I para um sistema e um nuclideo genéricos. Serão, a seguir, desenvolvidas para o ^{241}Am , em particular, considerando-se o seu esquema de decaimento e o sistema 4π (BS)-NaI(Tl) utilizado na medida.

Analisando o esquema de desintegração do ^{241}Am , apresentado na figura III.1, verifica-se que o método de coincidência pode ser utilizado na padronização, pois o principal ramo alfa, de 5,485 MeV com abundância de 85,2%, está em coincidência com a radiação gama de 59,5 keV, além dos demais ramos alfa de menor intensidade estarem, também, em coincidência, cada qual com a radiação gama emitida na deexcitação ao nível fundamental.

Desse modo, as expressões das taxas de contagens no sistema proposto serão:

$$N_{\alpha} = N_0 \left[\bar{\epsilon}_{\alpha} + (1 - \bar{\epsilon}_{\alpha}) \left[\frac{\alpha_{\alpha} \epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma}}{1 + \alpha_{\alpha}} \right] \right] \quad (\text{III.5})$$

$$N_{\gamma} = N_0 \frac{\bar{\epsilon}_{\gamma}}{1 + \alpha_{\alpha}} \quad (\text{III.6})$$

$$N_c = N_0 \left[\frac{\overline{\epsilon_\alpha \epsilon_\gamma}}{1 + \alpha_t} + (1 - \overline{\epsilon_\alpha}) \epsilon_c \right] \quad (\text{III.7})$$

sendo: N_α , N_γ , N_c as taxas de contagens corrigidas para contagem de fundo e tempo morto;

$\overline{\epsilon_\alpha}$, $\overline{\epsilon_\gamma}$ eficiências médias em um volume elementar, integradas sobre todo o volume da fonte para detecção alfa e gama, respectivamente;

$\overline{\epsilon_\alpha \epsilon_\gamma}$ produto médio das eficiências elementares;

ϵ_{ec} eficiência do detector alfa para elétrons de conversão interna;

$\epsilon_{\alpha\gamma}$ eficiência de detecção do detector alfa para radiação gama;

ϵ_c eficiência para coincidência γ - γ por espalhamento Compton;

α_t coeficiente de conversão interna total.

Das equações (III.5), (III.6) e (III.7) podemos escrever

$$\frac{N_\alpha N_\gamma}{N_c} = N_0 \frac{[\overline{\epsilon_\alpha} + (1 - \overline{\epsilon_\alpha}) \left(\frac{\alpha_t \epsilon_{ec} + \epsilon_{\alpha\gamma}}{1 + \alpha_t} \right) \overline{\epsilon_\gamma} / (1 + \alpha_t)]}{\left[\frac{\overline{\epsilon_\alpha \epsilon_\gamma}}{1 + \alpha_t} + (1 - \overline{\epsilon_\alpha}) \epsilon_c \right]} \quad (\text{III.8})$$

De acordo com os pré-requisitos do método de coincidência, algumas destas eficiências podem ser desprezadas em função das condições experimentais:

ϵ_c é considerada igual a zero em vista da medida gama ser feita somente na região de energia que corresponde ao fotopico de absorção total de 59 keV;

ϵ_{ec} e $\epsilon_{\alpha\gamma}$ são desprezíveis já que a medida da via alfa (5,4 MeV) é feita acima de um dado nível de discriminação (700 keV), de maneira que as prováveis interferências dos elétrons de conversão e da radiação gama e raio X característico com energias de 55 keV, 59,5 keV, 103 keV, respectivamente, são automaticamente discriminadas juntamente com o ruído eletrônico.

Podemos assim obter a equação (III.8) como

$$\frac{N_{\alpha} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \frac{\overline{\epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma}}}{\overline{\epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma}}} \quad (\text{III.9})$$

onde a taxa de desintegração N_0 é dada por

$$N_0 = \frac{N_{\alpha} N_{\gamma}}{N_c} \frac{\overline{\epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma}}}{\overline{\epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma}}} \quad (\text{III.10})$$

Desta equação, vemos que a taxa de desintegração N_0 depende apenas da razão das contagens observadas, multiplicadas pelo termo de eficiência $(\overline{\epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma}})/(\overline{\epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma}})$.

O termo de eficiência é igual a unidade, quando a eficiência de um dos detectores for constante em todo volume da fonte. Isto ocorre no caso do detector para radiação gama, pois a medida é feita no fotopico de absorção total e, tanto a auto-absorção do gama, como o espalhamento Compton na fonte são desprezíveis.

Assim temos:

$$\frac{\overline{\epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma}}}{\overline{\epsilon_{\alpha} \epsilon_{\gamma}}} = 1 \quad (\text{III.11})$$

Portanto,

$$N_o = \frac{N_\alpha N_\gamma}{N_c} \cdot 1 \quad (\text{III.12})$$

Como podemos ver da equação (III.12), a taxa de desintegração N_o , depende apenas das contagens observadas.

Para comprovação das considerações teóricas apresentadas, foi aplicada a técnica de extrapolação linear da eficiência variando-se a eficiência de detecção alfa, através da variação da razão entre as contagens de coincidência e as contagens gama - o chamado parâmetro de eficiência - em função da eficiência alfa.

Desse modo

$$\epsilon_\alpha = F\left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right) \quad (\text{III.13})$$

e

$$N_\alpha = N_o F\left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right) \quad (\text{III.14})$$

Como as energias das partículas alfa são próximas, quando a eficiência para uma delas tender à unidade, as eficiências para as demais também tenderão.

Portanto, quando

$$\epsilon_\alpha \rightarrow 1 \quad \text{teremos} \quad \frac{N_c}{N_\gamma} \rightarrow 1$$

de maneira que

$$\text{quando } \frac{N_c}{N_\gamma} \rightarrow 1 \quad \text{teremos } F\left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right) \rightarrow 1$$

$$\text{e } N_\alpha \rightarrow N_0$$

De modo que, para se obter o valor da taxa de desintegração N_0 , determina-se experimentalmente a função de eficiência F .

A equação (II.14) pode ser posta em forma mais conveniente para sua solução gráfica ou analítica. Usando-se a razão $(N_\alpha N_\gamma)/N_c$ como variável dependente e $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ como parâmetro variável, obtém-se uma função de eficiência G , cuja variação é mais lenta do que a da função F .

Assim, podemos reescrever a equação (III.14) de modo mais conveniente como:

$$\frac{N_\alpha N_\gamma}{N_c} = N_0 G\left(\frac{1-N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma}\right) \quad (\text{III.15})$$

onde $G \rightarrow 1$ quando $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma) \rightarrow 0$ e

$$\frac{N_\alpha N_\gamma}{N_c} \rightarrow N_0$$

O termo $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ é também conhecido como "parâmetro de ineficiência".

Para o sistema de coincidência proposto, a função G a ser determinada deverá ser uma reta com inclinação zero, o que demonstra que o fator de variação da eficiência é apenas geométrico.

III.1.2.1. Aplicação da Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência na Padronização do ^{241}Am

A variação da eficiência para aplicação do método de extrapolação no sistema $4\pi(\text{PC})\beta\text{-}\gamma$ é, em geral, feita pelo uso de absorvedores externos colocados sobre a fonte .

Na medida absoluta do ^{241}Am pelo sistema $4\pi(\text{BS})\text{-NaI}(\text{Tl})$, foram usados dois métodos de variação da eficiência: o método convencional de variação da eficiência pelo uso de absorvedores externos denominado "Método A", e o método de variação da eficiência, pela variação da distância entre a fonte e o detector alfa, denominado "Método B".

a) Método A:

Variação da eficiência alfa é feita variando-se o parâmetro de eficiência N_c/N_γ pelo uso de absorvedores, que são colocados sobre a fonte radioativa, de modo a diminuir a eficiência pela absorção dos alfas de menor energia.

Inicialmente, foram usados filmes de COLLODION, do mesmo tipo usado para variar a eficiência beta em detectores proporcionais, mas em vista da energia mais alta da partícula alfa, a variação foi muito pequena (com filmes de $15\mu\text{g}/\text{cm}^2$ de espessura). Foram, então, usados filmes plásticos mais espessos.

O parâmetro de eficiência foi variado no intervalo de 70 a 30% usando filmes de:

- Makrofol (policarbonato) de aproximadamente $2\mu\text{m}$ e $3\mu\text{m}$ de espessura, combinados entre si;
- Mylar (policarbonato) de aproximadamente $8\mu\text{m}$ de espessura combinados entre si;
- Alumínio de aproximadamente $2500\mu\text{m}$ para o valor mais baixo da eficiência.

Os filmes foram colocados de modo a formar um sanduíche com a fonte no meio.

Foi mantida uma distância fixa de 5,5 mm entre a fonte e o detector, o que permitiu a troca de absorvedores sem o deslocamento dos detectores, para evitar que outros fatores interferissem na variação da eficiência.

Os resultados obtidos no método A são apresentados na tabela III.2.

Para determinação do valor extrapolado, foi construído um gráfico de $(N_{\alpha}N_{\gamma})/N_c$ versus o parâmetro da ineficiência $(1-N_c/N_{\gamma})/(N_c/N_{\gamma})$, de modo a determinarmos a função G que relaciona $(N_{\alpha}N_{\gamma})/N_c$ com N_0 .

A figura III.6 mostra o gráfico da variação da eficiência pelo método A, onde os pontos são os valores experimentais com suas barras de erro e a linha cheia é a reta ajustada aos pontos experimentais.

Os parâmetros da curva foram obtidos pelo método de mínimos quadrados com o programa S.A.S.¹¹.

Da análise de variância apresentada na tabela III.3., pode-se observar que o valor F da distribuição de Snedecor-Fisher¹¹, que testa a hipótese de não haver regressão, indica que esta é confirmada com uma probabilidade de 0,8919.

Analisando o valor T da distribuição de Student¹¹, que testa a hipótese do parâmetro ser zero, individualmente, observa-se que o parâmetro em \bar{x} é zero com probabilidade de 0,8919. Indicando, assim, que a inclinação da reta é zero, como esperado.

Pode-se concluir, portanto, que o valor de N_0 deve ser a média dos valores determinados.

Tabela III.2

	$\frac{N_N}{\alpha_Y}$	σ	$\frac{N_C}{N_Y}$	$\frac{1-N_C/N_Y}{N_C/N_Y}$	σ	EFF_Y
	(KBq/g)	(%)			(%)	
1	150,76	0,09	0,7017	0,425	0,21	0,0325
2	150,11	0,11	0,7002	0,428	0,23	0,0322
3	150,41	0,26	0,691	0,448	0,33	0,0314
4	150,47	0,15	0,688	0,454	0,28	0,0327
5	150,23	0,07	0,657	0,521	0,13	0,0329
6	150,32	0,11	0,641	0,561	0,18	0,0323
7	150,01	0,15	0,623	0,606	0,21	0,0328
8	150,28	0,08	0,543	0,641	0,12	0,0318
9	149,88	0,18	0,515	0,777	0,20	0,0330
10	150,52	0,16	0,477	0,841	0,16	0,0328
11	150,45	0,25	0,376	0,943	0,27	0,0321
12	149,68	0,22	0,373	1,096	0,20	0,0329
13	150,04	0,19	0,376	1,663	0,11	0,0329
14	150,78	0,13	0,373	1,679	0,08	0,0311
15	149,97	0,20	0,269	2,718	0,07	0,0329
16	150,55	0,28	0,268	2,729	0,10	0,0329

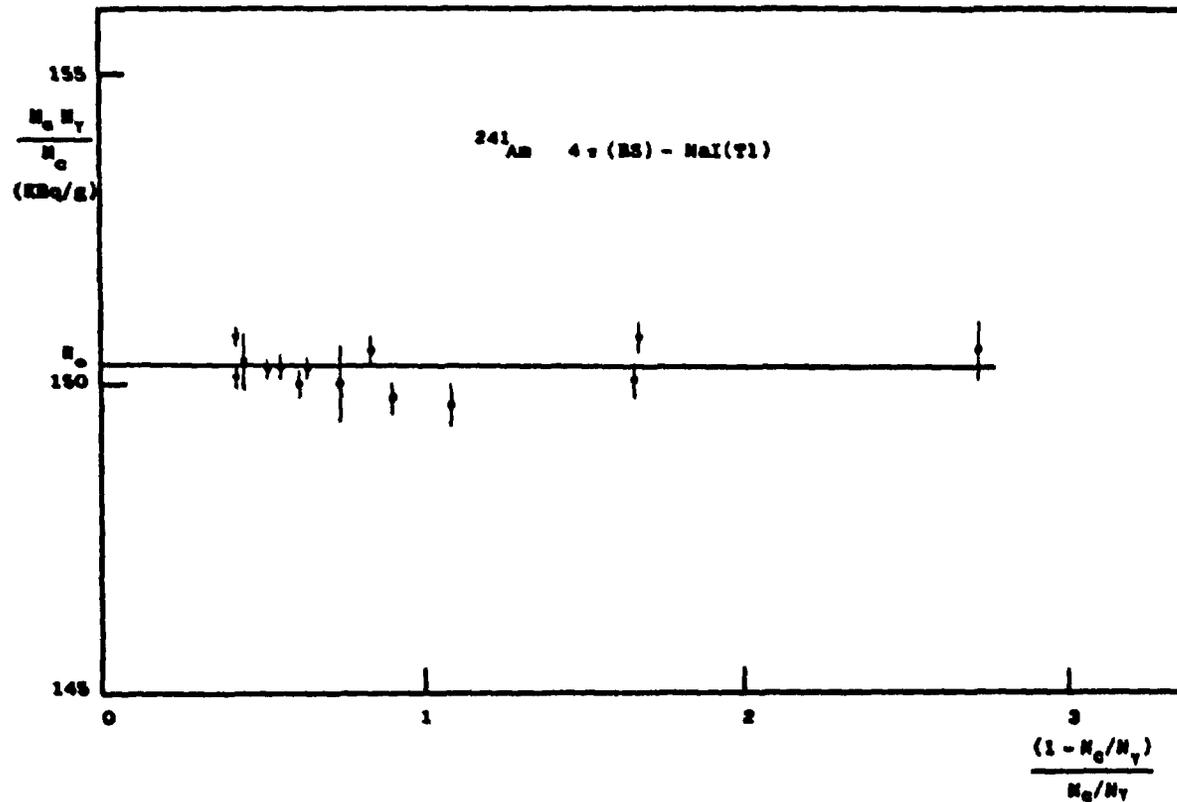


Figura III.6 Variação da razão das contagens $\frac{N_\alpha N_\gamma}{N_c}$ em função do parâmetro de ineficiência, obtido pelo uso de absorvedores externos, para o ^{241}Am .

Tabela III.3

Análise da Variância					
Fonte de Variação	Graus de Liberdade	Soma dos Quadrados	Quadrado Médio	Valor F	Prob>F
Devida à Regressão	1	0,04232	0,0423	0,019	0,8919
Resíduo	14	30,9617	2,2116		
Total	15	31,004			

	Valor Estimado	Desvio Padrão	TpHO: Parâmetro=0	Prob> T
Intercepto	150,33	0,12	1205	0,0001
x	- 0,0189	0,137	- 0,138	0,8919

Os resultados obtidos demonstram que as considerações teóricas estão corretas, isto é, a taxa de desintegração absoluta é apenas função das contagens observadas, e que a inclinação da reta é zero, dentro do erro experimental.

b) Método B:

Método da variação da eficiência alfa pela variação da distância fonte-detector alfa, é o método proposto por este trabalho, como método a ser adotado para variação da eficiência alfa. A aplicação deste método no presente trabalho tem três objetivos: demonstrar a validade das equações teóricas deduzidas, demonstrar a praticidade do arranjo proposto e demonstrar que mesmo não sendo reproduzida, a

distância fonte-detector, esta não tem influência no resultado final, que é compensado na razão N_c/N_γ .

A eficiência alfa foi variada no intervalo de 70 a 30%, sendo a distância máxima de 1,5 cm, que permitiu um bom intervalo de variação, além de manter a eficiência gama aproximadamente constante, pois quase não foi alterado o ângulo sólido compreendido pelo detector de cintilação, mantido fixo.

A tabela III.4 mostra os valores obtidos para a variação da distância fonte-detector.

O gráfico de $(N_c/N_\gamma)/N_c$ versus o parâmetro de ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ é apresentado na figura III.7.

Os dados foram ajustados do mesmo modo que no método A, por ajuste de mínimos quadrados.

Os parâmetros do ajuste são apresentados juntamente com a análise da variância na tabela III.5.

Como podemos observar, também neste caso, a inclinação é zero dentro do erro experimental, comprovando mais uma vez as considerações teóricas.

Tabela III.4

Posição*	$\frac{N_c N_\gamma}{N_c/g}$	σ (%)	$\frac{N_c}{N_\gamma}$	$\frac{1-N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma}$	σ (%)	Efi_γ
1	150,48	0,15	0,668	0,454	0,33	0,0332
2	150,49	0,12	0,633	0,579	0,19	0,0330
3	150,49	0,20	0,597	0,675	0,30	0,0326
4	150,16	0,16	0,551	0,815	0,18	0,0324
5	150,31	0,18	0,521	0,919	0,18	0,0323
6	150,56	0,25	0,492	1,032	0,19	0,0324
7	150,53	0,22	0,465	1,153	0,17	0,0323
8	150,32	0,26	0,443	1,259	0,20	0,0323
9	150,39	0,25	0,409	1,445	0,17	0,0324
10	150,27	0,34	0,384	1,603	0,21	0,0323

* A posição corresponde à distâncias relativas.

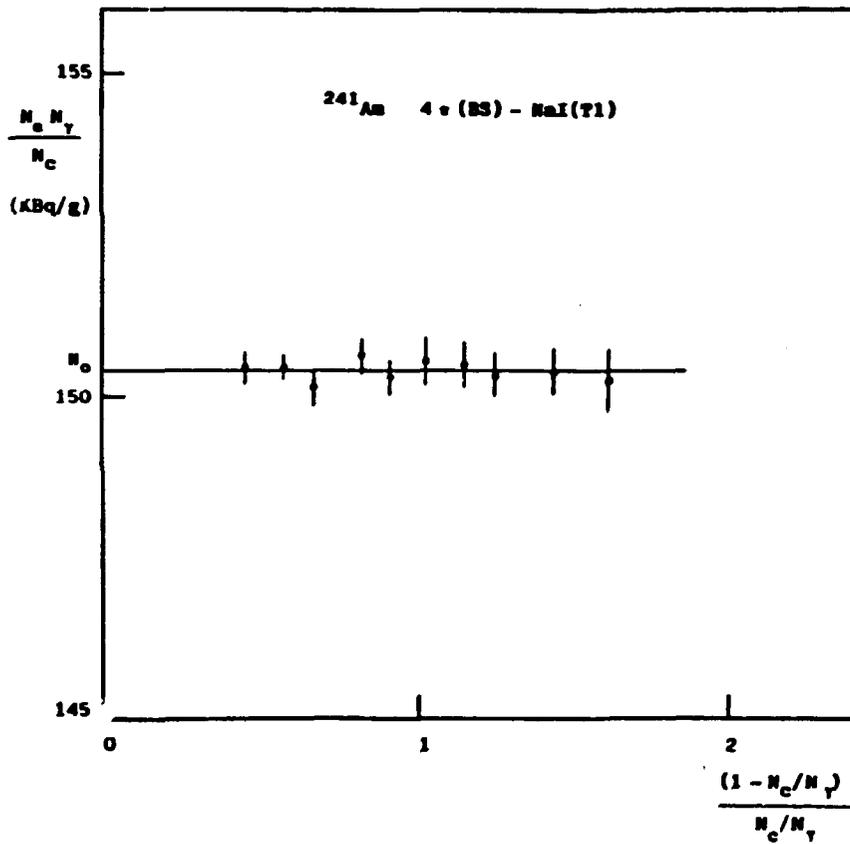


Figura III.7 Variação da razão das contagens $\frac{N_\alpha N_\gamma}{N_c}$ em função do parâmetro de ineficiência, obtido pela variação da distância fonte-detector, para o ^{241}Am .

Tabela III.5

Análise da Variância					
Fonte de Variação	Graus de Liberdade	Soma dos Quadrados	Quadrado Médio	Valor F	Prob>F
Devida à Regressão	1	0,07074	0,07074	0,237	0,6394
Resíduo	8	2,3869	0,2984		
Total	9	2,4577			

Variáveis	Parâmetro Estimado	Desvio Padrão	Tp/H0: Param=0	Prob>F
Intercepto	150,51	0,14	1109	0,0001
x	- 0,075	0,15	- 0,487	0,6394

Na figura III.8 é apresentada uma curva de extrapolação da eficiência pelo método de variação da distância fonte detector para um intervalo maior de variação, de 69 a 18%. Os pontos cheios representam os pontos experimentais com sua barra de erro e a reta contínua, o valor ajustado pelo método de mínimos quadrados pelo programa de ajuste polinomial SAS¹¹. Na tabela III.6 é apresentada a análise de variância fornecida pelo referido programa, juntamente com os parâmetros da reta.

Por esta curva, podemos ver que, mesmo para valores baixos de eficiência, que correspondem a distâncias fonte-detector maiores a inclinação é zero, de acordo com as considerações teóricas.

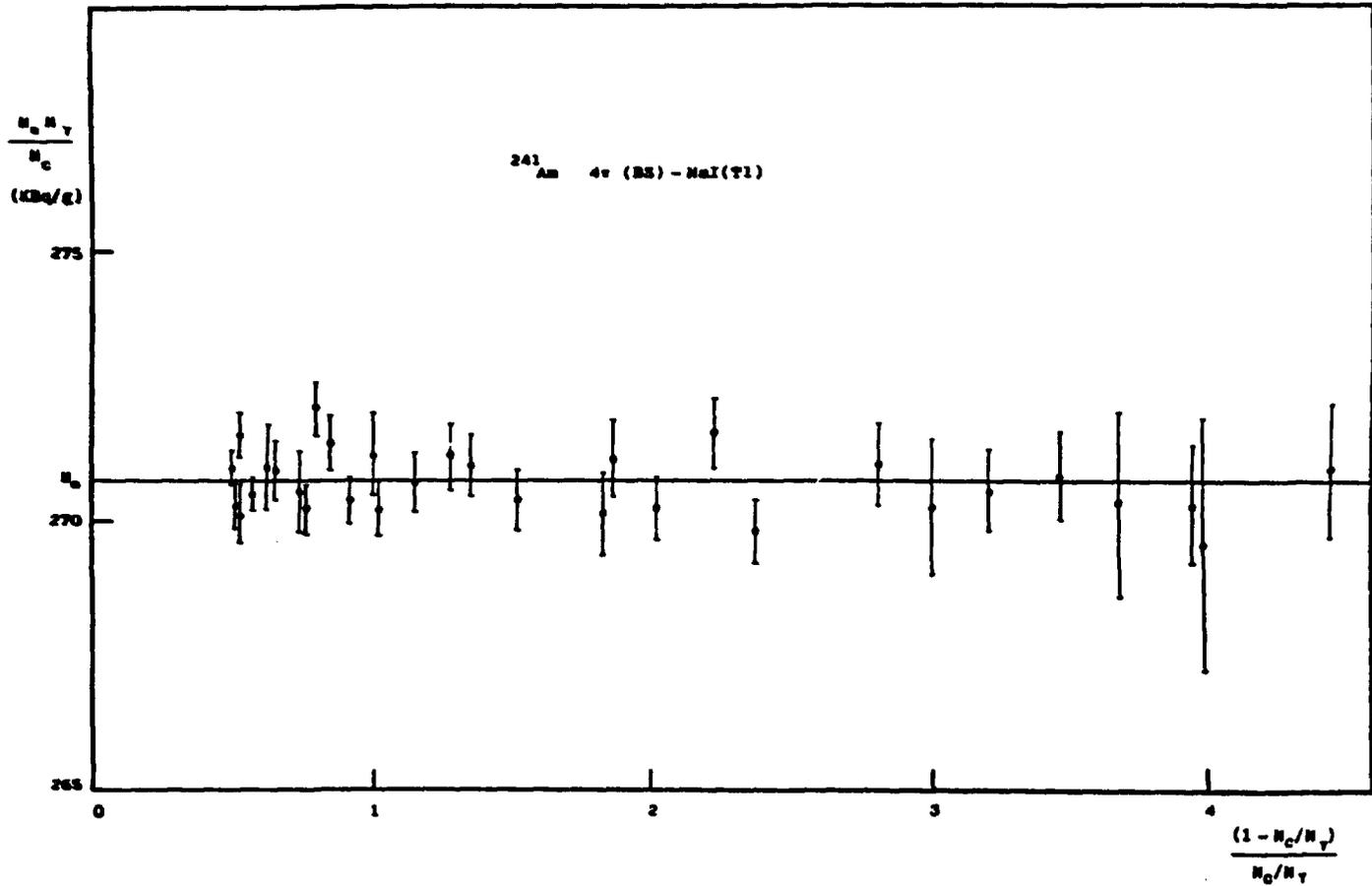


Figura III.8 Variação da razão das contagens $\frac{N_c}{N_\gamma}$ em função do parâmetro de ineficiência, obtido pela variação da distância fonte-detector para o ^{241}Am .

Tabela III.6

Análise de Variância					
Fonte de Variação	Graus de Liberdade	Soma dos Quadrados	Quadrado Médio	Valor F	Prob>F
Devida à Regressão	1	0,0638	0,0638	0,093	0,7626
Resíduo	28	19,2015	0,6858		
Total	29	19,2653			

Variáveis	Parâmetro Estimado	Desvio Padrão	Tp/H0: Param=0	Prob>F
Intercepto	270,66	0,14	1873	0,0001
x	0,029	0,09	0,305	0,7626

III.1.2.2. Método de Coincidência 2π (BS)-NaI(Tl)

A medida absoluta do ^{241}Am foi feita, também, utilizando-se o sistema de coincidência em geometria 2π , com um detector de barreira de superfície e um cintilador NaI(Tl) para detecção gama.

As considerações teóricas são as mesmas do sistema em geometria 4π apresentado na seção III.1.2.

As medidas foram feitas variando-se a eficiência pelo método B.

Os valores obtidos foram normalizados e comparados com a medida feita no sistema 4π . Na figura III.9 é apresentada a curva de $(N_a N_\gamma) / N_o N_c$ versus $(1 - N_c / N_\gamma) / (N_c / N_\gamma)$. Os pontos cheios representam as medidas com sistema 4π (BS)-NaI e os pontos vazios representam as medidas com sistema 2π (BS)-NaI.

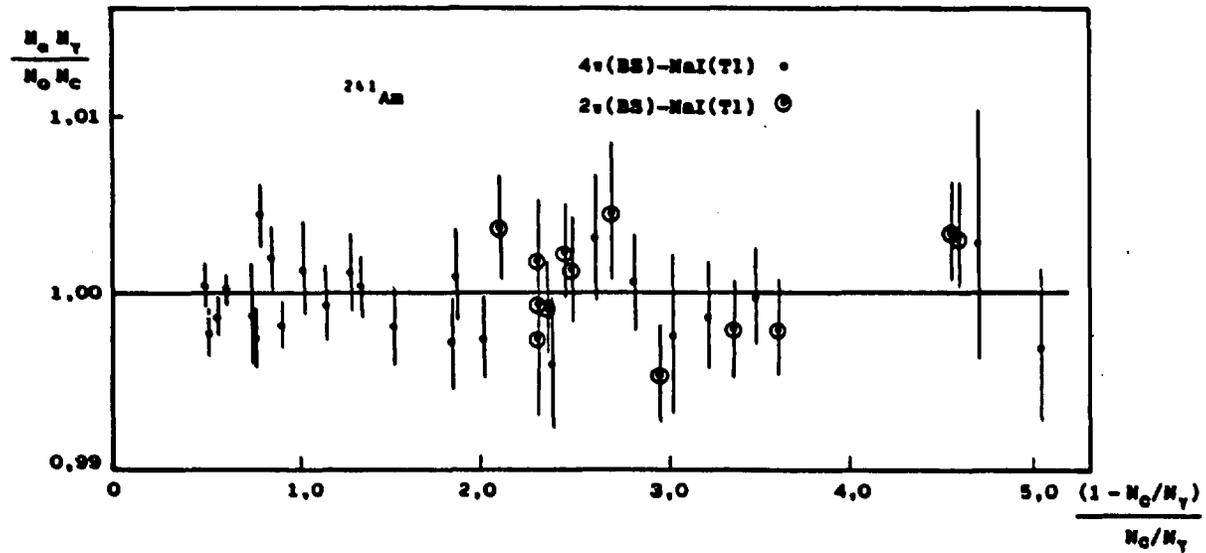


Figura III.9 Comparação dos resultados normalizados das medidas da atividade de ^{241}Am nos sistemas 4π BS - NaI(Tl) e 2π BS - NaI(Tl) em função do parâmetro de ineficiência.

Como podemos verificar, as medidas no sistema 2π são concordantes com as do sistema 4π , o que demonstra que mesmo em geometria 2π o método é válido, possibilitando a sua utilização para calibração de fontes em suportes espessos, como é o caso das fontes eletrodepositadas.

III.1.3. Resultados da Padronização do ^{241}Am

Os resultados obtidos na padronização do ^{241}Am no sistema convencional $4\pi(\text{PC})\alpha_{\text{total}}$ são apresentados na tabela III.7 juntamente com os fatores de correção para extrapolação de espectro e para absorção no suporte da fonte, descritos no item III.1.1.2.

Tabela III.7

Sistema $4\pi(\text{PC})$	Atividade Específica (KBq/g)
^{241}Am	$150,5 \pm 0,3$
Fatores de Correção	
C_{sp}	$0,15 \pm 0,15$
C_{sf}	$0,15 \pm 0,15$

A incerteza total é a combinação quadrática das incertezas sistemáticas e estatísticas.

As incertezas sistemáticas consideradas foram:

incerteza na correção de tempo morto;
 incerteza na correção de espectro;
 incerteza na correção de absorção no suporte;
 incerteza na pesagem (massa).

Os resultados da padronização do ^{241}Am no sistema $4\pi(\text{BS})\text{-NaI}(\text{Tl})$ pelos dois métodos de variação de eficiência, são apresentados na tabela III.8. Como citado no item III.1.2.1, a taxa de desintegração é obtida pela média ponderada das medidas, pois para os dois métodos, a inclinação da reta é zero dentro do erro experimental.

As taxas de contagens no sistema $4\pi(\text{BS})\text{-NaI}$, nas vias de detecção usadas, foram da ordem de 3000s^{-1} a 1000s^{-1} para via alfa, de 150s^{-1} para via gama e de 100s^{-1} a 40s^{-1} para via de coincidência. Os tempos de contagem variaram de 700s a 4000s no intervalo de eficiências medidas. As taxas de radiação de fundo para a via gama foi de $1,7\text{s}^{-1}$; nas outras vias é desprezível (via alfa - $6 \times 10^{-3}\text{s}^{-1}$ e na via de coincidência é igual a zero).

As massas das fontes utilizadas variaram de 10 mg a 30 mg.

Tabela III.8

$4\pi(\text{BS})\text{-NaI}(\text{Tl}) - ^{241}\text{Am}$	
Método	Atividade Específica
A	$(150,3 \pm 0,3) \text{ KBq/g}$
B	$(150,5 \pm 0,3) \text{ KBq/g}$

As incertezas foram determinadas como na medida em sistema convencional.

As incertezas sistemáticas consideradas foram:

incerteza na correção de tempo morto;
incerteza no tempo de resolução;
incerteza na massa;
incerteza na radiação de fundo.

A incerteza estatística considerada foi o desvio padrão da média.

III.2. Padronização de Nuclídeos Metaestáveis pelo Sistema de Coincidência 2π BS - NaI(Tl)

A padronização de nuclídeos metaestáveis é feita geralmente pelo método de coincidência aplicado a duas radiações que possam ser consideradas simultâneas.

Para nuclídeos que se desexcitam por conversão interna, a coincidência é feita entre o elétron proveniente do processo de conversão interna e o fóton X associado.

O processo de conversão interna compete com a emissão da radiação gama na deexcitação do nível metaestável e ocorre com maior probabilidade quando o momento angular transferido da transição é alto, nestes casos diz-se que a transição é fortemente convertida.

Na conversão interna, o núcleo transfere a energia de deexcitação do nível diretamente a um elétron orbital que é ejetado do átomo com energia igual a energia de deexcitação do nível menos a sua energia de ligação. Ao ser ejetado, o elétron provoca uma vacância nas camadas eletrônicas. Esta vacância é preenchida pelo deslocamento de um elétron de um nível menos ligado em direção ao nível onde se produziu a vacância. Este rearranjo se traduz pela emissão de um fóton X (transferência de energia sob forma de uma radiação eletromagnética) ou de um elétron Auger (transferência de energia a um elétron pouco ligado).

Um elétron ejetado da camada K provoca a produção de um fóton X_K ou de um elétron Auger K. Se for ejetado um elétron da camada L teremos a produção de um fóton X_L ou de um elétron Auger L e assim por diante.

Este rearranjo é feito em um tempo menor que 10^{-9} s de modo que o elétron K, L, M, etc, e o fóton X_K ou X_L etc. podem ser considerados simultâneos dentro do tempo de resolução adotado no experimento.

III.2.1. Padronização do ^{137}Cs

O ^{137}Cs é um radionuclídeo emissor beta, que se desintegra com uma probabilidade de 94.6% para o nível metaestável de 661,6 keV do ^{137m}Ba e com 5,4% de probabilidade para o nível fundamental do ^{137}Ba .

O ^{137m}Ba , por sua vez, se deexcita com meia-vida de 2,55 min, por emissão de fótons gama ou por conversão interna com um coeficiente de conversão total de 0,1104. Na figura III.10 é mostrado o esquema de desintegração do $^{137}\text{Cs}^{21}$ e na tabela III.9 são apresentadas as energias e intensidades absolutas dos vários tipos de radiação que compõem o esquema de desintegração.

A padronização do ^{137}Cs é em geral feita pelo método de coincidência em sistema $4\pi(\text{PC}) - \text{NaI}(\text{Tl})$ pela técnica do traçador⁵⁹, apresentada no item I.1.2.1.1. Este método apresenta incertezas da ordem de 0,2%, mas é um método muito trabalhoso e demorado pois depende de outro radionuclídeo emissor β - γ previamente padronizado.

No presente trabalho, a padronização do ^{137}Cs foi feita pelo método de coincidência aplicado ao sistema proposto utilizado em geometria 2π .

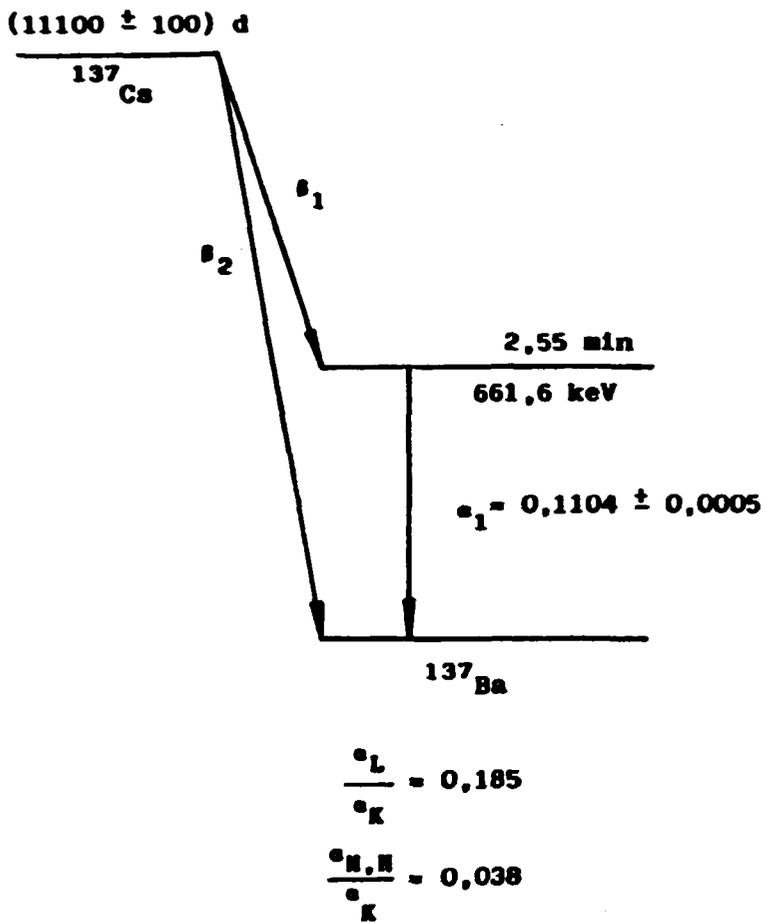


Figura III.10 Esquema de desintegração do ^{137}Cs .^{21,56}

Tabela III.9.

Emissão beta

	Energia Máxima ²¹ keV	Intensidade ²¹ Absoluta %
β_1	514,03 \pm 0,023	94,61 \pm 0,23
β_2	1176 \pm 1	5,32

Emissão fotônica

	Energia ⁵⁶ keV	Intensidade ⁵⁶ Absoluta %
X _L	4,47	1,25 \pm 0,01
X _K	32,88	6,88 \pm 0,04
γ	661,64 \pm 0,08	84,6 \pm 0,4

Emissão eletrônica

	Energia ⁵⁶ keV	Intensidade ⁵⁶ Absoluta %
e _{AL}	3,67	7,10 \pm 0,04
e _{AK}	26,42	0,85 \pm 0,01
e _{CK}	624,20 \pm 0,08	7,78 \pm 0,04
e _{CL}	655,65 \pm 0,08	1,44 \pm 0,03
e _{CMN}	660,35 \pm 0,08	0,30 \pm 0,06

A solução utilizada foi uma solução fornecida pelo BIPM (Bureau International des Poids et Mesures), com o propósito de servir em comparações internacionais entre diversos laboratórios do mundo. Os valores usados para avaliação do resultado da atividade obtida pelo presente trabalho, foram os valores médios de resultados entre os vários laboratórios⁷¹.

III.2.1.1. Padronização do ^{137}Cs pelo Sistema $2\pi\text{BS-NaI(Tl)}$

Na medida do ^{137}Cs pelo sistema de coincidência $2\pi\text{BS-NaI(Tl)}$, as medidas foram feitas utilizando o detector de barreira de superfície para detecção do elétron de conversão e o detector de NaI(Tl) de janela fina para detecção do fóton X_K associado à ejeção do elétron K.

Analisando o esquema de decaimento do ^{137}Cs , apresentado no item anterior, podemos deduzir as equações envolvidas no sistema de coincidência e-X.

Na via de elétrons, temos

$$N_e = N_0 P_{1\epsilon_{ecK}} \quad (\text{III.16})$$

sendo N_e taxa de contagem de elétron de conversão corrigida para tempo morto e contagem de fundo;

e $P_{1\epsilon_{ecK}}$ é a probabilidade de detectar o elétron ejetado da camada K, L, M, N, etc, proveniente de eventos de conversão interna.

$$P_{1\epsilon_{ecK}} = \frac{\alpha_t \alpha_K}{1 + \alpha_t \alpha_t} \left[(1 - \epsilon_{ecK})^{(x,A)K} + \frac{(\alpha_t - \alpha_K)}{\alpha_t} \epsilon_{ecL.M.N.} (1 - \epsilon_{(x,A)L.M.N}) \right. \\ \left. + \frac{\alpha_K}{\alpha_t} (1 - \epsilon_{ecK})^{(x,A)K} + \frac{\alpha_t - \alpha_K}{\alpha_t} (1 - \epsilon_{ecL.M.N.})^{(x,A)} \right] \quad (\text{III.17})$$

sendo a	a probabilidade de desintegração do ramo beta para o nível metaestável;
α_t	coeficiente de conversão interna total;
α_K	coeficiente de conversão interna da camada K;
ϵ_{ecK}	eficiência de detecção do detector de barreira para elétron ejetado do nível K proveniente de evento de conversão interna;
$\epsilon_{ecL,M,N}$	eficiência de detecção do detector de barreira para elétrons ejetados dos níveis L, M, N, etc. provenientes da conversão interna;
$\epsilon_{(X,A)K}$	eficiência de detecção do detector de barreira para elétrons Auger K ou fótons X_K associados ao nível K;
$\epsilon_{(X,A)L,M,N}$	eficiência de detecção do detector de barreira para elétrons Auger L,M,N ou fótons $X_{L,M,N}$ associados aos níveis L,M,N, etc..

Este fator pode ser simplificado em função das condições experimentais em que é feita a medida.

Podemos escrever

$$P_1 \epsilon_{ecK} = a \frac{\alpha_t \alpha_K}{1 + \alpha_t \alpha_t} \left[\frac{\epsilon_{ecK}}{\alpha_t} + \frac{(\alpha_t - \alpha_K)}{\alpha_t} \epsilon_{ecL,M,N} \right] \quad (III.18)$$

Os termos em $\epsilon_{(X,A)}$ são cancelados pois a medida da taxa de elétrons é feita no intervalo de 550 keV a 705 keV. Os elétrons Auger e os fótons X têm energias menores (ver tabela III.9) e por isso são discriminados eletronicamente.

Da equação (III.18) podemos obter o valor da constante P_1

$$P_1 = a \frac{\alpha_t \alpha_K}{1 + \alpha_t \alpha_t} \left[\frac{\epsilon_{ecL,M,N}}{\alpha_t} + \frac{(\alpha_t - \alpha_K)}{\alpha_t} \frac{\epsilon_{ecL,M,N}}{\epsilon_{ecK}} \right] \quad (III.19)$$

onde

$$\left[\frac{\alpha_K}{\alpha_t} + \frac{(\alpha_t - \alpha_K)}{\alpha_t} \frac{\epsilon_{ecL.M.N.}}{\epsilon_{ecK}} \right] = f_\epsilon$$

sendo f_ϵ fator de correção para a razão das eficiências $\epsilon_{ecL.M.N.}/\epsilon_{ecK}$ determinado experimentalmente e descrito no item III.2.1.1.1.c.

Na via de detecção dos fótons X temos:

$$N_{XK} = N_0 P_2 \epsilon_{XK} \quad (III.20)$$

com $P_2 \epsilon_{XK}$ a probabilidade de detecção no cintilador, dos fótons X provenientes dos eventos de conversão interna;

N_{XK} a taxa de contagens de fótons X_K corrigida para tempo morto e contagem de fundo.

$$P_2 \epsilon_{XK} = a \frac{\alpha_K}{1 + \alpha_t} W_K \epsilon_{XK} \quad (III.21)$$

sendo W_K rendimento de fluorescência na camada K (é a probabilidade de que o preenchimento de uma vacância na camada K seja acompanhado da emissão de um fóton X_K)

ϵ_{XK} eficiência de detecção do cintilador para fótons X_K .

Na via de coincidência temos:

$$N_c = N_0 P_2 \epsilon_{XK} \epsilon_{ecK} \quad (III.22)$$

onde

$$P_2 = a \frac{\alpha_K}{1 + \alpha_t} W_Y \quad (III.23)$$

Das equações (III.21) e (III.22) temos que

$$\frac{N_c}{N_x} = \epsilon_{ec} K \quad (\text{III.24})$$

Assim a equação (III.16) poderá ser escrita como

$$\frac{N_e N_x}{N_c} = N_o P_1 \quad (\text{III.25})$$

De onde obteremos a taxa de desintegração N_o como

$$N_o = \frac{N_e N_x}{N_c} \cdot \frac{1}{P_1} \quad (\text{III.26})$$

Quando a razão N_c/N_x tender à unidade, então $\epsilon_{ec} K$ tenderá à unidade e teremos:

$$N_o = N_e \frac{1}{P_1} \quad (\text{III.27})$$

Analisando a equação (III.26) vemos que com apenas uma medida em coincidência podemos obter a taxa de desintegração N_o . Entretanto, como o parâmetro de eficiência N_c/N_x depende apenas da eficiência geométrica, foram feitas medidas variando-se este parâmetro, através da variação da distância fonte-detector, para verificarmos uma possível dependência com a distância e determinarmos por extrapolação do parâmetro de eficiência à unidade o valor de N_o .

Podemos então escrever, aplicando o formalismo usado no método de extrapolação linear da eficiência para padronização do ^{241}Am , que

$$\frac{N_e N_x}{N_c} = N_0 P_1 G\left(\frac{1 - N_c/N_x}{N_c/N_x}\right) \quad (\text{III.28})$$

onde a função G nos dá a dependência do parâmetro de ineficiência com a distância fonte-detector. De maneira que:

$$G\left(\frac{1 - N_c/N_x}{N_c/N_x}\right) \rightarrow 1 \text{ quando } \frac{1 - N_c/N_x}{N_c/N_x} \rightarrow 0$$

III.2.1.1.1. Fatores de Correção Envolvidos na Medida do ^{137}Cs

A medida da taxa de desintegração do ^{137}Cs pelo sistema de coincidência não é obtida diretamente das taxas de contagem observadas, pois há fatores interferentes devidos ao esquema de desintegração que devem ser corrigidos antes da aplicação da equação (III.28). Estes fatores ocorrem tanto na via de detecção de elétrons como na via de detecção dos fótons X_γ e são considerados como uma contagem de fundo proveniente da própria fonte.

a) Fator de correção para radiação beta

Analisando o esquema de desintegração do ^{137}Cs , vemos que além de decair para o nível metaestável por emissão de uma radiação beta de 512 keV, esse radionuclídeo emite uma radiação beta de 1174 keV diretamente para o estado fundamental do ^{137}Ba , esta última não é coincidente com nenhuma outra desintegração, mas, no entanto, devido à característica do decaimento beta, temos betas com energia variável de zero até essa energia máxima, de modo que os betas emitidos com energia na faixa selecionada para os elétrons serão contados e irão contribuir na via de elétrons, como uma contagem de fundo. Esta contagem será denominada radiação beta, de modo a não confundí-la com a radiação de

fundo proveniente do ambiente e de raios cósmicos.

A figura III.11 mostra um espectro típico obtido dos detectores de barreira de superfície. Este espectro inclui as contagens produzidas pela radiação beta, além das contagens produzidas por elétrons de conversão K, L, M, etc..

As contagens devidas à detecção dos betas na região selecionada para elétrons foram estimadas determinando-se uma função que represente a contribuição beta nessa região.

A função usada foi

$$\ln y = a + cx^2 \quad (\text{III.29})$$

Os parâmetros foram obtidos por ajuste dos dados experimentais na região do espectro acima da janela usada. O ajuste foi feito pelo método de mínimos quadrados utilizando-se o programa SAS¹¹.

A escolha da equação (III.29) para cálculo da contribuição dos betas de energia mais alta, na região selecionada para medida dos elétrons de conversão, foi feita através do "Teste de Regressão Polinomial", que nos permite estabelecer o grau do polinômio mais conveniente que se ajusta melhor a todos os pontos.

Na tabela III.10 são apresentadas as análises de variância feitas para os polinômios $\ln y = a+bx$, $\ln y = a+bx+cx^2$ e $\ln y = a+cx^2$, respectivamente.

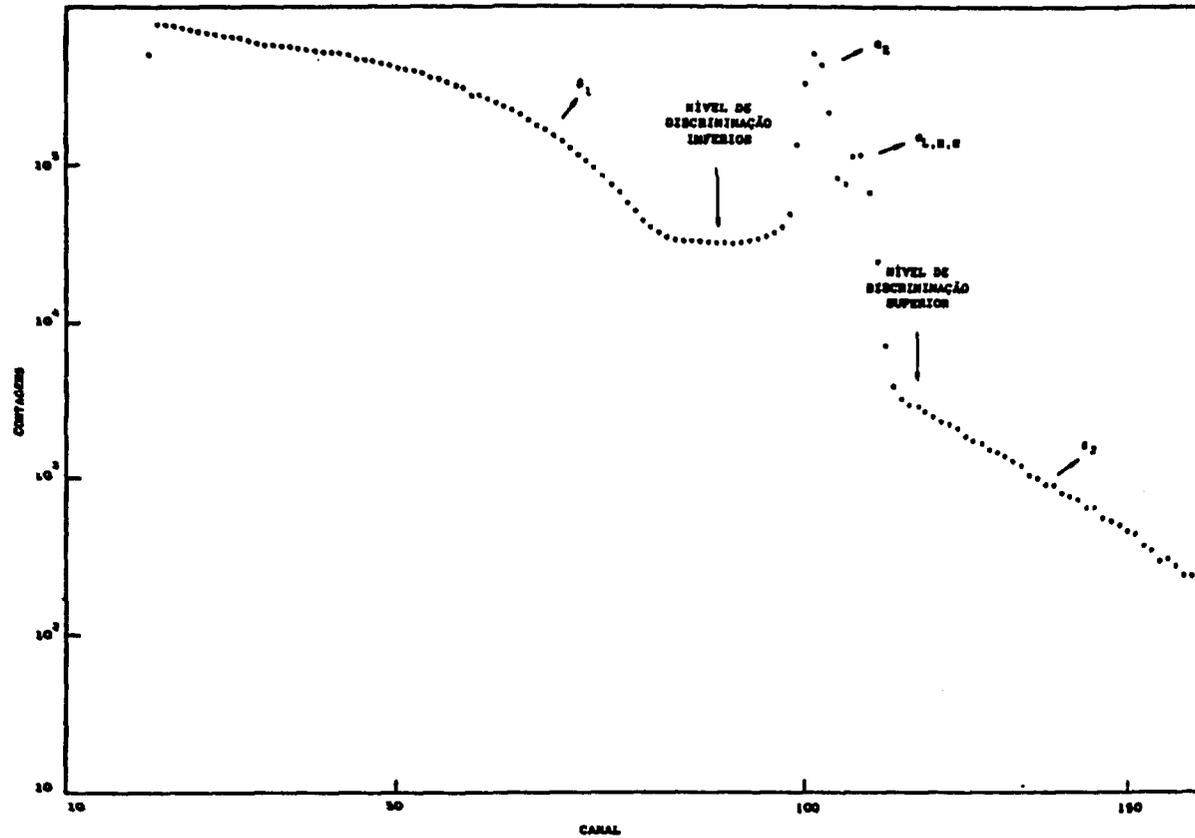


Figura III.11 Espectro de elétrons de conversão + radiação beta do ^{137}Cs obtido com detector de barreira de superfície.

Tabela III.10

Análise da Variância					
ln y = a + bx					
Fonte de Variação	Graus de Liberdade	Soma dos Quadrados	Quadrado Médio	Valor F	Prob>F
Devida à Regressão	1	117317	117317	16801	0,0001
Resíduo	53	370	6,983		
Total	54	117687			
		Valor Estimado	Desvio Padrão	TpHO: Parâmetro=0	Prob> T
Intercepto		18,084	0,074	245	0,0001
x		- 0,075	0,0005	- 129	0,0001
ln y = a + bx + cx ²					
Fonte de Variação	Graus de Liberdade	Soma dos Quadrados	Quadrado Médio	Valor F	Prob>F
Devida à Regressão	2	117643	58821	70339	0,0001
Resíduo	52	43,485	0,836		
Total	54	117687			
		Valor Estimado	Desvio Padrão	TpHO: Parâmetro=0	Prob> T
Intercepto		13,128	0,252	52	0,0001
x		- 0,0002	0,0038	0,059	0,9535
x ²		- 0,00028	0,00001	-19	0,0001

Tabela III.10 (cont.)

$\ln y = a + cx^2$					
Fonte de Variação	Graus de Liberdade	Soma dos Quadrados	Quadrado Médio	Valor F	Prob>F
Devida à Regressão	1	117643	117643	143375	0,0001
Resíduo	53	43,488	0,820		
Total	54	117687			

	Valor Estimado	Desvio Padrão	TpHO: Parâmetro=0	Prob> T
Intercepto	13,113	0,012	1073	0,0001
x^2	- 0,00028	$7,4 \times 10^{-7}$	-378	0,0001

Primeiramente, foi aplicado o teste para determinação do grau do polinômio para os dois primeiros modelos. Por este teste, foi verificado que o polinômio de grau 2 apresenta uma melhoria no ajuste, em relação ao polinômio de grau 1.

Entretanto, o teste "T", que determina a probabilidade do parâmetro ser zero, mostra que o parâmetro em X tem 95% de probabilidade de ser igual à zero. Em vista disso foi feito outro ajuste utilizando-se o modelo $\ln y = a + cx^2$.

Para este novo modelo, foi aplicado o teste para escolha do grau do polinômio comparando-o com o anterior, sendo confirmado que o modelo $\ln y = a + cx^2$ é o que melhor se ajusta aos dados experimentais.

Na figura III.12 é apresentada a curva ajustada da radiação beta (curva contínua) com os pontos experimentais.

O fator de correção aplicado à taxa de contagens de elétrons foi determinado pela expressão:

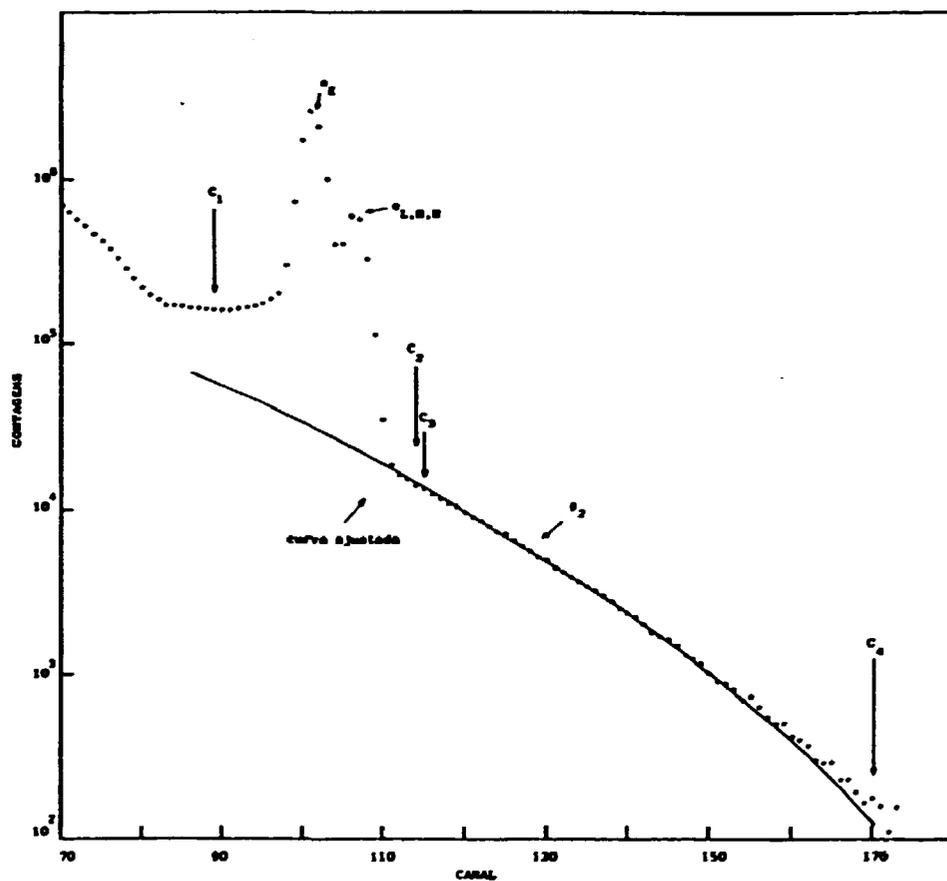


Figura III.12 Espectro de elétrons de conversão do ^{137}Cs com curva ajustada para correção da contribuição da radiação beta. Os canais C_1 , C_2 , C_3 e C_4 indicam os intervalos do espectro utilizado na determinação do fator de correção.

$$f_{c\beta} = 1 - B_{G\beta} \quad (\text{III.30})$$

$$\text{com } B_{G\beta} = \frac{\sum_{i=c_1}^{c_2} \exp(a+bx_i^2)}{x_i - c_1} \quad (\text{III.31})$$

$$\sum_{i=c_1}^{c_2} y_{iex}$$

$B_{G\beta}$ - radiação beta

sendo c_1 e c_2 os números do canal inicial e final do intervalo considerado;

y_{iex} as contagens no canal i do espectro obtido pelos detectores de barreira;

a, b os parâmetros determinados pelo ajuste polinomial;

x_i canal de interesse.

Para cada fonte foram determinados os parâmetros do ajuste e o fator de correção.

b) Fator de correção para radiação gama

De modo semelhante à via de detecção de elétrons, na via de detecção de raios X também temos uma contribuição na região de energia selecionada. Neste caso esta contribuição é devida ao espalhamento Compton do gama de 661 keV no detector de NaI(Tl). Como a radiação gama não é coincidente com nenhuma das radiações usadas na coincidência, sua contribuição também é considerada como uma radiação de fundo provocada pela própria fonte, e que é denominada radiação gama.

A figura III-13 mostra um espectro típico obtido pelos detectores de cintilação que inclui as contagens produzidas pelo espalhamento Compton da interação do gama de 661 keV, além do raio X_K característico emitido em coincidência com o elétron de conversão da camada K.

A contribuição devida ao espalhamento Compton é determinada pela medida da contagem da fonte com um filtro de cobre de 1 mm de espessura interposto entre a fonte e o detector gama.

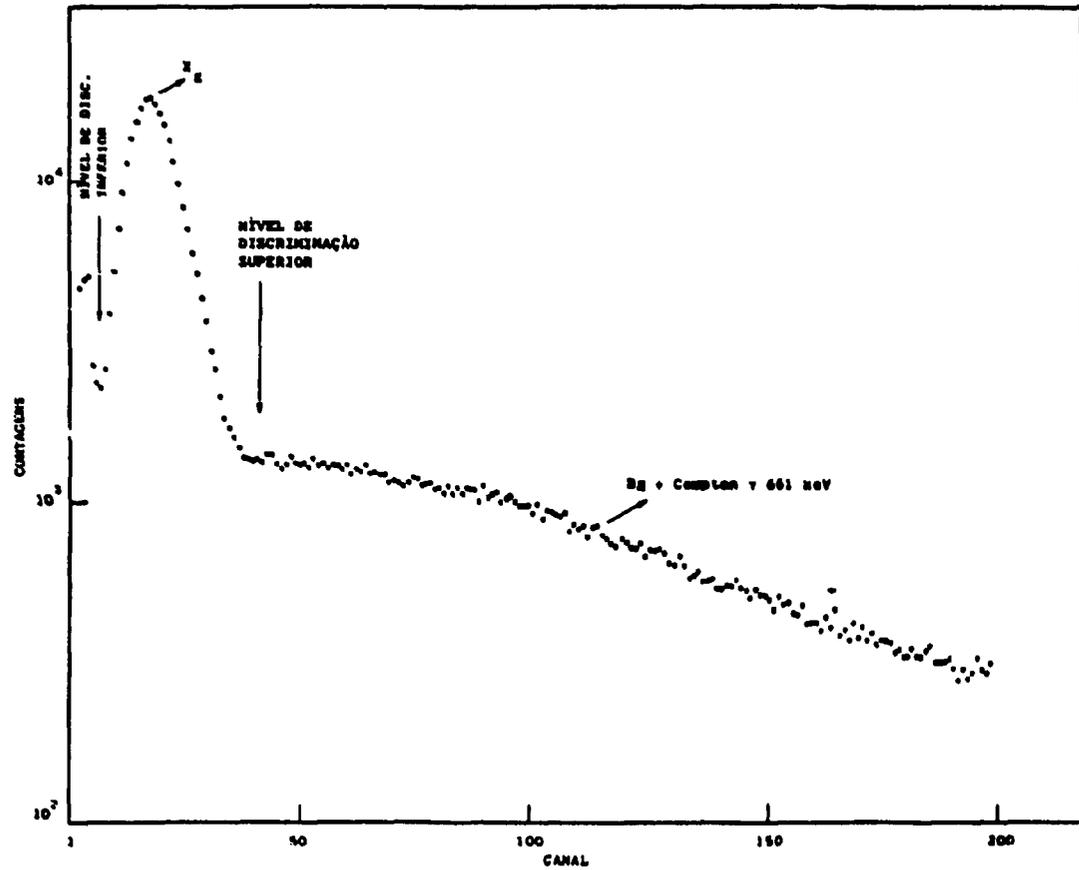


Figura III.13 Espectro de Raio-X obtido na medida do ^{137}Cs com detector $\text{NaI}(\text{Tl})$.

Deste modo consegue-se absorver 99,99% do raio X_K e obter a contribuição dos gamas no intervalo de energia seleccionada.

Na figura III.14 é apresentado o espectro obtido pelo uso do filtro.

O fator de correção aplicado à taxa de contagens de fótons X é dado por:

$$f_{c\gamma} = 1 - B_{g\gamma_0} \quad (\text{III.32})$$

$$\text{com } B_{g\gamma_0} = B_{g\gamma} \cdot f_A \quad (\text{III.33})$$

onde $B_{g\gamma}$ é a taxa de contagens da via X com filtro no intervalo de energia seleccionada;

f_A é o fator de atenuação do gama de 661 keV no filtro de Cu (igual a 6,67%);

$$f_A = e^{-\mu x}$$

com μ coeficiente de absorção total do Cu para $E_\gamma = 661$ keV;

x espessura do filtro de Cu (igual a 1 mm).

O fator de correção para radiação gama é medido para cada fonte.

A detecção dos elétrons de conversão no cintilador é "cortada" pelo uso de um filtro de lucite interposto entre a fonte e o detector durante toda a medida, de modo a tornar nula uma provável coincidência e_K -X espúria.

Na figura III.15 os espectros sobrepostos das medidas de RX direto, RX com filtro e RX-(RX com filtro) são apresentadas.

A interação dos fótons X e fótons γ no detector de barreira não foi considerada porque a interação dos fótons X devido a sua baixa energia, não contribui na região seleccionada para a medida, e a interação dos gamas no detector é de apenas 0,002%, sendo, portanto, totalmente desprezível.

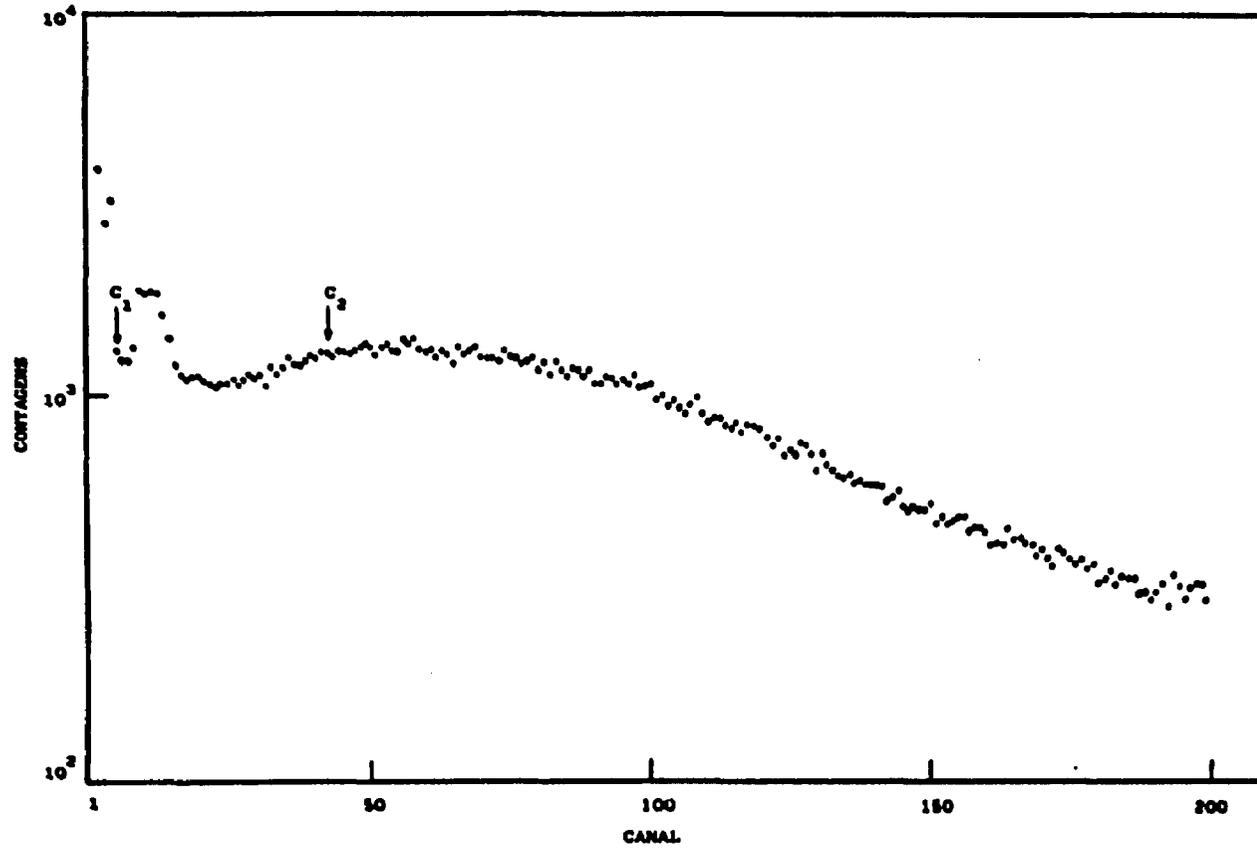


Figura III.14 Espectro de raio-X do ^{137}Cs com filtro de Cu de 1mm de espessura.

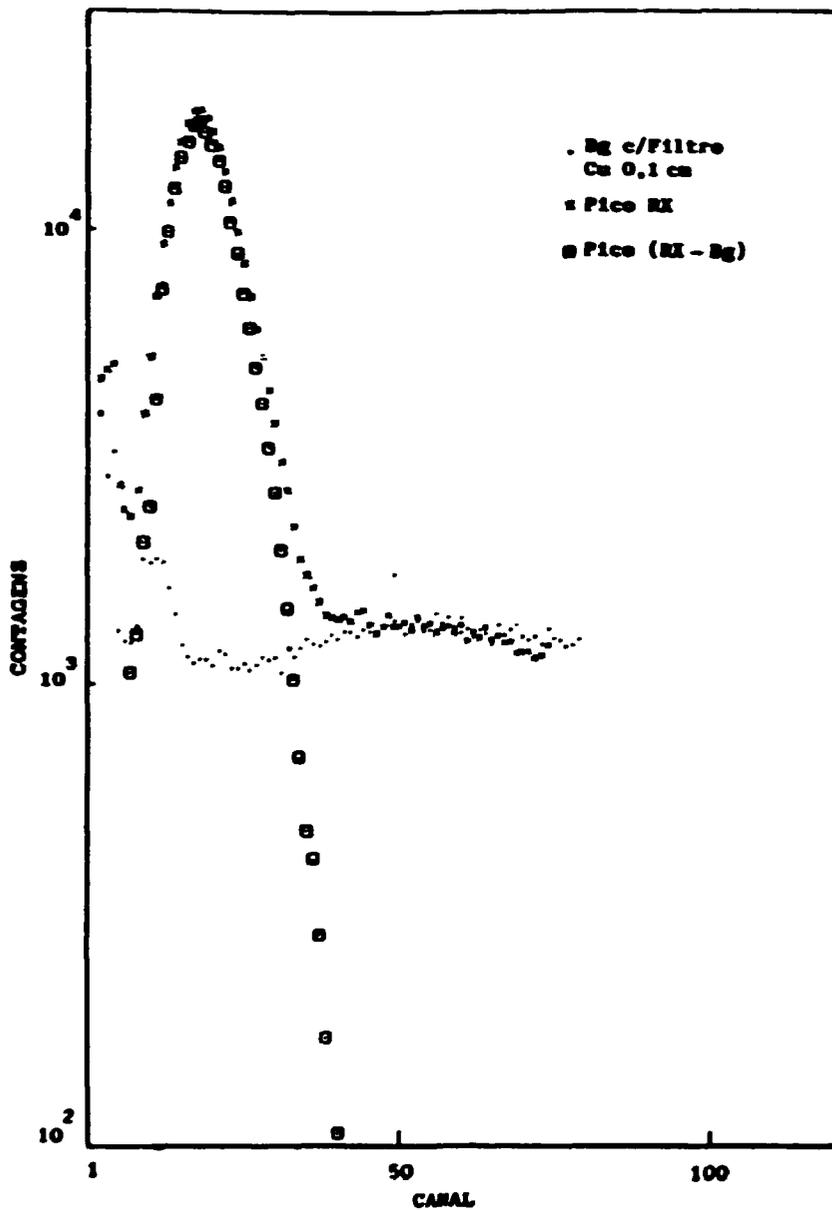


Figura III.15 Espectros de Raio-X do ^{137}Cs com e sem filtro sobrepostos-detector de NaI(Tl) .

c) Fator de correção para razão de eficiências

A correção devido a razão das eficiências de detecção para os elétrons de conversão é dada pela expressão:

$$f_{\epsilon} = \frac{\alpha_K}{\alpha_t} + \frac{(\alpha_t - \alpha_K)}{\alpha_t} \frac{\epsilon_{ecL.M.N.}}{\epsilon_{ecK}} \quad (\text{III.34})$$

Escrevendo a expressão de um modo mais conveniente teremos:

$$f_{\epsilon} = \frac{\alpha_K}{\alpha_t} \left[1 + \frac{\alpha_L}{\alpha_K} \frac{\epsilon_{ecL}}{\epsilon_{ecK}} + \frac{\alpha_{M.N.}}{\alpha_K} \frac{\epsilon_{ecM.N.}}{\epsilon_{ecK}} \right] \quad (\text{III.35})$$

A razão das eficiências $\epsilon_{ecL}/\epsilon_{ecK}$ e $\epsilon_{ecM,N}/\epsilon_{ecK}$ foi determinada com o auxílio do espectro de coincidência entre elétrons de conversão da camada K e os fótons X_K associados. A razão é obtida considerando-se que a variação das eficiências é diretamente relacionada com a variação de ganho do espectro.

A figura III.16 mostra o espectro de coincidências $e_K - X_K$ utilizado na determinação da razão das eficiências.

A razão de eficiência $\epsilon_{ecL}/\epsilon_{ecK}$ é expressa por:

$$\frac{\epsilon_{ecL}}{\epsilon_{ecK}} = \frac{S_L}{S_K}$$

$$\text{com } \frac{S_L}{S_K} = \frac{S_K + \Delta S_L}{S_K}$$

$$\text{onde } S_K = \sum_{i=c_{KI}}^{c_{KS}} y_i$$

$$\Delta S_L = \sum_{i=c_{LI}}^{c_{LS}} y_i$$

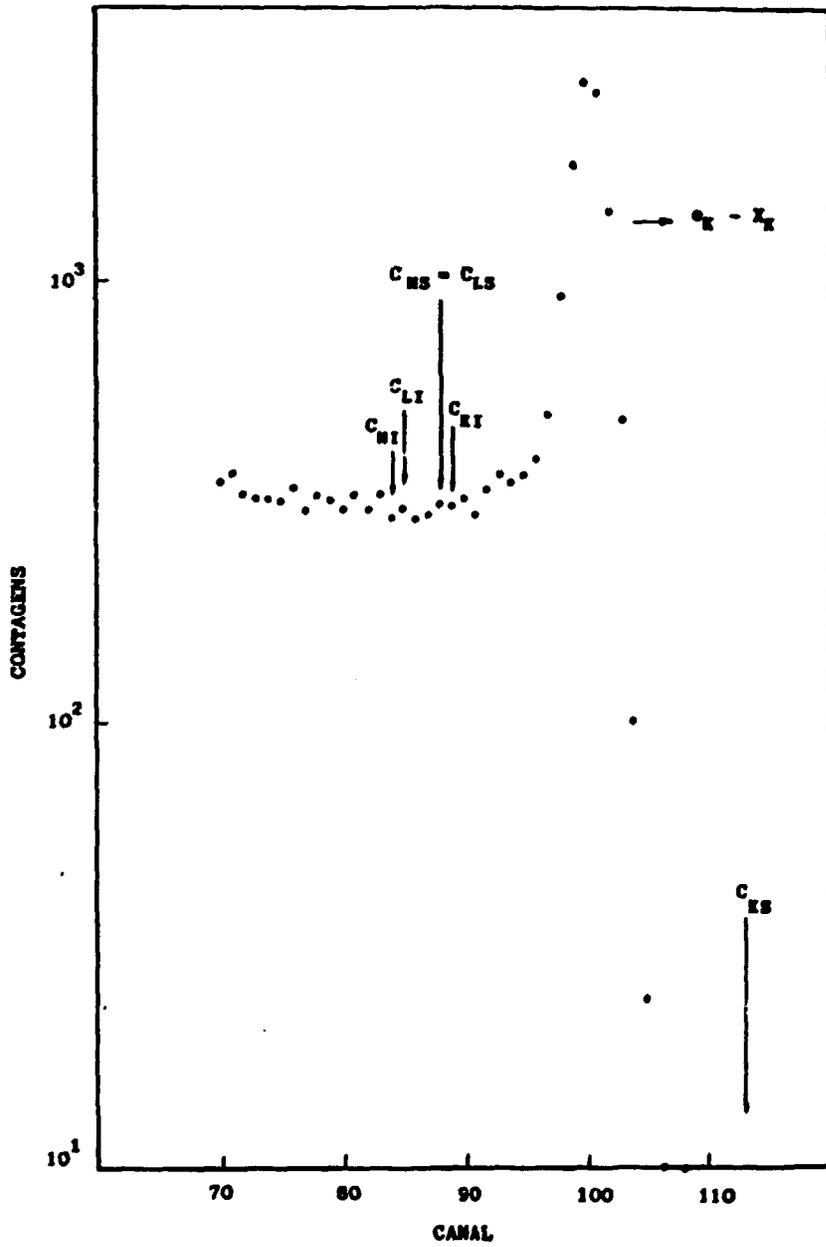


Figura III.16 Espectro de coincidência $e_K - X_K$ do ^{137}Cs utilizado na determinação na razão de eficiências.

sendo S_K a área do pico de elétrons de conversão K, no intervalo de energia em que foi realizada a medida da atividade. Onde c_{KI} é o canal inicial e c_{KS} o canal final do intervalo e y_i as contagens no i-ésimo canal.

ΔS_L a área a ser somada a S_K , para compensar a variação de ganho entre os elétrons L e K (supondo o pico devido aos elétrons L na posição do elétron K). Onde CL_I e CL_S os canais inicial e final do intervalo a ser somado a S_K .

De modo análogo, para $\epsilon_{ecM,N}/\epsilon_{ecK}$ teremos:

$$\frac{\epsilon_{ecMN}}{\epsilon_{ecK}} = \frac{S_{MN}}{S_K}$$

$$\text{com } \frac{S_{MN}}{S_K} = \frac{S_K + \Delta S_{MN}}{S_K} \quad \text{onde } \Delta S_{MN} = \sum_{i=c_{MI}}^{c_{MS}} y_i$$

com ΔS_{MN} área a ser somada a S_K para compensar a variação de ganho entre os elétrons M,N e o elétron K (C_{MI} , C_{MS} canais inicial e final do intervalo a ser somado a S_K).

Os parâmetros α_K , α_L , α_M foram obtidos da literatura e são apresentados na tabela III.9.

III.2.1.2. Resultados da Padronização do ^{137}Cs

Como mencionado no item (III.2.1.1), a padronização do ^{137}Cs , pelo sistema $2\pi(\text{BS})\text{-NaI}(\text{Tl})$ proposto neste trabalho, foi obtida pela técnica de extrapolação linear da eficiência; e o método de variação do parâmetro de eficiência utilizado foi o método de variação da distância fonte-detector.

O parâmetro de eficiência foi variado no intervalo de 0,15 a 0,025.

Os dados obtidos são mostrados na tabela (III.11) em que são apresentadas a razão das contagens por unidade de massa, corrigidas para radiação de fundo beta, para radiação de fundo gama e para a razão das eficiências para elétrons $\epsilon_{L,M,N}/\epsilon_K$; a incerteza correspondente; o parâmetro de eficiência e o parâmetro de ineficiência, com as respectivas incertezas.

Tabela III.11

$\frac{N_c N_x}{N_c}$ (cps/g)	σ (%)	$\frac{N_c}{N_x}$	σ (%)	$\frac{1-N_c/N_x}{N_c/N_x}$	σ (%)
5,689•10 ⁷	0,42	0,1533	0,28	5,5232	0,05
5,730•10 ³	0,37	0,1527	0,25	5,5488	0,05
5,638•10 ³	0,35	0,1417	0,35	6,0582	0,05
5,714•10 ³	0,47	0,1416	0,48	6,0682	0,08
5,703•10 ³	0,45	0,1330	0,45	6,5188	0,07
5,677•10 ³	0,41	0,1189	0,40	7,4104	0,05
5,628•10 ³	0,32	0,1172	0,28	7,5298	0,04
5,661•10 ³	0,47	0,1115	0,34	7,9686	0,04
5,660•10 ³	0,33	0,1088	0,28	8,1866	0,03
5,677•10 ³	0,55	0,09886	0,54	9,1146	0,06
5,682•10 ³	0,52	0,08988	0,30	10,1261	0,03
5,658•10 ³	0,68	0,08444	0,68	10,8432	0,06
5,671•10 ³	0,51	0,08100	0,45	11,3457	0,04
5,645•10 ³	0,44	0,07054	0,48	13,1772	0,04
5,638•10 ³	0,41	0,06565	0,31	14,2315	0,02
5,616•10 ³	0,47	0,05934	0,31	15,8440	0,02
5,679•10 ³	0,35	0,05825	0,34	16,1665	0,02
5,661•10 ³	0,64	0,05581	0,64	16,9191	0,04
5,616•10 ³	0,67	0,05462	0,66	17,3083	0,04
5,661•10 ³	0,36	0,05363	0,24	17,6452	0,01
5,621•10 ³	0,39	0,04948	0,37	19,2110	0,02
5,658•10 ³	0,37	0,04525	0,36	21,0905	0,01
5,641•10 ³	0,45	0,04387	0,25	21,7968	0,01
5,663•10 ³	0,69	0,04174	0,69	22,9602	0,03
5,602•10 ³	0,31	0,03808	0,34	25,2588	0,01
5,644•10 ³	0,32	0,03758	0,29	25,6099	0,01
5,644•10 ³	0,42	0,03676	0,36	26,2032	0,01
5,586•10 ³	0,86	0,03472	0,85	27,8014	0,03
5,624•10 ³	0,36	0,03168	0,34	30,5656	0,01
5,702•10 ³	0,81	0,02545	0,81	38,2977	0,02

Na figura III.17 temos a curva de variação das taxas de contagens obtidas versus o parâmetro de ineficiência. Os pontos cheios correspondem aos dados experimentais com as respectivas barras de erro e a linha contínua corresponde à reta ajustada.

A razão das contagens é determinada pelo valor extrapolado para o valor zero do parâmetro de ineficiência. Os valores foram obtidos por ajuste de reta aos dados experimentais, pelo método de mínimos quadrados, utilizando o programa S.A.S¹¹.

Na tabela III.12 é apresentada a análise de variância fornecida pelo programa, e os parâmetros estimados pelo ajuste.

Tabela III.12

Análise de Variância					
Fonte de Variação	Graus de Liberdade	Soma dos Quadrados	Quadrado Médio	Valor F	Prob>F
Devido à Regressão	1	14,407	14,407	10,641	0,0029
Resíduo	28	37,908	1,354		
Total	29	52,315			

Parâmetros Estimados				
Variáveis	Parâmetro Estimado	Desvio Padrão	TpHO Parâmetro=0	Prov> T
Intercepto	56,85	0,11	522,823	0,0001
x	- 0,020	0,0063	- 3,262	0,0029

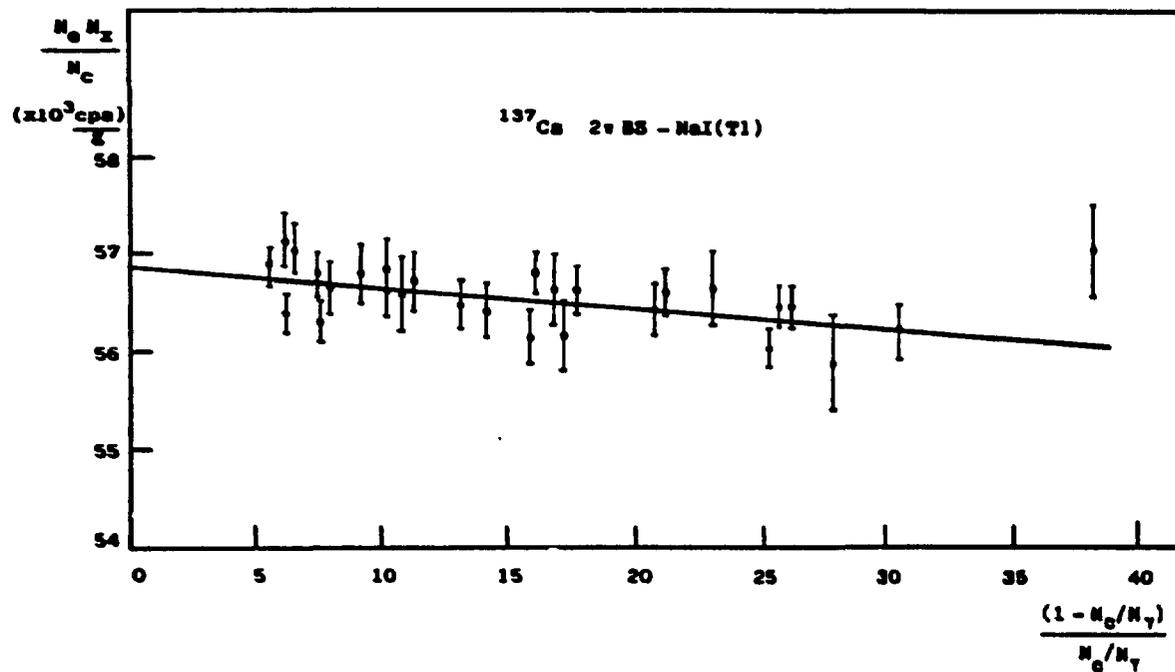


Figura III.17 Reta de extrapolação das taxas de contagens em função do parâmetro de ineficiência obtida pela variação da distância fonte-detector para o ^{137}Cs .

A taxa de desintegração é obtida multiplicando-se o valor extrapolado pela constante P_1 devida ao esquema de desintegração onde

$$P_1 = a \frac{\alpha_t}{1+\alpha_t} \left[\frac{\alpha_K}{\alpha_t} + \frac{(\alpha_t - \alpha_K)}{\alpha_t} \frac{\epsilon_{ecl.M.N.}}{\epsilon_{ecK}} \right]$$

O termo entre colchetes é o fator de correção devido a razão das eficiências para elétrons de conversão (f_c) e foi aplicado à razão das contagens.

Em vista disso, podemos redefinir a constante P_1 como:

$$P_1 = \frac{a\alpha_t}{1+\alpha_t}$$

No sistema de coincidência 2π (BS)-NaI(Tl) utilizado na padronização do ^{137}Cs , as taxas de contagens típicas foram de 300s^{-1} a 100s^{-1} para a via de elétrons; de 100s^{-1} para a via de raios X; de 20s^{-1} a 4s^{-1} para via de coincidência. Os tempos de medida foram da ordem de 12000s por medida. A massa das fontes foi aproximadamente de 30 mg. As taxas da radiação de fundo foram: $4 \times 10^{-3}\text{s}^{-1}$ para via de elétron, $0,6\text{s}^{-1}$ para via de raio X e igual a zero para via de coincidência.

Os fatores de correção determinados experimentalmente e descritos no item III.2.1.1.1 foram obtidos para cada medida. Os valores médios destes fatores são $(0,8429 \pm 0,0009)$ para o fator de correção para radiação gama e de $(0,9310 \pm 0,0009)$ para radiação beta. A correção para a razão das eficiências de elétrons calculada foi de $(1,017 \pm 0,003)$.

A taxa de desintegração N_0 para a solução de ^{137}Cs padronizada é

$$\frac{N_e N_x}{N_c} = (56,85 \pm 0,11) \cdot 10^3 \text{ cps/g}$$

$$\alpha_c = 0,1104 \pm 0,0005^{21}$$

$$a = 0,9461 \pm 0,0023^{21}$$

$$P_1 = (0,0941 \pm 0,0006)$$

$$N_0 = (604,1 \pm 4,2) \text{ KBq/g}$$

Os erros predominantes, nas medidas são os erros de natureza estatística devido a baixa taxa de coincidências e os erros sistemáticos devidos aos parâmetros do esquema de desintegração.

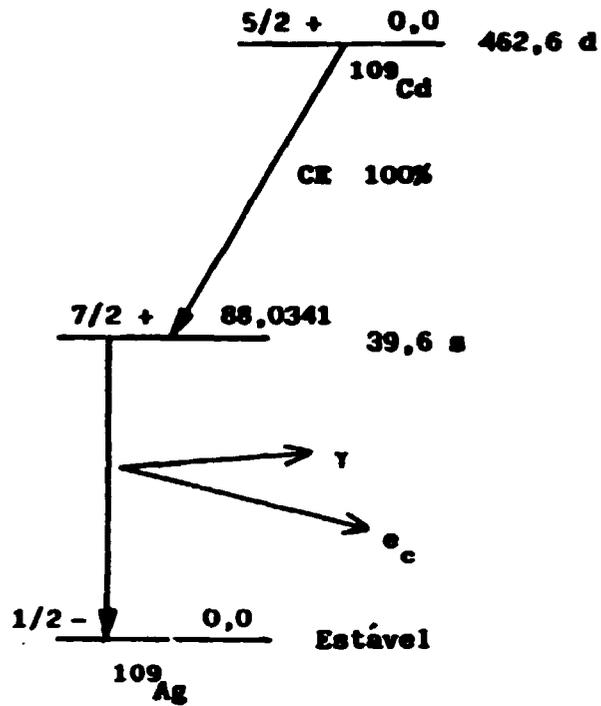
O resultado da padronização do ^{137}Cs no sistema proposto neste trabalho será comparado com a média dos vários laboratórios participantes da Comparação Internacional, apresentada no capítulo IV referente à análise dos resultados.

III.2.2. Padronização do ^{100}Cd

O esquema de desintegração do ^{100}Cd é mostrado na figura III.18¹³. O ^{100}Cd decai por captura de elétrons para a ^{100}Ag , com uma meia-vida de $(462,6 \pm 0,4)$ dias⁴⁸. Por sua vez, a ^{100}Ag decai ao estado fundamental através de uma transição gama de 88 keV. Esta transição possui alta probabilidade de conversão interna ($\approx 96,4\%$). Na tabela III.13 são apresentadas as energias e intensidades absolutas das radiações emitidas no decaimento do ^{100}Cd .

Tabela III.13

Emissão Fotônica ⁵⁰		
	Energia keV	Intensidade Absoluta %
X_L	2,63 - 3,75	10,8 \pm 1,6
X_K	22,55	102 \pm 4
γ	88,035 \pm 0,005	3,79 \pm 0,07
Emissão Eletrônica ⁵⁰		
	Energia keV	Intensidade Absoluta %
$^{\circ}\text{AL}$	1,9 - 3,8	169 \pm 10
$^{\circ}\text{AK}$	18,8 - 19,2	21 \pm 3
$^{\circ}\text{CK}$	62,520 \pm 0,005	41,7 \pm 0,7
$^{\circ}\text{CL}$	84,23 - 84,68	44,4 \pm 1,1
$^{\circ}\text{CH.N}$	87,31 - 88,00	10,1 \pm 0,2



$$P_K = 0,788 \pm 0,010$$

$$e_t = 26,4 \pm 0,5$$

$$e_K = 11,3 \pm 0,2$$

Figura III.18 Esquema de desintegração do ^{109}Cd ^{13,48}

O estado metaestável da ^{100m}Ag possui uma meia-vida de 40s, o que impede que os eventos de captura e conversão interna ou transição gama, possam ser detectados em coincidência.

A padronização do ^{100}Cd é, em geral, feita pelo método direto $4\pi(\text{PPC})e^{-28}$, que emprega detector proporcional pressurizado em geometria 4π proporcionando incertezas da ordem de 0,1% ou método de coincidência $4\pi e^{-X}^{57}$ empregando detector proporcional à gás fluente em geometria 4π de janela fina, acoplado a um cintilador de NaI(Tl) .

No presente trabalho, o ^{100}Cd foi padronizado pelos métodos $4\pi(\text{PPC})e^{-}$ e pelo método de coincidência aplicado ao sistema proposto utilizado em geometria 2π .

A solução radioativa de ^{109}Cd utilizada na avaliação do desempenho do sistema proposto, como no caso do ^{137}Cs , foi fornecida pelo BIPM, para servir na comparação internacional do ^{109}Cd , a qual o L.M.N do IPEN participou com o sistema $4\pi(\text{PPC})e^{-28}$.

O resultado da atividade determinado pelo sistema $2\pi(\text{BS})\text{-NaI(Tl)}$, foi comparado com os valores médios de resultados entre vários laboratórios⁶⁹.

III.2.2.1. Padronização do ^{109}Cd pelo Sistema $4\pi(\text{PPC})e^{-}$

O sistema $4\pi(\text{PPC})$ utilizado na medida da taxa de emissão de elétrons de conversão do ^{109}Cd ²⁸, é constituído de um detector proporcional em geometria 4π pressurizado, associado a um sistema eletrônico convencional.

O contador 4π proporcional à gás é um detector com baixo ruído e pouca sensibilidade à radiação gama, como citado no item I.2.2.1. Quando operado à pressão atmosférica, a radiação beta ou elétrons depositam, em geral, apenas uma fração da sua energia no volume sensível, de modo que o detector registra apenas os eventos, perdendo a proporcionalidade com a energia da radiação. A operação em altas pressões, entretanto, mantém esta proporcionalidade. Como a eficiência

de detecção de elétrons atinge 100%, e se a pressão do gás for suficientemente alta, a energia total da partícula é absorvida no volume sensível, tornando o contador 4 π proporcional em um espectrômetro⁰⁴.

O detector utilizado na medida é semelhante ao apresentado no item III.1.1, figura III.2. Para operação em alta pressão, foram feitas algumas alterações no sistema de vedação do gás e na isolação elétrica, a fim de suportar pressões até 13 atmosferas e voltagens até 4,0 kV.

O gás utilizado foi a mistura padrão P-10 (90% de argônio e 10% de metano). O detector foi operado a uma pressão de 10 atm, suficiente para que os elétrons de 88 keV do ¹⁰⁹Cd fossem totalmente absorvidos. A alta tensão aplicada foi de 3,3 kV.

O sistema eletrônico é semelhante ao sistema apresentado no item III.1.1 figura III.3, com algumas alterações no acoplamento detector pré-amplificador.

Os pulsos provenientes de cada anodo, foram processados eletronicamente de modo independente, sendo somados após a amplificação. Esta independência permitiu um ajuste adequado de ganho e resolução de espectro para cada anodo. Este procedimento permite, também, reproduzir os eventos onde a energia da radiação é dissipada de modo parcial em cada metade do detector.

A base do método utilizado é a detecção de todos os elétrons de conversão, porém excluindo os eventos associados aos processos de captura eletrônica e de conversão interna (raios-X e elétrons Auger)⁸².

Os eventos associados aos processos de captura eletrônica e de conversão interna raios X e elétrons Auger, tem energia menor que a energia dos elétrons do processo de conversão. Registrando o espectro de altura de pulso correspondente as energias detectadas, é possível selecionar a altura de pulso acima da qual teremos somente elétrons de conversão.

A figura III.19 mostra um espectro típico obtido no contador proporcional.

O pico mais intenso corresponde aos elétrons de conversão provenientes das camadas L e mais externas (84-88 keV). Abaixo deste,

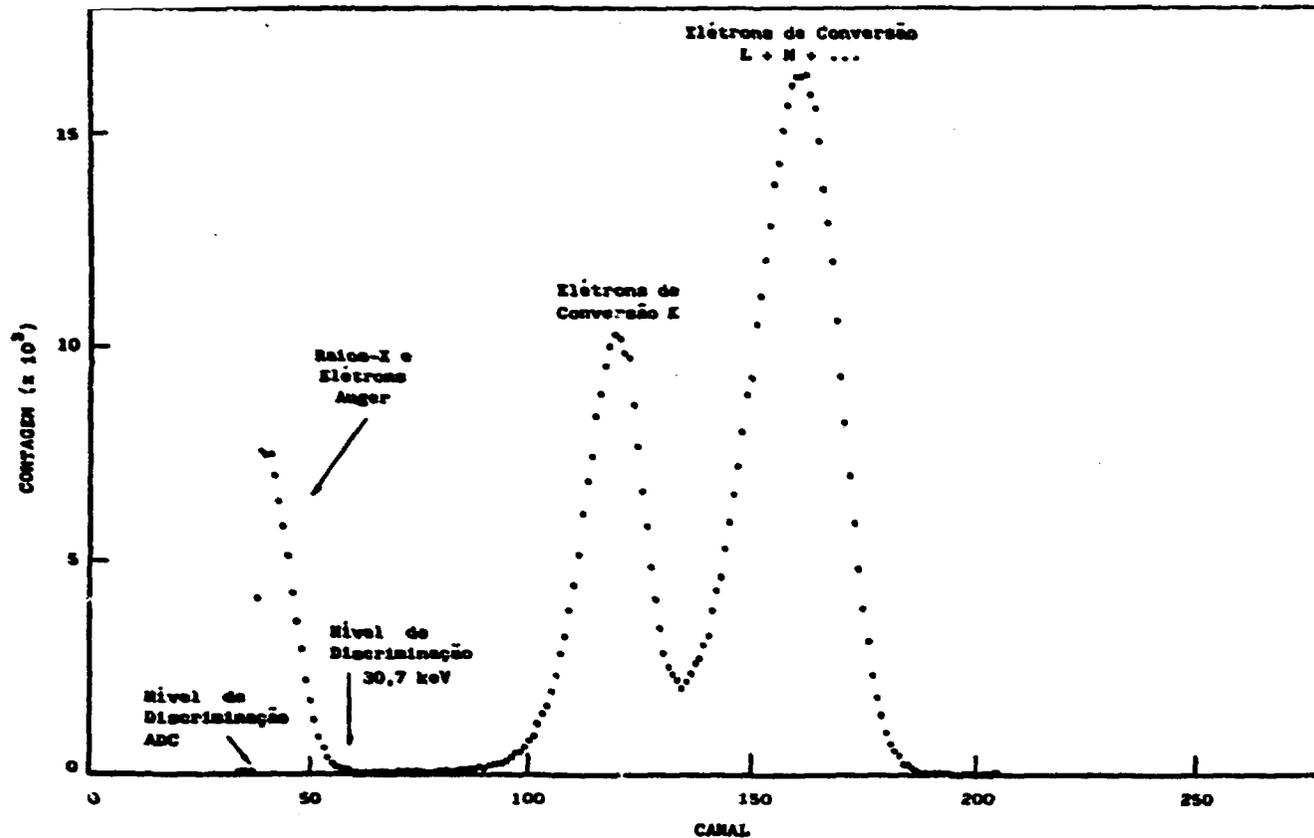


Figura III.19 Espectro de elétrons de conversão do ^{109}Cd obtido com detector proporcional pressurizado 4PPPC.

observa-se o pico correspondente ao elétron de conversão proveniente da camada K. Os pulsos originados pelos raios X e elétrons Auger estão bem abaixo dos originados pelos elétrons de conversão; permitindo uma boa discriminação entre os eventos dos elétrons de conversão e os demais. Para a contagem total dos elétrons emitidos, deve-se proceder a extrapolação para altura de pulso zero, de modo a determinar a quantidade de elétrons de conversão abaixo do nível de discriminação adotado.

A taxa de emissão de elétrons de conversão é determinada pela expressão:

$$N_{oe} = N_{ce} \cdot C_{\gamma} \cdot C_{sp} \quad (\text{III.36})$$

onde N_{oe} é a taxa de emissão de elétrons de conversão;

N_{ce} é a taxa de contagens acima do nível de discriminação e corrigida para tempo morto e contagem de fundo;

C_{sp} é o fator de correção para extrapolação de espectro para altura de pulso zero;

C_{γ} é o fator de correção para eficiência do detector para a radiação gama

A partir da taxa de emissão de elétrons de conversão, determina-se a taxa de desintegração pela expressão:

$$N_o = \frac{N_{oe}}{P_1} \quad (\text{III.37})$$

onde

$$P_1 = \frac{\alpha_t}{1 + \alpha_t}$$

III.2.2.1.1. Fatores de Correção envolvidos na Padronização do ^{109}Cd pelo sistema 4gPPG

a) Fator de Correção para Extrapolação do Espectro para Altura de Pulso Zero

A figura III.2.1 mostra em escala ampliada a região do espectro em que é posicionado o nível de discriminação para a contagem dos elétrons de conversão.

Pode-se ver, neste espectro, que na região considerada temos a contribuição devida aos elétrons de conversão que estão abaixo do nível de discriminação, e a contribuição dos fótons X e elétrons Auger que estão acima do nível considerado.

Para o cálculo do fator de correção, considera-se que metade da contribuição das contagens no canal de discriminação, é de fótons X e de elétrons Auger, e metade é de elétrons de conversão.

A extrapolação dos elétrons é constante até o canal zero do Analisador Multicanal, utilizado para registro do espectro.

O fator de correção é dado pela expressão

$$C_{sp} = 1 + \frac{S_2}{S_0} \quad (\text{III.38})$$

$$\text{com } S_2 = \frac{(y_1 - B_g) \times C_D}{2}$$

onde y_1 é a contagem média de cinco canais adjacentes, centrados no vale (vide figura III.20);

B_g é a radiação de fundo nesta região;

C_D canal correspondente ao nível de discriminação;

S_0 espectro total acima do nível de discriminação.

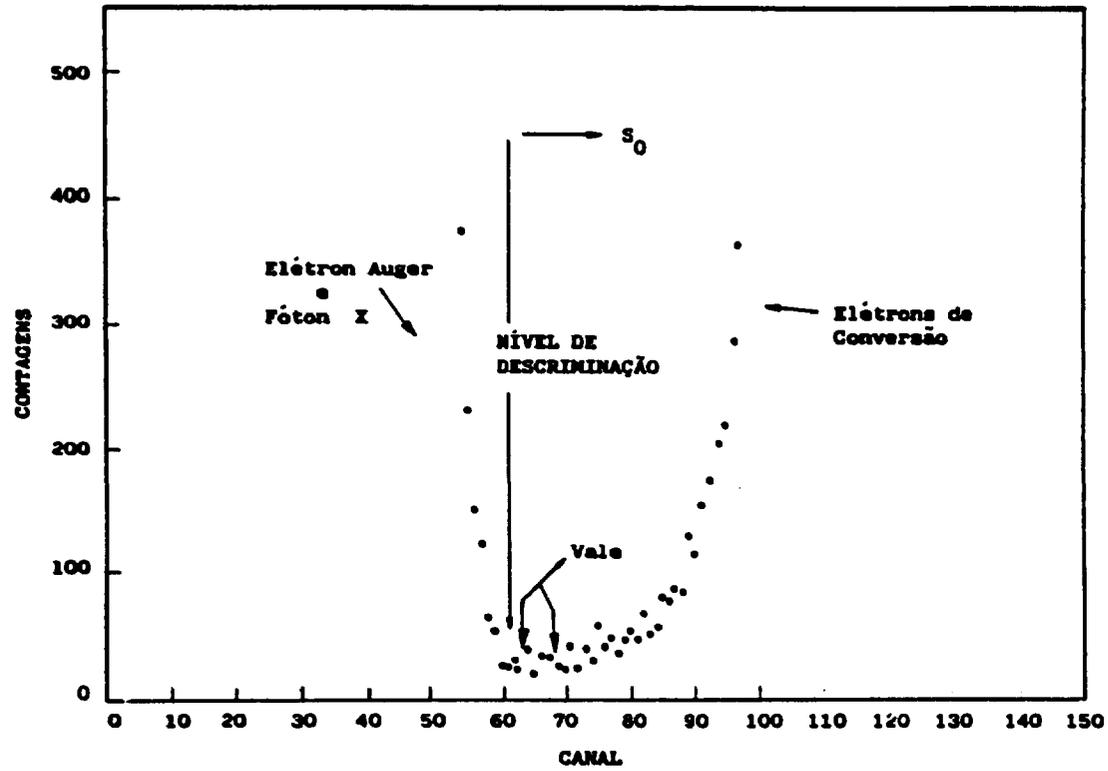


Figura III.20 Detalhe do espectro de elétrons de conversão do ^{109}Cd em detector 4HPPC utilizado na determinação da correção para extrapolação de espectro.

As contagens devidas aos fótons X e elétrons Auger são desprezadas frente às contagens de elétrons e está incluída na incerteza da correção.

b) Fator de Correção para Eficiência do Detector para a Radiação Gama

Uma das características do detector proporcional operado à pressão atmosférica é a sua baixa sensibilidade à radiação gama, como citado anteriormente. Entretanto, quando operado a altas pressões, sua sensibilidade aos fótons gama aumenta sendo, portanto, necessário corrigir as taxas de contagem dos elétrons para esta contribuição.

A eficiência de detecção do detector proporcional pressurizado para gamas de 88 keV emitidos pelo ^{109}Cd , foi determinado pela medida de uma fonte de ^{109}Cd com dois filtros de alumínio de 0,009cm de espessura, colocados um de cada lado, para absorver os elétrons de conversão. A eficiência resultante foi de 0,003.

O fator de correção a ser aplicado é, portanto, dado por:

$$C_{\gamma} = \frac{\epsilon_{e\gamma}}{1 + \alpha_c} \quad (\text{II.39})$$

Como $\alpha_c = 26,4 \pm 0,5$ teremos que o valor de C_{γ} é igual a $1,09 \times 10^{-4}$.

O Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN participou da Comparação Internacional do $^{109}\text{Cd}^{69}$ com a padronização do ^{109}Cd no sistema 4π (PPC) descrito acima.

Os resultados são apresentados no item III.2.2.3.

III.2.2.2. Padronização do ^{109}Cd pelo Sistema $2\pi(\text{BS})\text{-NaI(Tl)}$

A medida do ^{109}Cd pelo sistema de coincidência $2\pi\text{BS-NaI(Tl)}$ é muito semelhante à medida do ^{137}Cs . As radiações utilizadas na medida de coincidência são: o elétron proveniente de eventos de conversão interna detectado no detector de barreira de superfície e o fóton X_K associado detectado no cintilador de NaI(Tl).

Entretanto, devido à diferenças no esquema de desintegração, as equações, envolvidas nesta medida, deverão ser desenvolvidas, especialmente para este caso. Analisando o esquema de decaimento do ^{109}Cd apresentado na figura III.18, teremos para a via de detecção de elétrons:

$$N_e = N_0 P_1 \epsilon_{ecK} \quad (\text{III.40})$$

com $P_1 \epsilon_{ecK}$ a probabilidade de detectar o elétron ejetado da camada K, L, M, N proveniente de eventos de conversão interna;

$P_1 \epsilon_{ecK}$ é igual ao apresentado na equação (III.18) para o ^{137}Cs com apenas uma ressalva para o parâmetro g .

O ^{109}Cd desintegra por captura eletrônica para o nível metaestável, assim, neste caso, o parâmetro g corresponde à probabilidade de desintegração por captura eletrônica, também chamado intensidade de captura eletrônica I_{ce} ($I_{ce} = 1$).

Na via de detecção do fóton X a equação é dada por

$$N_x = N_0 P_2 \epsilon_{xK} \quad (\text{III.41})$$

onde $P_2 \epsilon_{xK}$ é a probabilidade de detectar o fóton X_K proveniente de eventos de conversão interna ou de captura eletrônica;

$$P_2 \epsilon_{xK} = (P_3 + \frac{a_K}{1+a_c} W_K) \epsilon_{xK} \quad (\text{III.42})$$

com

$$P_3 = P_K^{w_K} \quad (\text{III.43})$$

onde $P_K^{w_K}$ é a probabilidade de emissão de fótons X_K associados à captura de um elétron K, com P_K sendo a probabilidade de que o processo de desintegração de captura ocorra com um elétron da camada K.

Na via de coincidência teremos

$$N_c = N_o (P_2 - P_3) \epsilon_{XK} \epsilon_{ecK} \quad (\text{III.44})$$

Das equações (III.38) e (III.41) podemos escrever

$$\frac{N_c}{N_x} = \frac{P_2 - P_3}{P_2} \epsilon_{ecK} \quad (\text{III.45})$$

Substituindo na equação (III.40), teremos

$$\frac{N_e N_x}{N_c} = N_o \frac{P_1 P_2}{P_2 - P_3} \quad (\text{III.46})$$

de onde podemos obter

$$N_o = \frac{N_e N_x (P_2 - P_3)}{N_c P_1 P_2} \quad (\text{III.47})$$

De modo análogo ao exposto no item III.2.1.1 para o ^{137}Cs , a medida da taxa de desintegração pode ser obtida com apenas uma medida em coincidência. Entretanto, para verificar uma possível dependência entre o parâmetro de eficiência N_e/N_x e a distância fonte-detector, foram feitas medidas variando-se o parâmetro de eficiência, através da variação da distância fonte-detector.

Assim, a taxa de desintegração foi determinada por extrapolação do parâmetro de eficiência N_c/N_x à unidade, ou seja,

$$\frac{N_e N_x}{N_c} = N_0 \frac{P_1 P_2}{P_2 \cdot P_3} G\left(\frac{1 - N_c/N_x}{N_c/N_x}\right) \quad (\text{III.48})$$

onde G nos dá a dependência do parâmetro de ineficiência $(1 - N_c/N_x)/(N_c/N_x)$ para diversas distâncias fonte-detector.

$$G\left(\frac{1 - N_c/N_x}{N_c/N_x}\right) \rightarrow 1 \text{ quando } \frac{1 - N_c/N_x}{N_c/N_x} \rightarrow 0$$

III.2.2.2.1. Fatores de Correção Envolvidos na Medida do ^{109}Cd

A taxa de contagem das vias de elétron e fóton X, como citado no item III.2.2.2, devem ser corrigidas para contagem de fundo antes de serem utilizadas na equação (III.47).

Esta contagem de fundo envolve a radiação de fundo proveniente do ambiente e a radiação emitida pela própria fonte que não está em coincidência, mas que interfere nas taxas de contagem observadas.

Para o caso do ^{109}Cd o fator interferente é a radiação gama de 88 keV que pode ser detectada tanto no detector de silício como no detector de NaI(Tl). Esta radiação não é coincidente com nenhuma outra, pois a emissão da radiação gama é competitiva com a conversão interna.

Entretanto, como a intensidade do fóton γ de 88 keV é de apenas 3,8%, a sua contribuição na via de elétrons é muito pequena, (<0,02%), não tendo sido considerada.

A interferência da radiação gama de 88 keV no cintilador é devida ao espalhamento Compton no detector NaI(Tl).

A figura III.21 mostra o espectro obtido do cintilador de NaI(Tl) em que temos o pico de absorção do gama de 88 keV, além do pico do raio X_x proveniente da captura eletrônica e da conversão interna. A contribuição devida à interação da radiação gama no cintilador no intervalo de energia do raio X_x , foi determinada pelo uso de absorvedores. O absorvedor usado foi 1 mm de cobre (com 99,99% de pureza). A figura III.22 mostra o espectro (fonte + filtro).

O fator de correção é obtido pela expressão

$$f_{c\gamma} = 1 - c_\gamma$$

onde

$$c_\gamma = \sum_{i=c_1}^{c_2} (y_i - Bg_i) - \sum_{j=c_1}^{c_2} (y_j - Bg_j)R \quad (\text{III.49})$$

com

$$R = \frac{\sum_{i=c_3}^{c_4} (y_i - Bg_i)}{\sum_{j=c_3}^{c_4} (y_j - Bg_j)} \quad (\text{III.50})$$

sendo R a atenuação do gama de 88 keV pelo uso do filtro de cobre ($\approx 60\%$);

y_j contagem da fonte com filtro no j-ésimo canal;

y_i contagem da fonte sem filtro no i-ésimo canal;

Bg_i contagem da radiação de fundo propriamente dita (sem fonte);

Bg_j contagem da radiação de fundo (sem fonte, com filtro);

c_1, c_2 canal inicial e final na região do pico de absorção total do fóton X_x ;

c_3, c_4 canal inicial e final na região do fotopico do gama de 88keV

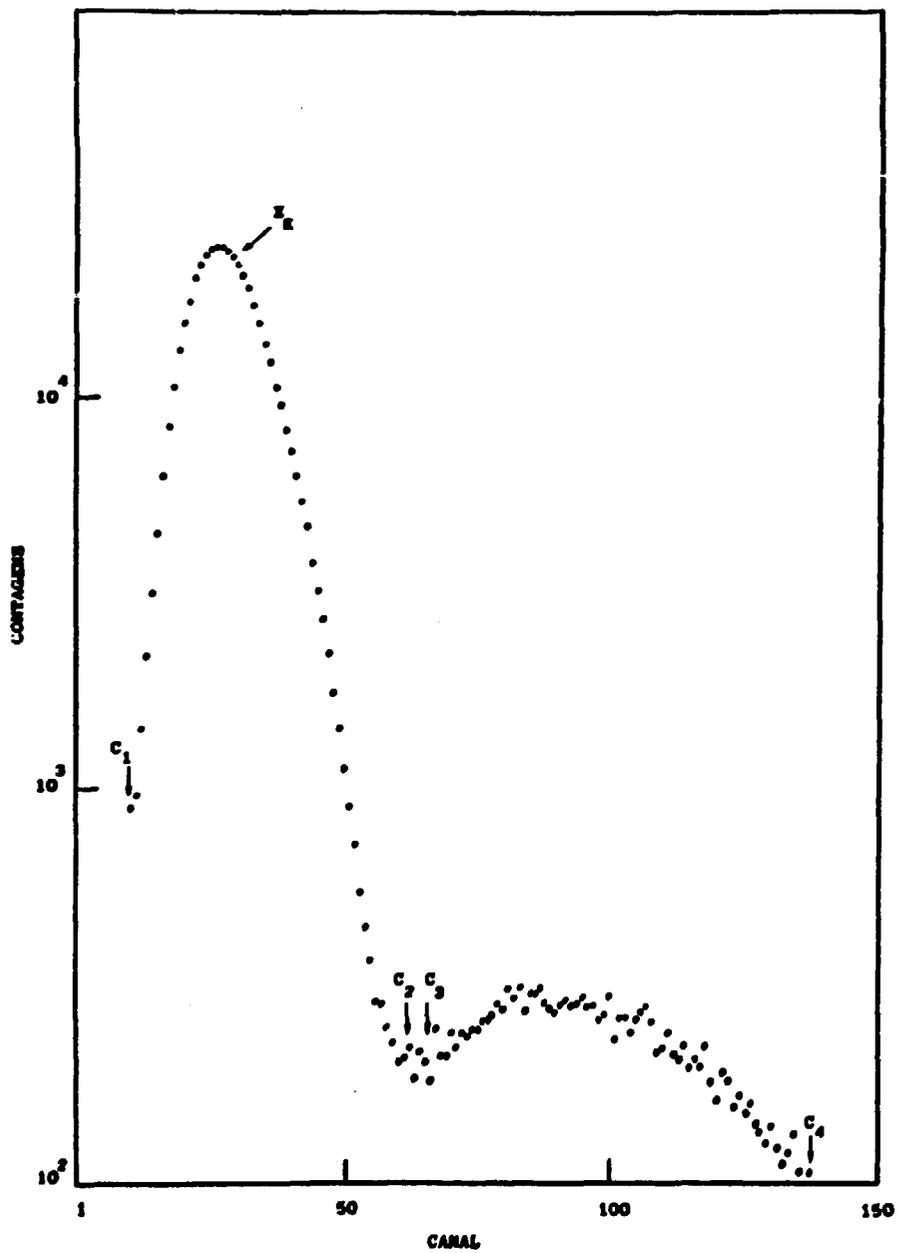


Figura III.21 Espectro de Raio-X obtido na medida do ^{109}Cd com detector de $\text{NaI}(\text{Tl})$.

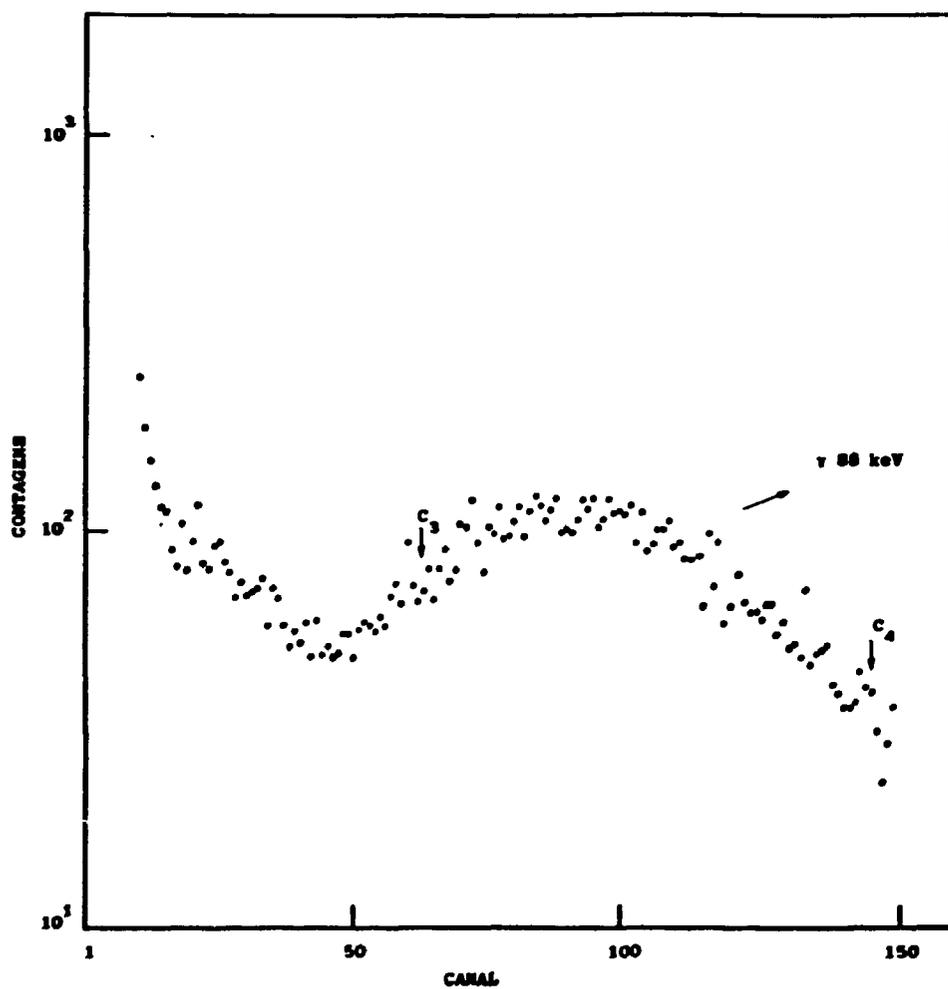


Figura III.22 Espectro de raio-X do ^{109}Cd com filtro de Cu de 1mm de espessura.

III.2.2.3. Resultados da Padronização do ^{109}Cd

III.2.2.3.1. Resultados de Atividade

A padronização do ^{109}Cd no sistema $2\pi(\text{BS})\text{-NaI(Tl)}$ foi obtida de modo análogo à padronização do ^{137}Cs , pela técnica de extrapolação linear da eficiência.

O método utilizado foi o da variação da distância fonte-detector. O parâmetro de eficiência foi variado no intervalo de 0,09 a 0,02.

Os dados obtidos são mostrados na tabela III.14, em que são apresentadas: a razão das contagens por unidade de massa, já corrigidas pra radiação gama a para a razão das eficiências para elétrons, o parâmetro de eficiência, o parâmetro de ineficiência e os respectivos erros.

Na figura III.23 temos a curva obtida de $N_e N_x / N_c$ versus $(1 - N_c / N_\gamma) / (N_c / N_\gamma)$. Os pontos cheios correspondem aos dados experimentais com as barras de erro e a linha contínua corresponde à reta ajustada.

O ajuste foi feito pelo método de mínimos quadrados pelo programa SAS¹¹.

Na tabela III.15 é apresentada a análise de variância fornecida pelo programa e os valores dos parâmetros fornecidos pelo ajuste.

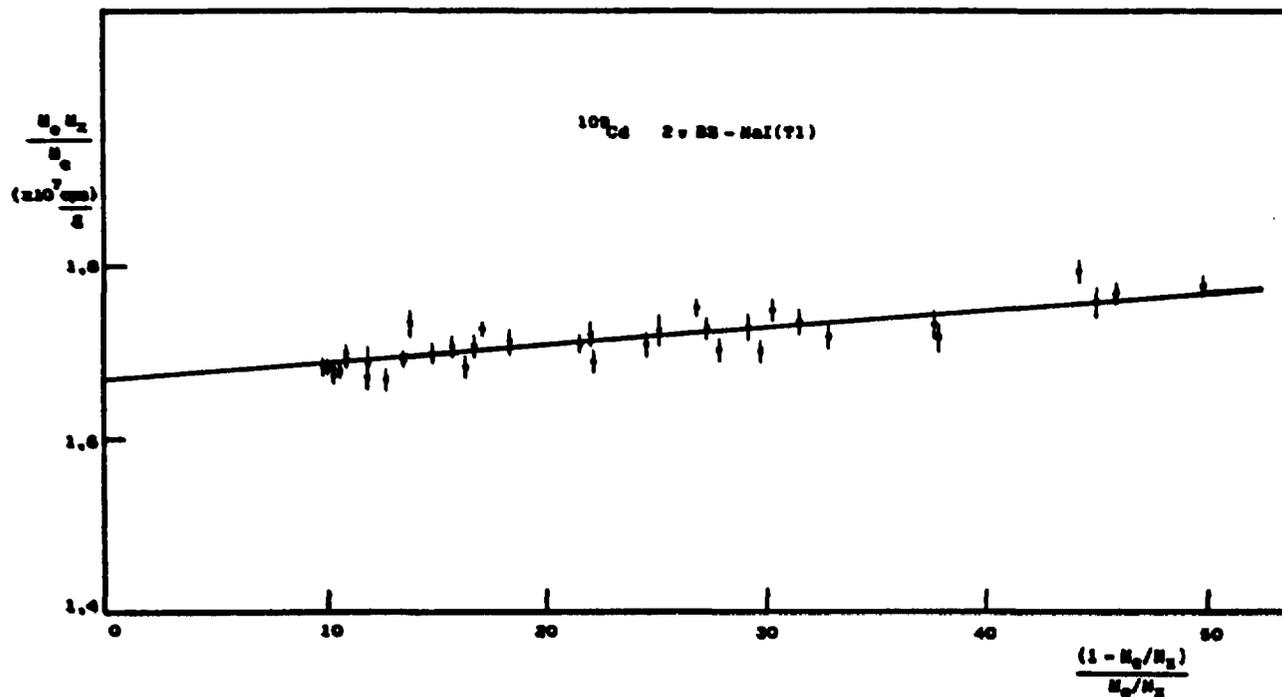


Figura III.23 Reta de extrapolação das taxas de contagens em função do parâmetro de ineficiência, obtida pela variação da distância fonte-detector para o ^{109}Cd .

Tabela III.14

$\frac{N_c N_x}{N_c/g}$	σ	$\frac{N_c}{N_x}$	σ	$\frac{1-N_c/N_x}{N_c/N_x}$	σ
(cps/g)	(%)		(%)		(%)
1,684•10 ⁷	0,48	0,09136	0,36	9,9453	0,04
1,686•10 ⁷	0,39	0,09089	0,34	10,002	0,03
1,685•10 ⁷	0,37	0,08916	0,27	10,215	0,03
1,692•10 ⁷	0,53	0,08867	0,53	10,278	0,05
1,676•10 ⁷	0,38	0,08854	0,27	10,295	0,03
1,680•10 ⁷	0,49	0,08816	0,24	10,343	0,02
1,680•10 ⁷	0,38	0,08635	0,18	10,581	0,02
1,696•10 ⁷	0,46	0,08507	0,46	10,754	0,04
1,700•10 ⁷	0,48	0,08412	0,33	10,888	0,03
1,692•10 ⁷	0,89	0,07808	0,89	11,807	0,07
1,673•10 ⁷	0,47	0,07747	0,29	11,909	0,02
1,672•10 ⁷	0,38	0,07299	0,24	12,670	0,02
1,693•10 ⁷	0,47	0,06895	0,47	13,504	0,02
1,737•10 ⁷	0,64	0,06744	0,45	13,828	0,03
1,700•10 ⁷	0,65	0,06332	0,65	14,792	0,05
1,709•10 ⁷	0,47	0,05947	0,47	15,814	0,03
1,708•10 ⁷	0,49	0,05597	0,50	16,867	0,03
1,729•10 ⁷	0,34	0,05501	0,34	17,177	0,02
1,685•10 ⁷	0,66	0,05431	0,65	17,413	0,04
1,714•10 ⁷	0,73	0,05143	0,73	18,444	0,04
1,710•10 ⁷	0,55	0,04430	0,45	21,574	0,02
1,722•10 ⁷	0,74	0,04344	0,74	22,020	0,03
1,692•10 ⁷	0,57	0,04313	0,51	22,183	0,02
1,711•10 ⁷	0,60	0,03896	0,48	24,666	0,02
1,727•10 ⁷	0,95	0,03815	0,96	25,210	0,04
1,729•10 ⁷	0,63	0,03532	0,51	27,310	0,02
1,704•10 ⁷	0,80	0,03461	0,80	27,892	0,03
1,752•10 ⁷	0,40	0,03451	0,38	27,981	0,01
1,731•10 ⁷	0,72	0,03293	0,46	24,368	0,02
1,702•10 ⁷	0,69	0,03256	0,66	29,708	0,02
1,750•10 ⁷	0,73	0,03186	0,53	30,389	0,02
1,738•10 ⁷	0,62	0,03077	0,62	31,503	0,02
1,720•10 ⁷	0,67	0,02957	0,51	32,816	0,02
1,734•10 ⁷	0,85	0,02593	0,70	37,565	0,02
1,719•10 ⁷	0,73	0,02584	0,53	37,705	0,02
1,797•10 ⁷	0,51	0,02158	0,51	44,130	0,01
1,762•10 ⁷	0,75	0,02179	0,60	44,899	0,01
1,772•10 ⁷	0,59	0,02137	0,59	45,790	0,01
1,774•10 ⁷	0,81	0,01968	0,78	49,809	0,02

Tabela III.15

Análise de Variância					
Fonte de Variação	Graus de Liberdade	Soma dos Quadrados	Quadrado Médio	Valor F	Prob > F
Devido à Regressão	1	$2,506 \times 10^{12}$	$2,506 \times 10^{12}$	95,7	0,0001
Resíduos	37	$9,692 \times 10^{11}$	$2,619 \times 10^{10}$		
Total	38	$3,476 \times 10^{12}$			

Parâmetros Estimados				
Variáveis	Parâmetros Estimados	Desvio Padrão	Tp/H0: Parâmetro=0	Prob> T
Intercepto	$1,6646 \times 10^7$	$5,6 \times 10^4$	294.563	0,0001
x	$2,20 \times 10^4$	$2,25 \times 10^3$	9.783	0,0001

As taxas de contagens na padronização de ^{109}Cd no sistema de coincidência $2\pi(\text{BS})\text{-NaI}$ apresentaram valores entre: 4000s^{-1} a 100s^{-1} para via de detecção de elétrons; de 800s^{-1} a 450s^{-1} para via de detecção de fóton X e de 70s^{-1} a 20s^{-1} para via de coincidência. Os tempos de contagem variaram de 12000s a 6000s. As taxas da radiação de fundo foi de 3s^{-1} , $0,4\text{s}^{-1}$ e 0 nas vias elétron, fóton X e coincidência, respectivamente. A massa das fontes variou de 6 mg a 40 mg. O fator de correção para radiação gama no contador, descrito no item III.2.2.2.1 foi de $(1,005 \pm 0,005)$.

A taxa de contagens para o ^{109}Cd obtida do valor extrapolado

deve ser dividida pela constante $(P_1 P_2)/(P_2 - P_3)$, devida ao esquema de desintegração, onde

$$P_1 = \frac{\alpha_t}{1 + \alpha_t} \left[\frac{\alpha_K}{\alpha_t} + \frac{\alpha_t^{-\alpha_K}}{\alpha_t} \frac{\epsilon_{ecL.M.N}}{\epsilon_{ecK}} \right]$$

$$\text{com } f_c = \left[\frac{\alpha_K}{\alpha_t} + \frac{\alpha_t^{-\alpha_K}}{\alpha_t} \frac{\epsilon_{ecL.M.N}}{\epsilon_{cK}} \right]$$

f_c fator de correção para a razão das eficiências determinado experimentalmente, de modo análogo ao descrito no item III.2.1.1.1.c para o ^{137}Cs .

O valor de f_c para o ^{109}Cd é de $(1,046 \pm 0,002)$ e foi aplicado à razão das contagens.

Podemos, assim, novamente redefinir a constante P_1 como:

$$P_1 = \frac{\alpha_t}{1 + \alpha_t}$$

e

$$\frac{P_2}{P_2 - P_3} = \frac{P_K + \alpha_K / 1 + \alpha_t}{\alpha_K / 1 + \alpha_t}$$

Os valores utilizados, para cálculo das constantes, foram obtidos dos parâmetros fornecidos pela literatura apresentados na figura III.18. De modo que

$$\frac{N_s N_x}{N_c} = (1,6646 \pm 0,0056) \times 10^7 \text{ cps/g}$$

Parâmetros do esquema¹³

$$\begin{aligned} \alpha_c &= 26,4 \pm 0,5 \\ \alpha_K &= 11,3 \pm 0,2 \\ P_k &= 0,788 \pm 0,010 \end{aligned}$$

Constantes do método

$$P_1 = (0,9635 \pm 0,0007)^{13}$$

$$\frac{P_2}{P_2 - P_3} = (2,911 \pm 0,025)^{13}$$

$$N_o = (5935 \pm 53) \text{KBq/g}$$

Os erros envolvidos são devidos, principalmente, aos erros estatísticos da medida, e aos erros dos parâmetros do esquema de desintegração.

Na literatura podemos encontrar o valor de $P_2/(P_2 - P_3)$, determinado experimentalmente por Kawada⁴⁶, com uma incerteza menor.

Aplicando o valor obtido por Kawada ao nosso valor extrapolado teremos:

$$\frac{N_e N_x}{N_c} = (1,6646 \pm 0,0056) \times 10^7 \text{ cps/g}$$

$$P_1 = (0,9635 \pm 0,0007)^{13}$$

$$\frac{P_2}{P_2 - P_3} = (2,88590 \pm 0,00927)^{46}$$

$$N_0 = (5967 \pm 33) \text{ KBq/g}$$

Os resultados obtidos utilizando os dois parâmetros serão comparados com a média dos valores da comparação internacional, quando da análise dos resultados no capítulo IV.

Os resultados obtidos na padronização do ^{109}Cd pelo sistema $4\pi\text{PPC}$ são apresentados a seguir.

Sistema $4\pi\text{PPC}$	Atividade Específica (KBq/g)
^{109}Cd	6000 ± 12
Fatores de Correção	
C_{CE}^*	$1,0378 \pm 0,003$
C_{SP}	$1,0016 \pm 0,0016$

$$* C_{CE} = 1/(P_1 + c_\gamma)$$

III.2.2.3.2. Determinação da Razão $(P_K + \alpha_K / 1 + \alpha_K) / (\alpha_K / 1 + \alpha_K)$ para o ^{109}Cd

A razão $(P_K + \alpha_K / 1 + \alpha_K) / (\alpha_K / 1 + \alpha_K)$ para o ^{109}Cd foi determinada a partir da medida feita no sistema de coincidência $2\pi(\text{BS})\text{-NaI(Tl)}$ apresentado no item III.2.2.2 e da medida da taxa de emissão de elétrons de conversão feita no sistema $4\pi\text{PPC}$, descrito no item III.2.2.1.

A razão é dada por

$$\frac{P_K + \alpha_K / 1 + \alpha_K}{\alpha_K / 1 + \alpha_K} = \frac{N_e N_x}{N_{oe} N_c}$$

sendo $(N_e N_x) / N_c$ é a taxa de contagens obtida da medida no sistema de coincidência e

N_{oe} a taxa de emissão de elétrons de conversão, medida no sistema $4\pi\text{PPC}$.

Esta razão foi determinada para nove fontes padronizadas nos dois sistemas de medida. Na tabela III.16 são apresentados os valores obtidos em cada sistema com suas respectivas incertezas; a razão determinada com a incertoza associada e os valores médios com os respectivos desvio padrão da média.

Tabela III.16

Fonte	$\frac{N_e N_x}{N_c}$ (a)	σ (%)	N_{oe} (b)	σ (%)	Razão	σ (%)
	(cps/g)		e^-/gs		$\frac{P_K + \alpha_K / 1 + \alpha_c}{\alpha_K / 1 + \alpha_c}$	
79016	$1,673 \cdot 10^7$	0,44	$5,789 \cdot 10^6$	0,19	2,890	0,48
79034	$1,674 \cdot 10^7$	0,37	$5,758 \cdot 10^6$	0,19	2,907	0,42
80006	$1,680 \cdot 10^7$	0,42	$5,771 \cdot 10^6$	0,19	2,911	0,46
80020	$1,671 \cdot 10^7$	0,43	$5,781 \cdot 10^6$	0,19	2,890	0,47
80021	$1,659 \cdot 10^7$	0,57	$5,774 \cdot 10^6$	0,19	2,873	0,64
80013	$1,670 \cdot 10^7$	0,61	$5,763 \cdot 10^6$	0,19	2,898	0,64
80008	$1,667 \cdot 10^7$	0,58	$5,796 \cdot 10^6$	0,19	2,876	0,61
80011	$1,657 \cdot 10^7$	0,57	$5,770 \cdot 10^6$	0,19	2,872	0,60
80014	$1,662 \cdot 10^7$	0,47	$5,775 \cdot 10^6$	0,19	2,878	0,51
Média $(1,668 \pm 0,003) \cdot 10^7$			$(5,775 \pm 0,004) \cdot 10^6$		$(2,8883 \pm 0,0049)$	

a) taxa de contagens do sistema 2π (BS)-NaI(Tl)

b) taxa de emissão de elétrons do sistema 4π (PPC)e⁻

O valor de $(P_K + \alpha_K / 1 + \alpha_c) / (\alpha_K / 1 + \alpha_c)$ foi determinado pela média aritmética dos valores obtidos para cada fonte radioativa.

A incerteza atribuída à razão foi calculada pela média quadrática das incertezas de cada valor.

$$\frac{P_K + \alpha_K / 1 + \alpha_c}{\alpha_K / 1 + \alpha_c} = (2,8883 \pm 0,016)$$

IV. ANÁLISE DOS RESULTADOS

IV.1. Padronização do ^{241}Am

Os resultados obtidos na padronização do ^{241}Am , ^{137}Cs e ^{109}Cd pelo sistema proposto neste trabalho serão a seguir comparados com os resultados de medidas feitas em sistemas convencionais.

Os resultados da padronização do ^{241}Am nos sistemas $4\pi(\text{BS})\text{-NaI(Tl)}$ e $4\pi(\text{PC})$ são apresentados na tabela IV.1.

Tabela IV.1

^{241}Am	
Sistema	Atividade Específica
$4\pi(\text{BS})\text{-NaI(Tl)}^a$	$(150,3 \pm 0,3)\text{KBq/g}$
$4\pi(\text{BS})\text{-NaI(Tl)}^b$	$(150,5 \pm 0,3)\text{KBq/g}$
$4\pi(\text{BS})\alpha_{\text{total}}$	$(150,5 \pm 0,3)\text{KBq/g}$

a - variação da eficiência pelo método A

b - variação da eficiência pelo método B

Como se pode observar, os resultados estão em concordância dentro do erro experimental, o que mostra o bom desempenho do sistema proposto, na padronização de nuclídeos emissores alfa-gama.

Além disso, como verificado no item III.1.2.1 a atividade específica independe da distância fonte-detector, permitindo a padronização de soluções com atividade mais alta, bastando o aumento da distância fonte-detector.

IV.2. Padronização do ^{137}Cs

O resultado da padronização do ^{137}Cs é apresentado na tabela IV.2 juntamente com o valor médio da Comparação Internacional⁷¹. O valor médio foi obtido pela média ponderada dos valores de cada laboratório.

Tabela IV.2

^{137}Cs	
	Atividade Específica
2 π (5S)-NaI(Tl)	(604,1 \pm 4,2) KBq/g
Média Ponderada C.I.	(604,48 \pm 2,17)KBq/g

A figura IV.1. mostra o gráfico dos valores da atividade específica da solução de ^{137}Cs determinados por cada laboratório participante da Comparação Internacional.

Ao lado de cada ponto é indicado o método utilizado na padronização.

Para efeito de comparação foi incorporado, a este gráfico, o valor da atividade encontrado pelo sistema proposto neste trabalho.

Pode-se notar que o resultado é bastante satisfatório, já que está muito próximo dos valores obtidos pelos mais renomados laboratórios do mundo, entre os quais citamos o BIPM (Bureau International des Poids et Mesures), o PTB (Physikalisch-Technische

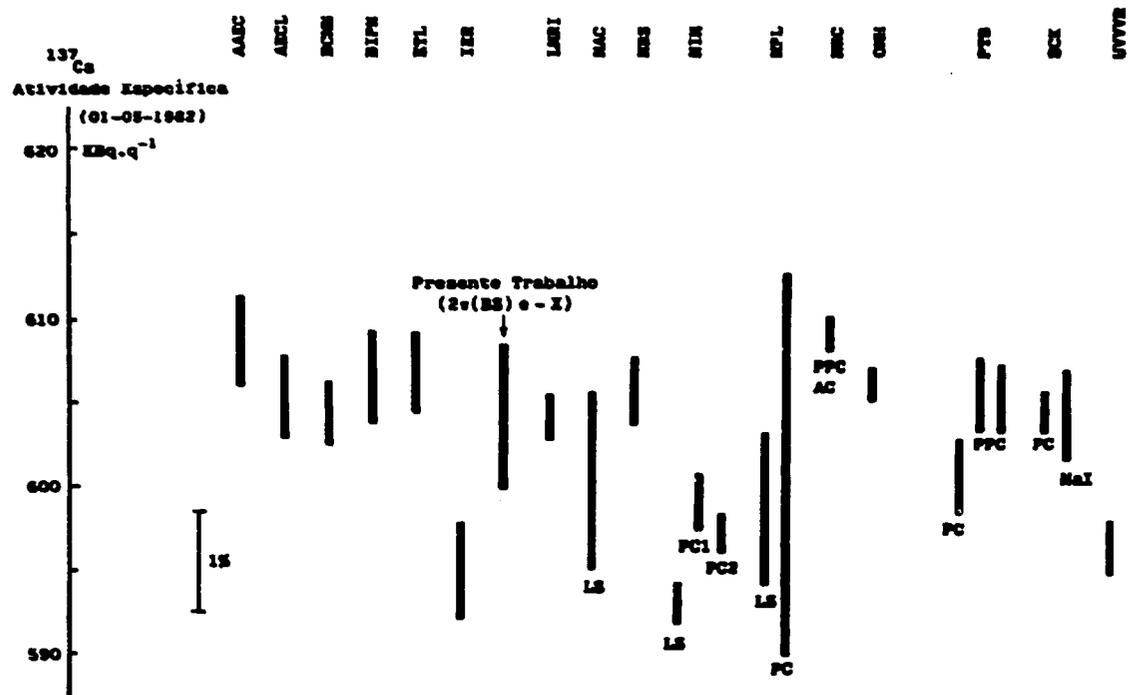


Figura IV.1 Resultados obtidos na comparação internacional do $^{137}\text{Cs}^{71}$ com a incorporação do resultado obtido no presente trabalho. Todos os resultados apresentados na figura, onde não é indicado o método de medida, foram obtidos utilizando um detector proporcional (PC) de geometria 4π.

Bundesanstalt) e NBS (National Bureau of Standards) que padronizaram o ^{137}Cs pelo método do traçador considerado o mais exato atualmente.

A incerteza associada ao nosso resultado, é um pouco maior daquela obtida com o método do traçador, no entanto, em vista da rapidez e facilidade de medida, é considerada aceitável para a calibração de sistemas de medida relativa, como, por exemplo, detectores de Ge(Li).

IV.3. Padronização do ^{109}Cd

O resultado da padronização do ^{109}Cd é apresentado na tabela IV.3, na qual se encontram os valores da atividade específica determinada pelo uso das constantes do esquema de desintegração (figura III.19)¹³ e da constante de Kawada⁴⁶, assim como o valor médio da Comparação Internacional⁶⁹. O valor da comparação internacional foi determinado pela média ponderada dos valores de cada laboratório, incluindo o resultado obtido pela medida no sistema $4\pi(\text{PPC})$, descrito no item III.2.2.1.

Tabela IV.3

^{109}Cd	
	Atividade Específica
$2\pi(\text{BS})\text{-NaI(Tl)}^a$	(5935 \pm 53)KBq/g
$4\pi(\text{BS})\text{-NaI(Tl)}^b$	(5987 \pm 33)KBq/g
Média Ponderada C.I.	(5992 \pm 6)KBq/g

a - constante do esquema de desintegração¹³

b - constante medida por Kawada⁴⁶

Os valores apresentados mostram uma boa concordância entre o resultado obtido no sistema proposto e a média da comparação internacional, principalmente com o resultado obtido pelo uso da constante de Kawada⁴⁶.

A figura IV.2. mostra um gráfico comparativo dos valores da atividade específica da solução de ¹⁰⁹Cd, encontrados pelos vários laboratórios. A este gráfico também foi adicionado o valor obtido pelo sistema 2π(BS)-NaI(Tl).

O resultado do ¹⁰⁹Cd assim como do ¹³⁷Cs é satisfatório, concordando com os valores dos melhores laboratórios.

O resultado do sistema 2π(BS)NaI(Tl) possui uma incerteza maior daquela de sistemas 4π(PPC), entretanto, seu valor é aceitável para calibração de sistemas de medida relativa.

A padronização do ¹⁰⁹Cd no sistema 4πPPC e no sistema 2π(BS)-NaI(Tl) possibilitou a determinação da constante $(P_K + \alpha_K / 1 + \alpha_t) / (\alpha_K / 1 + \alpha_t)$, descrita no item III.2.2.3.2.

O quadro mostra os valores encontrados neste trabalho e por Kawada⁴⁶, concordantes dentro do erro experimental.

	$\frac{P_K + \alpha_K / 1 + \alpha_t}{\alpha_K / 1 + \alpha_t}$
Presente trabalho	2.8883 ± 0,016
Kawada ⁴⁶	2.8859 ± 0,009

Este resultado, juntamente com a padronização do ¹³⁷Cs, descrita no item IV.2, comprova o desempenho do sistema 2π(BS)-NaI(Tl) na padronização de nuclídeos metaestáveis.

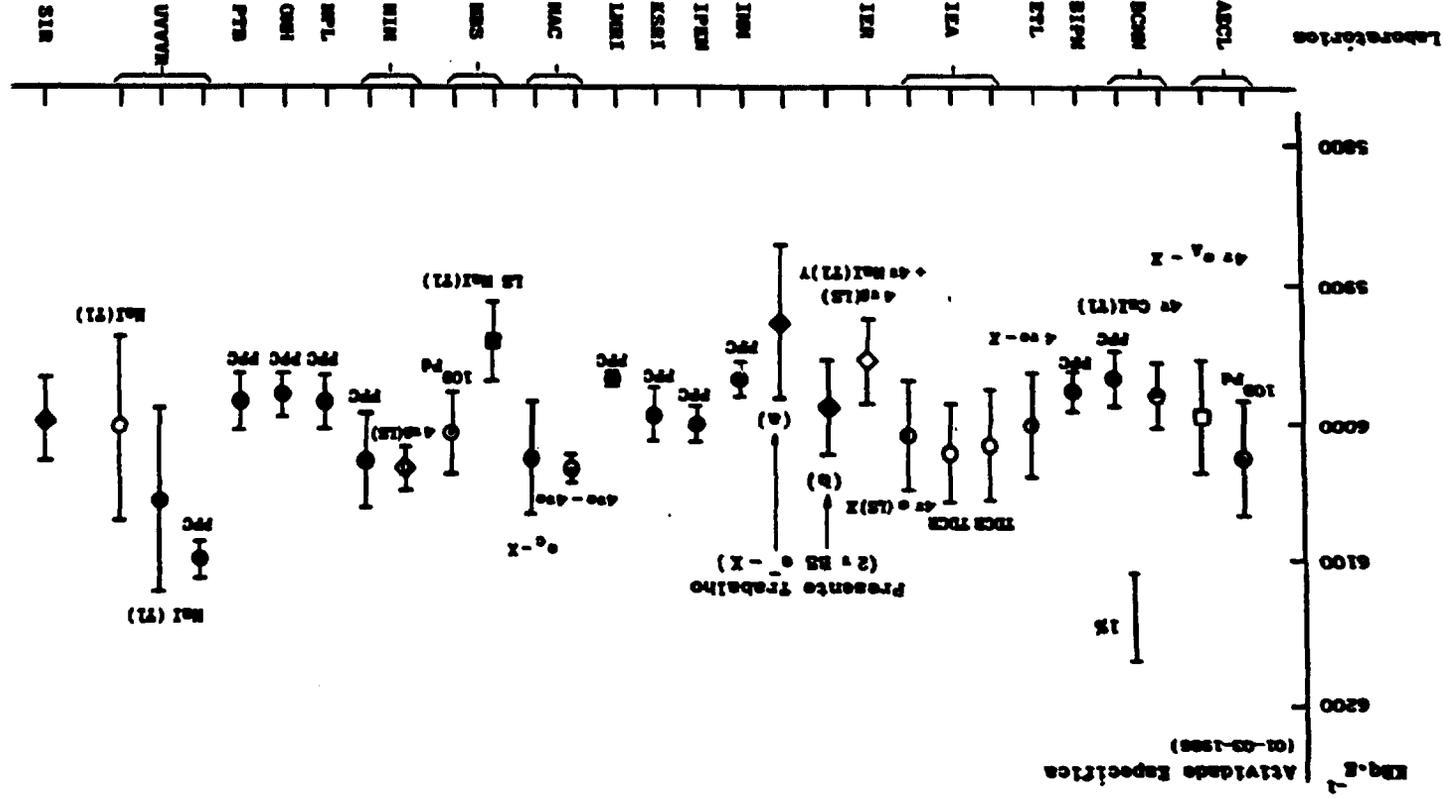


Figura IV.2 Resultados obtidos na comparação internacional de ^{109}Cd com a incorporação dos resultados obtidos no presente trabalho.

V. CONCLUSÕES

O sistema proposto no presente trabalho apresentou desempenho plenamente satisfatório na padronização de radionuclídeos selecionados.

Os resultados obtidos para o ^{241}Am demonstram que o sistema pode ser usado com sucesso na padronização de radionuclídeos que decaem por emissão alfa-gama tendo exatidão comparável a outros sistemas de medida absoluta.

Os resultados para os nuclídeos metaestáveis demonstram que o sistema proposto é uma alternativa válida para a calibração em modo absoluto destes radionuclídeos. Principalmente no caso do ^{137}Cs este sistema possibilita a padronização de um modo mais simples e rápido, visto não necessitar de outro padrão, como no caso do método do traçador, mantendo uma exatidão aceitável para calibração de sistemas de medida relativa como, por exemplo, detectores Ge(Li).

O resultado obtido na determinação da razão $(P_K + \alpha_K / 1 + \alpha_K) / (\alpha_K / 1 + \alpha_K)$ para o ^{109}Cd mostrou a possibilidade de utilizar o sistema proposto na determinação de parâmetros nucleares, quando da sua utilização em conjunto com outros sistemas de medida absoluta.

Um aspecto positivo que pode ser ressaltado em relação ao sistema de coincidência proposto é a possibilidade de medir fontes com atividade suficientemente alta, de modo a serem usadas diretamente para a calibração de detectores de HPGc, Ge(Li) ou NaI(Tl) em eficiência em função da energia do fóton.

Nos sistemas convencionais que utilizam detectores proporcionais em geometria 4π , as atividades das fontes são restritas a valores inferiores a 20kBq, em razão de incertezas no tempo morto do detector. O sistema proposto é capaz de medir fontes com atividades várias ordens de grandeza superiores a este valor bastando, para isso, aumentar a distância fonte-detector.

Algumas perspectivas futuras podem ser apontadas para o sistema desenvolvido no presente trabalho.

Uma delas é a possibilidade de se medir outros radionuclídeos emissores alfa-gama tais como: ^{237}Np e ^{233}U ou outros actinídeos de interesse.

Nos casos onde o radionuclídeo pode ser obtido livre de impurezas radioativas, a medida não envolve grande dificuldade, tendo características semelhantes à padronização do ^{241}Am . No caso da amostra conter impurezas radioativas, é necessário fazer uma investigação para verificar a viabilidade de separação por discriminação eletrônica, aproveitando-se a boa resolução do detetor de barreira de superfície. Esta resolução pode, ainda, ser melhorada operando-se o detetor no vácuo. Esta possibilidade está sendo investigada e um sistema desse tipo será instalado no futuro.

Outros radionuclídeos metaestáveis poderão, também, ser padronizados pelo sistema proposto. Como exemplo podemos citar o $^{99\text{m}}\text{Tc}$ com uma meia vida de 6 horas cujas características se assemelham às do ^{109}Cd .

Há, ainda, outras possibilidades que podem ser investigadas como a obtenção de parâmetros nucleares, tais como razões de probabilidades de captura de conversão de elétrons K, que corresponde ao parâmetro determinado no presente trabalho para o ^{109}Cd .

APÊNDICE

Cálculo da eficiência geométrica pela técnica de Monte Carlo.

O sistema considerado para o cálculo da eficiência geométrica é apresentado de modo esquemático na figura abaixo.

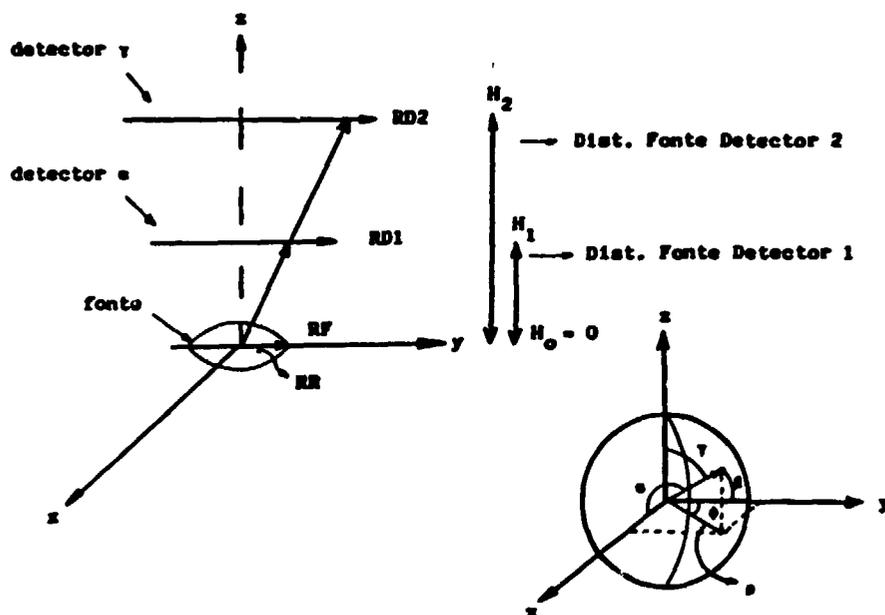


Figura A. Esquema do posicionamento dos detectores alfa e gama em relação à fonte extensa. Sistema de coordenadas utilizado no cálculo.

A fonte considerada é uma fonte extensa isotrópica. Acima da fonte estão posicionados os detectores alfa e gama, respectivamente.

A seleção do ponto de emissão na fonte é calculado por

$$RR = RF \cdot \sqrt{R}$$

$$\phi = \pi(2R-1)$$

com R número aleatório com valores entre [0,1];

RR é o raio do ponto na fonte;

ϕ é o ângulo entre π e $-\pi$ que vai definir a posição do ponto no raio RR.

Teremos, assim, as três coordenadas na fonte dadas em coordenadas cilíndricas como

$$x_0 = RR \cdot \cos \phi$$

$$y_0 = RR \cdot \sin \phi$$

$$z_0 = 0$$

Após a seleção do ponto de emissão da partícula, passa-se à seleção da direção em que esta partícula é emitida.

Seleção de Direção Isotrópica

Na seleção da direção isotrópica é imposto que todas as partículas sejam emitidas apenas para direção de z positivo, já que os dois detectores estão posicionados no eixo de z positivo.

As equações usadas são:

$$w = 2R-1$$

onde R número aleatório;

w é obtido por meio do valor de R, estando compreendido no intervalo [-1,1];

$$\rho = \sqrt{1-w^2}$$

onde ρ dá a posição no plano u e v ;

$$\phi = \pi(2R-1)$$

onde ϕ dá o ângulo da direção no plano uv .

Sendo $u = \rho \cdot \cos \phi$

$$v = \rho \cdot \sin \phi$$

Após a seleção da direção isotrópica, passa-se à determinação se a partícula incidente é emitida dentro do ângulo sólido do detetor, de maneira a ser detetada, isto é, feito pela verificação do ponto no detetor, isto é, em $(Z-H_1)$.

O ponto no detetor é dado por

$$x = x_0 + ul$$

$$y = y_0 + vl$$

$$z = z_0 + wl \quad \text{com } z_0 = 0 \quad \text{e } z_1 = H_1$$

sendo $l = \frac{H_1}{W}$

$$\text{Então } x_1 = x_0 + \frac{uH_1}{w}$$

$$y_1 = y_0 + \frac{vH_1}{w}$$

Para que seja considerado detetado o ponto no plano do detetor, deverá estar dentro do raio do detetor de modo que a condição de deteção é dada por

$$\begin{aligned} x_1^2 + y_1^2 &\leq RD1^2 && \text{detetado} \\ x_1^2 + y_1^2 &> RD1^2 && \text{não detetado.} \end{aligned}$$

Obtém-se, assim, o número de partículas detetadas e, conseqüentemente, a eficiência que é dada pela razão do número de detetados pelo número total.

A eficiência no detetador gama é obtida de modo análogo, sendo que a seleção do ponto de emissão na fonte é a mesma, porém as direções de emissão são diferentes para cada detetador. Assim considera-se duas radiações, uma alfa e outra gama, emitidas simultaneamente em direções diferentes.

Para a posição no detetador gama teremos

$$\begin{aligned} x &= x_0 + u1 \\ y &= y_0 + v1 \\ z &= z_0 + w1 \quad \text{com} \quad z_0 = 0 \quad \text{e} \quad z_2 = H2 \end{aligned}$$

$$e \quad l = \frac{H2}{w}$$

$$\text{Ficando } x_2 = x_0 + \frac{uH2}{w}$$

$$y_2 = y_0 + \frac{vH2}{w}$$

A condição de detecção será dada por

$$\begin{aligned} x_2^2 + y_2^2 &\leq RD2^2 && \text{detetado} \\ x_2^2 + y_2^2 &> RD2^2 && \text{não detetado} \end{aligned}$$

A eficiência de coincidência é obtida pelo número de eventos detetados simultaneamente no detetor 1 e no detetor 2, pelo número total de histórias.

O termo de eficiência é determinado pela razão entre o produto das eficiências de cada detetor e a eficiência de coincidência.

$$T_c = \frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_c} = \frac{\bar{\epsilon}_1 \bar{\epsilon}_2}{\bar{\epsilon}_c}$$

onde: ϵ_1 é o número de eventos detetados no detetor e dividido pelo número de histórias;

ϵ_c é o número de eventos simultâneos (coincidências) dividido pelo número de histórias.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

01. Adams, R.J. & Baerg, A.P. Least-square polynomial fitting of coincidence counting data for the evaluation of absolute desintegration rates. In: International Atomic Energy Agency. *Standardization of radionuclides: proceedings of a symposium on... held in Vienna, 10-14 October 1966*. Vienna, 1967, p.123-127.
02. Baerg, A.P. Absolute measurement of radioactivity. *Metrologia*, 3(4):105-108, 1967.
03. Baerg, A.P. Measurement of radioactive desintegration rate by the coincidence method. *Metrologia*, 2(1):23-32, 1966.
04. Baerg, A.P. Pressurized proportional counters for coincidence measurements. *Nucl.Inst.Meth.*, 112:95-99, 1973.
05. Baerg, A.P. Variation on the paired source method of measuring dead time. *Metrologia*, 1(3):131-133, 1965.
06. Baerg, A.P.; Meghir, S.; Bowes, G.C. Extension of the efficiency tracing method for the calibration of pure β -emitters. *Int.J.Appl. Radiat.Isot.*, 15: 279-287, 1964.
07. Ballaux, C. Standardization of ^{137}Cs - Some remarks on the efficiency function. *Int.J.Appl. Radiat.Isot.*, 34(8):1159-1166, 1987.
08. Ballaux, C. & Hutchinson, M.R. Measurement of the gamma-ray emission rate of ^{109}Cd with a well-type NaI(Tl) detector. *Appl.Radiat. Isot.*, 37(9):923-928, 1986.
09. Bambynek, W. In: *Decay data of the transactinium nuclides*. Technical Reports Series n^o 261, IAEA, Vienna: 128, 1986.
10. Bambynek, W. Precise solid-angle counting. In: International Atomic Energy Agency. *Standardization of radionuclides: proceedings of a symposium on... held in Vienna, 10-14 October, 1966*. Vienna, 1967. p. 373-383.
11. Barr, A.J.; Goodnight, J.H.; Sall, J.P. SAS Institute Inc., Post Office Box 10066, Raleigh, North Carolina 27605, U.S.A..
12. Bertolini, G. & Coche, A. *Semiconductor Detectors*. Amsterdam, North Holland, 1968.
13. Blachot, J. Nuclear Data for A-109. *Nuclear Data Sheets*, 41(2):111 168, 1984.

14. Blankenship, J.L. & Borkowski, G.J. Silicon surface-barrier nuclear particle spectrometer. *I.R.E. Transct.on Nucl.Scienc.*, 7(2-3):190-195, 1960.
15. Brauer, F.P. In: *Decay data of the transactinium nuclides*. Technical Report Series n° 261, IAEA, Vienna:83, 1986.
16. Bryant, J. Coincidence counting corrections for dead-time loss and accidental coincidences. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 14: 143-151 1963.
17. Campion, P.J. Procedures for accurately diluting and dispensing radioactive solutions. Bureau International de Poids et Mesures, 1975, (Monografie BIPM-1).
18. Campion, P.J. The standardization of radioisotopes by the beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors *Int.J.Appl. Radiat.Isot.*, 4: 232-248, 1959.
19. Campion, P.J.; Taylor, J.G.V.; Merrit, J.S. The efficiency tracing technique for eliminating self-absorption errors in $4\pi\beta$ -counting *Int.J.Appl.Radiat.Isot.*, 8: 8-19, 1960.
20. Cashwell, E.D. & Everett, C.J. *A practical manual on the Monte Carlo method for random walk problems*. New York, Pergamon Press, 1959
21. Christmas, P. & Cross, P. The decay of ^{137}Cs determined by β -ray spectrometry. *Metrologia*, 14: 157-166, 1978.
22. Chylinski, A. & Radoszewski, T. Standardization of ^{109}Cd by a $4\pi(\text{LS})\epsilon$ -X coincidence method. *Int. J. Appl. Inst. Part A*, 38(10): 777-780, 1987.
23. Coursol, N.; Lagoutine, F.; Chauvenet, B. Measurements and evaluation of decay data of fission products. *Int.J.Appl.Inst. Part A*, 34(8):1265-1268, 1983.
24. Cox, D.R. & Isham, V. A bivariate point process connected with electronic counters. *Proc. Roy. Soc. A*, 356: 149-160, 1977.
25. Dearnaley, G. & Northrop, D.C. *Semiconductor counters for nuclear radiations*, London, E & F.N. Spon 2^e ed. 1966.
26. Dearnaley, G. & Whithehead, A.B. The semiconductor surface barrier for nuclear particle detection. *Nucl. Instr. Meth.*, 12: 205-226, 1961.

27. Denecke, B. Measurement of the 59.6 keV gamma-ray emission probability in the decay of ^{241}Am with a $4\pi\text{CS(Tl)}$ sandwich spectrometer *Int.J.Radiat.Appl.Inst. Part A.*, 10: 823-830, 1987.
28. Dias, M.S. & Koskinas, M.F. Medida absoluta da taxa de desintegração do ^{109}Cd . In: Sociedade Brasileira de Física. IX Reunião de Trabalho sobre Física Nuclear no Brasil, realizada em Caxambu, Minas Gerais, 30 de agosto-03 de setembro, 1986.
29. Eijk, W. vander; Oldenhof, W. & Zehner, W. Preparation of thin sources, a review. *Nucl.Instr.Meth.*, 112: 343-351, 1973.
30. Eldridge, J.S. & Crowther, P. Absolute determination of ^{125}I in clinical applications. *Nucleonics*, 22(6):56-59, 1964.
31. Ellis-Akovioli, Y.A. Nuclear data for A-241. *Nuclear Data Sheets*, 44: 441-447, 1985.
32. Friedland, S.s.; Mayer, J.W. & Wiggins, J.J. The solid-state ionization chamber. *TRE Transct.n Nucl.Scienc.*, 7(2-3):181-185, 1960.
33. Funck, E. Corrections from extending dead time with activity measurements on radionuclides decaying via metastable states. *Nucl.Instr.Meth. in Phys. Research A.*, 236: 363-367, 1985
34. Funck, E. & Nylandstedt, L. The influence from low energy X-ray and Auger electrons on $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence measurements of electron capture - decaying nuclides. *Int.J.Appl.Radiat.Isot.*, 34(3):565-569, 1983.
35. Funck, E.; Schötzig, V. & Walz, K.F. Standardization and decay data of ^{169}Yb . *Int.J.Appl.Radiat.Isot.*, 34(8):1215-1224, 1983.
36. Gandy, A. Mesure absolue de l'activité des radionuclides par la méthode des coïncidences beta-gamma à l'aide de détecteurs de grand efficacité - Corrections de temps morts. *Int.J.Appl.Radiat.Isot.*, 13: 501-513, 1962.
37. Gandy, A. Mesure absolue de l'activité des radionuclides par la méthode des coïncidences $\beta\text{-}\gamma$ étude d'une méthode de correction automatique des erreurs instrumentales. *Int.J.Appl.Radiat.Isot.*, 14: 385-396, 1963.
38. Gandy, A. Mesure absolue de l'activité des radionuclides par la méthode des coïncidences beta-gamma à l'aide de détecteurs de grand efficacité - Étude des coïncidences instrumentales. *Int. J. Appl.Radiat.Isot.*, 11 : 75-91, 1961.

39. Gils, H.J.; Flothmann, D.; Lohken, R. & Wiesner, W. A $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence spectrometer using Si(Li) and NaI(Tl) detectors. *Nucl.Inst.Meth.*, **105**: 179-188, 1972.
40. Hoppes, D.D. & Schima, F.J. Nuclear data for efficiency calibration of germanium spectrometer systems. *Int.J.Appl.Radiat.Isot.*, **34**(2): 491-492, 1983.
41. Houthermans, H. & Miguel, M. $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence counting for the calibration of nuclides with complex decay schemes. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **13**: 137-142, 1962.
42. Hutchinson, J.M.R. & Mullen, P.A. Standardization and ground-state branching of selenium-75. *Int.J.Appl.Radiat.Isot.*, **27**: 47-50.
43. Hutchinson, J.M.R.; Mann, W.B. & Mullen, P.A. Development of the National Bureau of Standards Low-Energy - Photon emission rate radioactivity standards. In: ERDA. *X and gamma-ray: proceeding of a symposium on... held in Ann Arbor, 19-21 May, 1976*. MI. 1976, p. 25-28.
44. Hutchinson, J.M.R.; Mann, W.B. & Mullen, P.A. Sum-peak counting with two crystals. *Nucl.Inst.Meth.*, **112**: 187-196, 1973.
45. Kawada, Y. Counting errors in radioactivity measurements by the efficiency tracing technique. *Int.J.Appl.Radiat.Isot.*, **16**: 371-375, 1965.
46. Kawada, Y. Extended applications and improvement of the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence method in the standardization of radionuclides. *Res. of ETL. Japan*, 1972: 66-71. (ETL-730).
47. Knoll, G.F. *Radiation detection and measurement*. New York, John Wiley & Sons, 1979.
48. Lagoutine, F.; Coursol, N. & Legrand, J. *Table des radionuclides. France, Commissariat Energie Atomique, 1982 (CEA-LMRI-1982)*.
49. Legrand, J.; Blondel & M. Magnier, P. High-pressure 4π proportional counter for internal conversion electron measurements (^{138}Ce , ^{109}Cd , $^{99\text{m}}\text{Tc}$). *Nucl.Inst.Meth.*, **112**: 101-102, 1973.
50. Legrand, J.; Perolat, J.P.; Lagoutine, F.; & Le Gallic, Y. *Table of radionuclides Pt-1. Saclay, Centre d'Études Nucléaires, 1974*.
51. Lucas, L.L. The standardization of alpha particle sources. In: American Society for Testing and Materials. *Effluent and environmental radiation Surveillance: proceedings of an international symposium... held... in Johnson, Vermont, 9-14 July, 1978*, New York, 1980 p. 342-354.

52. Malonda, A.G. & Coursey, B.M. Standardization of isomeric transition radionuclides by liquid-scintillation efficiency tracing with Hydrogen-3. Application to technetium - 99m. *Int.J.Appl.Radiat. Inst. Part A.*, **38**(9): 695-700, 1987.
53. Mann, W.B. Needs for radioactivity standards and measurements. *Int. J.Appl.Radiat.Isot.*, **34**(8): 1041-1046, 1983.
54. Mann, W.B. & Hutchinson, J.M.R. The standardization of iodine - 129 by beta-photon coincidence counting. *Int.J.Appl.Radiat.Isot.*, **27**: 187-188, 1976.
55. Mannhart, W. & Vonack, H. Absolute calibration of a well-type NaI - Detector to an accuracy of 0.3-0.1%. *Nucl.Inst.Meth.*, **136**:109-117 1976.
56. Martin, M.J. & Blichert-Toft, P.H. Radioactive atoms. *Nucl.Data Tab A8*: 1-198, 1970.
57. Martin, R.H. & Taylor, J.G.V. Standardization of ^{109}Cd by a $4\pi(\text{PC})\text{e-X}$ coincidence method. *Int. J. Appl. Radiat.Inst. Part A.*, **38**(10): 781-786, 1987.
58. Merrit, J.S. Present status in quantitative source preparation. *Nucl.Inst.Meth.*, **112**: 325-332, 1973.
59. Merrit, J.S. & Gibson, F.H. Standardization of ^{137}Cs by the $4\pi(\text{PC})\text{-}\gamma$ efficiency-tracing method with ^{134}Cs as traces., Chalk River, Canada, Atomic Energy Canada Limittee, 1978. (AECL-6203).
60. Merrit, J.S.; Rutledge, A.R. & Smith, L.V. Measurement of the probability for 909 keV γ -ray emission following the decay of ^{86}Sr *Int.J.Appl.Radiat.Isot.*, **33**: 77-78, 1982.
61. Miller, G.L.; Brown, W.L.; Donovan, P.F.; Mackintosh, I.M. Silicon p-n function radiator detectors. *I.R.E. Transct. on Nucl. Scien.*, **7**(2-3):185-189, 1960.
62. Milojevic, A. Some remarks on the development of metrology. *Nucl. Inst.Meth.*, **112**: 1-3, 1977.
63. Moura, L.P. *Método de coincidência generalizado para medida absoluta de atividade de radionuclídeos. Aplicação na determinação do coeficiente de conversão interna da transição de 279 keV do ^{203}Tl .* Campinas, 1969. (Tese de doutoramento, Universidade de Campinas)
64. Müller, J.W. Dead-time problems. *Nucl.Inst.Meth.*, **112**: 47-57, 1973

65. National Council on Radiation Protection and Measurements. *Handbook of radioactivity measurements procedures*. Report n° 58, Nov, 1978.
66. Pérolat, J.P. Some special problems in coincidence measurement. *Nucl.Inst.Meth.*, 112: 179-185, 1973.
67. Pugliese, R. *Sistema de coincidência para medida absoluta de atividade de radionuclídeos empregando cintilador líquido*. São Paulo, 1978. (Dissertação de Mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares). (IEA-DT-118).
68. Plch, J.; Zderadicka, J.; Kokta, L. Coincidence methods of standardization for ^{131}Cs and measurement of decay parameters. *Inst.J.Appl.Radiat.Isot.*, 25: 433-444, 1974.
69. Ratel, G. *International comparison of activity measurements of a solution of ^{109}Cd* . (March 1986). Sèvres, France, Bureau International des Poids et Mesures, 1987 (CCE MRI (II)/87-7).
70. Renner, C. Comunicação pessoal.
71. Rytz, A. *International comparison of activity measurements of a solution of ^{137}Cs* (May, 1982). Sèvres, France, Bureau International des Poids et Mesures. (1983) (BIPM-82/14).
72. Sahagia, M. Some practical application of tracing and extrapolation methods in absolute. Standardization. *Isotopen praxis*, B.d. 17, H5: 211-213, 1980.
73. Schrader, H. & Walz, K.F. Standardization of ^{125}I by photon-photon coincidence counting and efficiency extrapolation. *Int. J. Appl. Radiat.Inst.*, 38(10): 763-766, 1987.
74. Siegbahn, K. *Alpha, beta and gamma ray spectroscopy.*, Amsterdam, North Holland, 1965, vol. 1.
75. Smith, D. Improved correction formulae for coincidence counting. *Nucl.Inst.Meth.*, 152: 505-519, 1978.
76. Smith, D. Some developments in the Cox-Isham theory to coincidence corrections, including the extension to the computer-discrimination method. *Int.J.Appl.Radiat.Inst. Part A.*, 38(10):813-822,1987
77. Smith, D. & Chen, Y. The $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence method for parent-daughter decay in non-equilibrium: The measurement of the disintegration rates. *Nucl.Inst.Meth. in Phys. Research A.*, 236:321-329, 1985.
78. Spornol, A.; Vatin, R. & Blauchis, P. Coincidence counting of I-129. Some remarks on the efficiency of a methane 4π -counter to 32 keV photons. *Int.J.Appl.Radiat.Isot.*, 28:615-524, 1977.

79. Takiue, M. & Ishihawa, H. Absolute measurement of internal conversion electrons with a liquid scintillation spectrometer. *Nucl.Inst Meth.*, 164: 343-347, 1979.
80. Taylor, J.G.V. The total internal conversion coefficient of the 279 keV transition following the decay of ^{203}Hg as measured by a new coincidence method. *Canad.J.Phys.*, 40(4): 383-392, 1962.
81. Taylor, J.G.V. X-ray - X-ray coincidence counting methods for the standardization of ^{125}I and ^{197}Hg . In: International Atomic Energy Agency. *Standardization of radionuclides: proceedings of a symp. on... held in Vienna, 10-14 October 1966*. Vienna, 1967, p. 341-353.
82. Troughton, M.E.C. A method for measuring the nuclear transformation rate of ^{109}Cd . *Int.J.Appl.Radiat.Isot.*, 28: 773-780, 1973.
83. Vaninbroukx, R. In: *Decay data of the transactinium nuclides*. Technical Reports Series n° 261, IAEA. Vienna 127, 1986.
84. Vaninbroukx, R. Present status in the field of precision liquid scintillation counting. *Nucl.Inst.Meth.*, 112: 111-116, 1973.
85. Vatin, R. The use of liquid scintillation in radionuclide metrology In: *The application of liquid-scintillation counting to radionuclide metrology*. Sèvres, France, Bureau International de Poids et Mesures, 1980. (Monographie BIPM-3).
86. Vatin, R. & Chauvenet, B. Direct measurement of xenon-127 with a 4π - γ detector. *Int.J.Appl.Radiat.Inst. Part A.*, 38(10): 767-770, 1987.
87. Walter, F.J. & Boshart, R.R. Low background counting of betas and alphas with silicon detectors. *Nucl.Inst.Meth.*, 42: 1-14, 1966.
88. Williams, A. An estimation of the inherent accuracy of the tracer technique for measurements of disintegration rate. *Int. J. Appl. Radiat.Isot.*, 15: 809-712, 1964.
89. Williams, A. & Campion, P.J. Measurement of the γ -sensitivity of a $4\pi\beta$ -counter. *Int.J.Appl.Radiat.Isot.*, 14: 533-540, 1963.
90. Williams, A. & Campion, P.J. On the relative time distribution of the pulses in the $4\pi\beta$ - γ coincidence technique. *Int.J.Appl.Radiat. Isot.*, 16: 555-560, 1965.
91. Williams, A.; Hughes, F.H. & Campion, P.I. Systematic errors in $4\pi\beta$ - γ coincidence measurements. *Metrologia*, 4(4): 178-180, 1968.
92. Wyllie, H.A.; Johnson, E.P. & Lowenthal, G.C. A procedure for stirring aliquots of radioactive solutions when making thin 4π counting sources. *Int.J.Appl.Radiat.Isot.*, 21: 497, 1970.