



AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**PADRONIZAÇÃO DOS RADIONUCLÍDEOS MULTI-EMISSORES
GAMA ^{166m}Ho E ^{72}Ga E DETERMINAÇÃO DE SUAS
INTENSIDADES GAMA POR DECAIMENTO**

DENISE SIMÕES MOREIRA

Tese apresentada como parte dos requisitos para obtenção do Grau de Doutor em Ciências na Área de Tecnologia Nuclear - Aplicações.

Orientadora:
Dra. Marina Fallone Koskinas

**São Paulo
2005**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia Associada à Universidade de São Paulo

**PADRONIZAÇÃO DOS RADIONUCLÍDEOS MULTI-EMISSORES GAMA
 ^{166}Ho E ^{72}Ga E DETERMINAÇÃO DE SUAS INTENSIDADES GAMA POR
DECAIMENTO**

DENISE SIMÕES MOREIRA



Tese apresentada como parte dos requisitos para obtenção do grau de Doutor em Ciências na Área de Tecnologia Nuclear – Aplicações.

Orientadora:

Dra. Marina Fallone Koskinas

São Paulo

2005

**PADRONIZAÇÃO DOS RADIONUCLÍDEOS MULTI-EMISSORES GAMA
 ^{166m}Ho E ^{72}Ga E DETERMINAÇÃO DE SUAS INTENSIDADES GAMA POR
DECAIMENTO**

Denise Simões Moreira

RESUMO

No presente trabalho, foram padronizados os radionuclídeos multi-emissores gama ^{166m}Ho e ^{72}Ga em sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$. Este sistema é composto por um contador proporcional a gás fluente, acoplado a um par de cristais cintiladores de NaI(Tl). A atividade dos dois radionuclídeos foi obtida selecionando-se dois intervalos de energia gama: (629,9 + 834,2) keV e (2201,6 + 2507,7) keV para o ^{72}Ga , e 184,4 keV e (711,7 + 830,5) keV para o ^{166m}Ho . Para as medidas dos dois radionuclídeos foi aplicada a metodologia, recentemente desenvolvida pelo LMN (Laboratório de Metrologia Nuclear), da simulação dos processos de detecção no sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ utilizando o código de Monte Carlo (MCNP). O comportamento da curva de extrapolação prevista pelo cálculo foi comparada com os dados experimentais, estando os resultados obtidos em bom acordo, dentro da incerteza experimental. Foram também medidas as probabilidades de emissão por decaimento dos gamas mais intensos do ^{166m}Ho e ^{72}Ga . As medidas foram feitas no sistema de espectrometria com detector de germânio HPGe, calibrado com fontes-padrão de ^{57}Co , ^{60}Co , ^{54}Mn , ^{133}Ba , ^{24}Na , ^{152}Eu e ^{241}Am , padronizadas no sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$. As incertezas envolvidas foram determinadas pela metodologia de matriz de covariância.

**STANDARDIZATION OF RADIONUCLIDES MULTI-GAMMA EMITTERS
^{166m}HO AND ⁷²GA AND DETERMINATION OF ITS GAMMA INTENSITIES BY
DECAY**

Denise Simões Moreira

ABSTRACT

In the present work, the multi-gamma emitters ^{166m}Ho and ⁷²Ga have been measured by 4πβ-γ coincidence technique. The calibration system is composed of a 4π gas-flow proportional counter coupled to a pair of NaI(Tl) crystals. Both radionuclides were measured by using two gamma discrimination windows, namely (629.9 + 834.2) keV and (2201.6 + 2507.7) keV for ⁷²Ga and 184.4 keV and (711.7 + 830.5) keV for ^{166m}Ho. The methodology recently developed by LMN (Laboratório de Metrologia Nuclear) for simulating all detection processes in a 4π(β,X)-γ coincidence system by means of the Monte Carlo technique was applied to the measurements of both radionuclides, and the predict behavior extrapolation curve was compared with the experimental data. The results obtained were in good agreement within the experimental uncertainty. The emission probabilities per decay of the most intense γ-ray in the decay of ^{166m}Ho and ⁷²Ga were measured by means HPGGe spectrometer system, which was previously calibrated with standard sources of ⁵⁷Co, ⁶⁰Co, ⁵⁴Mn, ¹³³Ba, ²⁴Na, ¹⁵²Eu and ²⁴¹Am previously standardized in the 4πβ-γ system. All the uncertainties involved were treated rigorously, by means of covariance analysis.

“Toda a nossa ciência, comparada com a realidade, é primitiva e infantil — e, no entanto,
é a coisa mais preciosa que temos.”

Albert Einstein (1879 - 1955)

Agradecimentos:

À Dra. Marina Fallone Koskinas, orientadora deste trabalho, pela oportunidade, apoio, paciência e dedicação oferecidos para o desenvolvimento desta tese;

Ao Dr. Mauro da Silva Dias pelo suporte técnico e sugestões na realização deste trabalho;

Ao Sr. Maurício Marques e MSc. Yone M. Yamazaki pelo auxílio técnico na preparação das amostras;

Aos amigos Kátia A. Fonseca, Cláudia R. Ponge e Mauro Takeda pela amizade, incentivo e colaboração;

Ao Dr. Rajendra N. Saxena, gerente do Centro do Reator de Pesquisas(CRPq), pela oportunidade oferecida para realização deste trabalho;

Aos operadores do reator IEA-R1 pela colaboração nas irradiações efetuadas;

Ao Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes, pelo fornecimento das soluções radioativas de ^{54}Mn e $^{166\text{m}}\text{Ho}$;

Ao Sr. José Antonio Seneda, pela colaboração nos testes de dissolução do Ga_2O_3 .

Aos colegas do Laboratório de Metrologia Nuclear que de alguma forma colaboraram na execução deste trabalho;

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, na pessoa do Superintendente Dr. Cláudio Rodrigues, pela possibilidade oferecida para o desenvolvimento deste trabalho;

Aos meus pais que sempre apoiaram e incentivaram com muito carinho meus muitos anos de estudo;

Ao meu marido Nelson, pelo apoio incondicional, incentivo, carinho e paciência oferecidos ao longo da realização deste trabalho;

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico pela concessão de bolsa de estudos;

A todos que de uma forma ou de outra colaboraram na execução deste trabalho.

SUMÁRIO

	Página
INTRODUÇÃO	1
1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS	5
1.1. O decaimento radioativo.....	5
1.1.1. Desintegração β	6
1.1.2. Captura eletrônica (EC).....	7
1.1.3. Emissão de partículas α	7
1.1.4. Emissão gama.....	7
1.1.5. Rearranjo eletrônico.....	9
1.2. Interação dos fótons com a matéria.....	11
1.3. Medida absoluta da atividade: Método de coincidências.....	13
1.3.1. Técnica da extrapolação linear da eficiência.....	14
1.4. Espectrometria X e γ	18
1.5. Formação de espectros.....	20
1.6. Análise de espectros.....	21
1.7. Probabilidade de emissão gama por decaimento.....	23
1.8. Análise de incertezas: Método de análise de covariâncias.....	24
2. PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS EM SISTEMA DE COINCIDÊNCIA	
$4\pi\beta-\gamma$	26
2.1. Arranjo experimental dos sistemas de coincidências 4π (PC)-NaI(Tl).....	26
2.1.1. Detector proporcional com geometria 4π	28
2.1.2. Cristal Cintilador de NaI(Tl).....	30
2.1.3. Sistema eletrônico associado.....	30
2.2. Preparação das fontes para medida no sistema de coincidência.....	34
2.3. Método para análise das medidas.....	35

2.3.1. Correção para tempo morto.....	36
2.3.2. Correção para radiação de fundo.....	36
2.3.3. Correção para decaimento radioativo.....	37
2.3.4. Correção para coincidências acidentais ou espúrias.....	37
2.4. Padronização do ^{166m}Ho	38
2.5. Padronização do ^{54}Mn	43
2.6. Padronização do ^{72}Ga	44
2.7. Simulação da curva de extrapolação linear da eficiência pelo método de Monte Carlo.	48
3. ESPECTROMETRIA X E GAMA COM DETECTOR SEMICONDUTOR DE HPGe.....	51
3.1. Calibração do espectrômetro em eficiência.....	52
3.2. Sistema de medida com detector semicondutor de HPGe.....	53
3.3. Métodos para análise dos espectros.....	56
3.3.1. Método de integração numérica.....	56
3.3.2. Método de ajuste de funções.....	58
3.4. Correções Aplicadas.....	59
3.4.1. Fator Geométrico e de Atenuação.....	59
3.4.2. Tempo Morto.....	59
3.4.3. Efeito soma.....	60
3.5. Curva de calibração do espectrômetro HPGe.....	60
4. RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	65
4.1. Padronização do ^{166m}Ho	65
4.1.1. Aplicação da simulação das curvas de extrapolação na padronização do ^{166m}Ho	71
4.2. Padronização do ^{54}Mn	74
4.3. Padronização do ^{72}Ga	76
4.3.1. Resultados da primeira irradiação.....	79
4.3.2. Resultados da segunda irradiação.....	83
4.3.3. Análise das duas irradiações em conjunto.....	87
4.3.4. Aplicação da simulação das curvas de extrapolação na padronização do ^{72}Ga	88

4.5. Determinação de probabilidades de emissão X e gama.....	91
4.5.1 Probabilidades de emissão X e gama do ^{166m}Ho	91
4.5.2. Probabilidades de emissão gama do ^{72}Ga	94
5. CONCLUSÕES.....	97
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	99
ANEXO 1 - Laboratórios participantes da comparação internacional do ^{166m}Ho.....	104
ANEXO 2 - Laboratórios participantes da comparação internacional do ^{54}Mn.....	105
ANEXO 3 – Tabela dos dados calculados na simulação da curva de extrapolação da eficiência para o ^{166m}Ho.....	106
ANEXO 4 – Tabela dos dados calculados na simulação da curva de extrapolação da eficiência para o ^{72}Ga.....	111

INTRODUÇÃO

A metrologia, seja ela convencional ou nuclear, sempre esteve ligada à medidas de precisão e à procura de melhorias neste campo, visando a confiabilidade dos resultados obtidos.

Nas últimas décadas, o reconhecimento de sua importância vem crescendo cada vez mais em função do desenvolvimento de altas tecnologias e no reconhecimento de que muitas decisões importantes em diversos campos do conhecimento devem ser feitas com base na confiabilidade dos resultados apresentados, isto é, em dados precisos.

Além disso, a procura de melhoria e confiabilidade tem dirigido o mundo em direção ao chamado “sistema da qualidade” o que leva também à necessidade de laboratórios acreditados e à utilização de dados cada vez mais bem determinados e com menores incertezas garantindo as medidas efetuadas.

No campo específico da metrologia nuclear, um dos interesses está na determinação precisa dos parâmetros nucleares que são utilizados nas determinações das quantidades radioativas empregadas na indústria, na agricultura, na proteção ao meio ambiente, na medicina, etc.

A maior parte dos radionuclídeos utilizados na indústria e em medicina são emissores gama por serem mais fáceis de identificar e quantificar, sendo que, no segundo caso, cada vez mais são empregados radionuclídeos emissores gama de baixa energia, que ocasionam menos danos aos pacientes.

Os métodos de medida são, em geral, métodos relativos que comparam as medidas de interesse com padrões de referência. Neste tipo de medidas o ideal é que os padrões sejam do mesmo radionuclídeo utilizado. Entretanto, como na prática não existem padrões que permitam esta comparação direta, são empregados sistemas calibrados que possibilitam a inferência das medidas.

No caso de emissores gama, os sistemas denominados espectrômetros são os mais utilizados por serem facilmente adaptados à situações rotineiras e necessitarem de pouca

instrumentação. No entanto, é necessário que além de sua calibração em eficiência, alguns parâmetros nucleares dos radionuclídeos empregados sejam conhecidos com boa exatidão, uma vez que a incerteza nesses parâmetros influi diretamente nos resultados finais^[1].

No campo da espectrometria gama os detectores mais utilizados são os cristais cintiladores de NaI(Tl) devido à sua alta eficiência de detecção e os cristais semicondutores de germânio e de silício que apresentam melhor poder de resolução em energia.

Atualmente há vários tipos de detectores semicondutores construídos em diferentes geometrias e formas dependendo da sua aplicação.

Os mais utilizados são os detectores semicondutores de germânio hiper-puro. Destes, dois tipos podem ser destacados, os detectores que medem fótons na faixa de 30keV a 3 MeV e aqueles que são confeccionados com janelas de berílio e permitem a detecção de fótons no intervalo de 3 keV a 3 MeV.

Com relação aos padrões radioativos empregados na calibração em eficiência destes espectrômetros, no intervalo de 240 keV a 1500 keV a curva de eficiência apresenta um comportamento bem linear e há vários radionuclídeos que podem ser utilizados, seja mono-emissores como o caso do ^{54}Mn , ^{137}Cs e ^{60}Co ou multi-emissores como ^{152}Eu e ^{133}Ba com parâmetros como meia-vida e probabilidade de emissão gama bem estabelecidos, fornecendo um bom número de pontos de calibração.

No intervalo de energia de 1500 a 3000 keV, o comportamento da curva de calibração é também linear sendo utilizados como padrões primários o ^{88}Y e o ^{24}Na .

Já na faixa abaixo de 240 keV a curva de eficiência muda o seu comportamento devido às características dos detectores e a quantidade de pontos de calibração é limitada e os dados disponíveis apresentam discrepâncias e desvios importantes comprometendo sua utilização.

Em face a este quadro, o estudo e reavaliação dos parâmetros de radionuclídeos gama emissores com energias nesta faixa se faz necessária.

O Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN(LMN), desde sua criação desenvolve métodos de padronização de radionuclídeos utilizando os sistemas de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ tendo participado das principais comparações internacionais patrocinadas pelo Bureau des Poids et Mesures (BIPM) da França, dos últimos anos, garantindo a rastreabilidade e a confiabilidade de seus resultados.

Vários fatores como geometria da medida ou tipo de fonte radioativa podem afetar a qualidade das medidas feitas com espectrômetros de raios gama, todavia a precisão das medidas depende invariavelmente da precisão da eficiência de detecção e portanto da precisão dos dados do esquema de decaimento dos radionuclídeos utilizados e, como estes valores são geralmente resultados de compilações de dados encontrados na literatura, há em certos casos discrepâncias ainda não dirimidas^[1].

O objetivo deste trabalho é o desenvolvimento de métodos de padronização de radionuclídeos em sistema de coincidência, resultando na determinação da probabilidade de emissão gama por decaimento de radionuclídeos que possam ser utilizados como padrões secundários com energias gama que complementam a curva de calibração em eficiência.

Neste trabalho foram desenvolvidos os métodos de padronização do $^{166\text{m}}\text{Ho}$ e do ^{72}Ga em sistema primário e foram medidas as suas probabilidades de emissão gama por decaimento mais intensas.

O ^{72}Ga foi escolhido por ser um radionuclídeo que apresenta gamas na faixa de 629 a 2507 keV, sendo, por isso, importante para a complementação da curva de eficiência em alta energia e pela inexistência de medidas absolutas deste radionuclídeo.

O $^{166\text{m}}\text{Ho}$ foi selecionado pela necessidade de dados confirmatórios de probabilidades de emissão X e gama por decaimento, na faixa de energia de 40 a 1427keV, visando possibilitar sua utilização como padrão secundário também na calibração de espectrômetros, principalmente na região de baixas energias (abaixo de 240 keV).

Para o desenvolvimento deste trabalho foram empregados dois sistemas de medida:

- O sistema de espectrometria gama com detector de germânio hiperpuro para a determinação das probabilidades de emissão gama por decaimento.
- O sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ para a medida da atividade das fontes padrões de ^{24}Na , ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{152}Eu e ^{241}Am utilizadas na calibração do espectrômetro gama e para a medida absoluta do ^{72}Ga e $^{166\text{m}}\text{Ho}$.

Os aspectos de originalidade estão ligados ao desenvolvimento de métodos absolutos de padronização de radionuclídeos de meia vida curta como é o caso do ^{72}Ga , à determinação de parâmetros nucleares e à calibração do espectrômetro gama utilizando fontes padronizadas diretamente no sistema de coincidências.

No Capítulo 1 são apresentados os fundamentos teóricos envolvendo os tipos de decaimento radioativo, os métodos de padronização e medidas utilizados e os conceitos da metodologia de análise de covariâncias aplicado na determinação das incertezas envolvidas nos valores determinados.

O Capítulo 2 apresenta o arranjo experimental do sistema de coincidências, a técnica de preparação das fontes e as características dos radionuclídeos padronizados neste trabalho. Apresenta também o método de análise dos dados e as correções aplicadas, bem como o método de simulação da curva de extrapolação da eficiência pela teoria de Monte Carlo.

O Capítulo 3 descreve a metodologia de espectrometria gama e a curva de calibração em eficiência do espectrômetro obtida.

No Capítulo 4 são apresentados os resultados obtidos para as padronizações em sistema de medida absoluta e para as probabilidades de emissão gama.

O Capítulo 5 apresenta as conclusões deste trabalho.

1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS

Neste capítulo são descritos os princípios fundamentais que regem o decaimento radioativo e a interação da radiação com a matéria, com uma breve explicação dos fenômenos que ocorrem na detecção da radiação culminando no aparecimento de seus efeitos nos espectros experimentais e a apresentação dos métodos de coincidência e de análise de incertezas pelo método de covariâncias, fundamentais para o desenvolvimento deste trabalho.

1.1. O decaimento radioativo

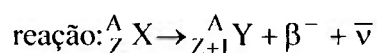
As transições nucleares envolvidas no processo de decaimento radioativo podem ser divididas entre transições de excitação, onde os núcleos atômicos sofrem reações que os levam a estados de maior energia, e transições de desexcitação que ocorrem de estados de maior energia para os de menor energia por meio da reorganização das partículas subatômicas no interior do átomo, com a intenção de levá-los de volta ao estado fundamental. No primeiro caso, se destacam a emissão de partículas como partículas α , β^- (elétrons), β^+ (positrons) e captura eletrônica, enquanto no segundo caso, a energia excedente é emitida na forma de radiação eletromagnética nuclear (raios γ), elétrons de conversão interna, radiação eletromagnética atômica (raios X) e elétrons Auger^[2].

As leis que determinam o tipo de decaimento de cada radionuclídeo são determinadas pelas funções de onda dos estados nucleares e são descritas pela mecânica quântica e teoria eletromagnética. A seguir é feita uma breve descrição dos principais modos de desintegração radioativa.

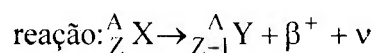
1.1.1. Desintegração β

A desintegração β pode se manifestar de duas formas, de acordo com o excesso de prótons ou de nêutrons no núcleo:

- Emissão β^- : Neste processo, um nêutron é convertido em um próton, e uma partícula β^- e um antineutrino são emitidos do núcleo, sendo a energia da transição dividida entre as duas partículas de modo estatístico, levando a um espectro contínuo de energia, de zero até a energia máxima permitida. A probabilidade de uma transição β^- popular um dado estado no núcleo filho depende da função de onda do estado envolvido. A energia máxima do β emitido será a energia total do decaimento menos a energia do estado excitado do núcleo filho.



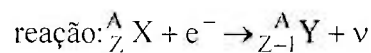
- Emissão β^+ : Decaimento β onde o núcleo emite um pósitron e um neutrino, convertendo um próton em um nêutron. Ocorre em competição com o processo de captura eletrônica, mas requer uma energia limiar de $2m_0c^2$ (ou 1022 keV). Em semelhança com a emissão β^- , as partículas emitidas apresentam espectro de energia contínuo, de zero a energia do decaimento. Quando o pósitron emitido tem energia próxima de zero, ele interage com um elétron, levando à aniquilação de ambos e à consequente emissão de dois fótons de 511 keV cada um, o que caracteriza o processo de emissão β^+ .



Para alguns nuclídeos, a emissão β pode se dar com mais que um ramo de decaimento, decaindo para diferentes estados excitados dos núcleos filhos, que então se desexcitam por emissão gama e/ou elétrons de conversão interna. Cada ramo pode ser considerado como um decaimento β separado, com energia máxima igual à energia total do decaimento menos a energia do estado fundamental do núcleo filho, competindo com os demais ramos. O espectro β resultante será uma superposição de todos os ramos, ponderados por suas respectivas probabilidades de decaimento.

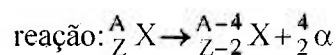
1.1.2. Captura eletrônica (EC)

É uma forma de desintegração β onde um elétron do átomo é capturado pelo núcleo levando à conversão de um próton em um nêutron e à emissão de um neutrino, o qual carrega a energia da transição. Para decaimentos com energia maior que duas vezes a energia de ligação da camada K, o elétron capturado pertence a uma camada K em 90% dos casos, com os 10% restantes de uma camada L ou maior. Como o processo de captura eletrônica cria um buraco em um nível atômico, raios X e elétrons Auger são emitidos na desexcitação, sendo característicos desse processo. A carga atômica permanece constante.



1.1.3. Emissão de partículas α

A desintegração α ocorre espontaneamente para núcleos com número atômico $Z > 82$, quando estes se tornam instáveis devido à força de repulsão entre os prótons, a qual pode superar a força nuclear atrativa. Nesse processo, o núcleo emite uma partícula α , formada por dois prótons e dois nêutrons (um núcleo de hélio), com energias discretas, dadas pela energia do decaimento menos a energia de recuo do núcleo. Por serem partículas pesadas, são pouco penetrantes e altamente ionizantes.



A emissão de uma ou mais partículas α dará origem a um nuclídeo filho no seu estado fundamental ou em um de seus estados excitados, os quais decairão ao estado fundamental ou a outros estados excitados inferiores, emitindo um raio gama.

1.1.4. Emissão de fótons gama

Os estados nucleares excitados se desexcitam por transições para estados de menor energia no mesmo núcleo. No processo, se dá a emissão de um raio γ ou a transferência da

energia excedente para um elétron, conhecida como conversão interna. Pela emissão de uma série de raios γ ou de elétrons de conversão, o núcleo alcança o estado fundamental.

Pela lei de conservação da energia, temos que a energia do raio γ emitido será

$$E_{\gamma} = E_i - E_f - E_R \quad (1.1)$$

onde E_i e E_f são as energias dos estados iniciais e finais da transição e E_R é a energia de recuo do núcleo, dada por

$$E_R = 0,5368 \times 10^{-6} \frac{E_{\gamma}^2}{A_r} \quad (1.2)$$

onde A_r é a massa atômica relativa e a energia é dada em keV^[2]. Para conservação do momento, o núcleo recua em direção oposta à do raio γ emitido.

Outra importante propriedade de um estado nuclear é sua meia-vida. Existe uma probabilidade λ_i associada a cada modo de decaimento de um nível. Se um estado excitado decai para vários níveis de menor energia, as probabilidades de transição associadas são todas independentes. A probabilidade total λ será a soma dos valores individuais, isto é,

$$\lambda = \lambda_1 + \lambda_2 + \lambda_3 + \dots \quad (1.3)$$

e a meia-vida do estado excitado é dada por

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (1.4)$$

Um estado nuclear pode também se desexcitar pelo processo de conversão interna, sem a emissão de raios γ . Nesse processo, a energia de desexcitação é transferida para um elétron, o qual é ejetado do átomo. Para conservação de energia, a energia cinética do elétron emitido deve ser igual à diferença de energia dos estados nucleares menos a energia de ligação do elétron e a energia de recuo do átomo.

Se um raio γ e um elétron de conversão são emitidos numa mesma transição, a probabilidade total de transição entre os estados será a soma das probabilidades individuais. A razão entre o número de elétrons de conversão emitidos I_{ec} e o número de raios γ emitidos I_γ é conhecido como coeficiente de conversão interna, dado por

$$\alpha = \frac{I_{ec}}{I_\gamma} \quad (1.5)$$

Da mesma forma pode-se definir os coeficientes parciais $\alpha_K, \alpha_L, \alpha_M, \dots$ onde os índices K, L, M, ... indicam as camadas envolvidas, sendo o coeficiente total dado pela soma dos coeficientes parciais

$$\alpha_T = \alpha_K + \alpha_L + \alpha_M + \dots \quad (1.6)$$

Sendo a intensidade total T_γ dada pela soma das intensidades parciais, $I_\gamma + I_{ec}$, tem-se as seguintes relações:

$$I_{ec} = \frac{\alpha_T}{1 + \alpha_T} T_\gamma \quad (1.7)$$

$$I_\gamma = \frac{1}{1 + \alpha_T} T_\gamma \quad (1.8)$$

Os coeficientes de conversão interna são encontrados na literatura com boa exatidão. Os valores de α dependem da energia e da multipolaridade da transição, variando drasticamente.

1.1.5. Rearranjo eletrônico

Quando o átomo é levado a um estado excitado que provoca lacunas na nuvem eletrônica, especialmente nos casos de captura eletrônica e conversão interna, a tendência natural é haver um rearranjo dos elétrons nas camadas para preencher essa lacuna. Esse

preenchimento é acompanhado da emissão de raios X ou de elétrons Auger, com energias iguais à energia de ligação do elétron da camada que contém a vacância inicial.

- Raios X

Raios X são radiações eletromagnéticas emitidas em transições dos elétrons atômicos entre diferentes estados no átomo. As emissões ocorrem quando os elétrons mais externos preenchem os buracos deixados nas camadas internas. Cada transição possui uma energia característica, dada pela diferença entre as energias dos estados inicial e final. Quando o buraco é na camada K, se dá a emissão de fótons XK; quando a vacância é na camada L há a emissão de fótons XL e assim por diante, considerando a estrutura fina da rede eletrônica representada por sub-camadas, como mostrado na Figura 1.1 exemplificando a nomenclatura dos raios X.

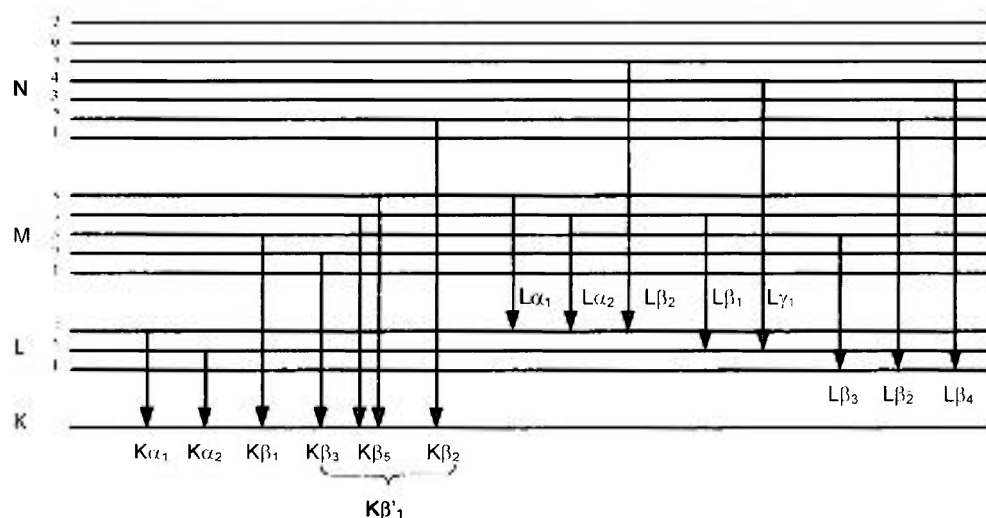


Figura 1.1: Exemplo da nomenclatura dos raios X^[2].

A largura dos níveis eletrônicos influencia a forma como os picos de raios X aparecem em um espectro, sendo esta influência maior com o aumento no número atômico Z. A largura dos níveis eletrônicos é descrita por uma função Lorentziana^[2] de acordo com a equação:

$$L(x) = \frac{\Gamma/2\pi}{(x - x_0)^2 + (\Gamma/2)^2} \quad (1.9)$$

onde Γ é a largura da distribuição, semelhante à FWHM (*full width at half-maximum*). A largura de uma linha de raios X é obtida pela convolução de funções Lorentzianas representando os níveis inicial e final da transição^[2].

- Elétron Auger

Em alguns casos, a energia de excitação do átomo é transferida para um elétron de uma camada mais externa, provocando sua ejeção do átomo. Este elétron terá uma energia dada pela diferença entre as energias de excitação do átomo e de ligação do elétron ejetado. Essa energia é menor que a das partículas β e dos elétrons de conversão interna, uma vez que a emissão de elétrons Auger ocorre com maior probabilidade em radionuclídeos de Z baixo ($Z < 45$), por apresentarem baixas energias de ligação dos elétrons.

1.2. Interação dos fótons com a matéria

A radiação eletromagnética interage com a matéria principalmente por três processos:

- Efeito fotoelétrico:

Um fóton interage com um elétron orbital transferindo a este toda sua energia. O elétron é ejetado do átomo com energia E_e dada por

$$E_e = E_\gamma - E_b \quad (1.10)$$

onde E_b é a energia da camada à qual pertencia o elétron.

Como o elétron ejetado deixa um buraco em uma camada eletrônica, esse átomo irá se desexcitar com a emissão de um ou mais raios X ou elétrons Auger, sendo que muitas vezes essa radiação é absorvida pelo próprio material.

- Espalhamento Compton:

Neste processo um fóton interage com um elétron transferindo a este uma parte de sua energia, dando origem a um fóton secundário com energia

$$E_{\gamma}' = \frac{E_{\gamma}}{1 + \alpha(1 - \cos\theta)} \quad (1.11)$$

onde $\alpha = \frac{E_{\gamma}}{m_0 c^2}$, com $m_0 c^2$ correspondendo à energia de massa de repouso do elétron

(511keV) e θ o ângulo entre o fóton incidente e o fóton secundário. O elétron espalhado terá energia

$$E_e = E_{\gamma} \left[1 - \frac{1}{1 + \alpha(1 - \cos\theta)} \right] \quad (1.12)$$

Como o processo envolve a emissão de um fóton secundário, a energia total do fóton incidente não é depositada no local da primeira interação. Para rastrear toda essa energia é necessário seguir o fóton secundário e todas as suas interações. Para fótons de alta energia, pode haver uma série de eventos de espalhamento Compton, cada um deles reduzindo a energia do fóton secundário, terminando com um evento de absorção fotoelétrica ou escapar sem depositar toda sua energia.

A variação no ângulo de espalhamento de zero a 180° implica na variação da energia dos elétrons espalhados, formando um espectro contínuo de zero até uma energia máxima bem próxima à do fóton incidente.

- Produção de pares:

Neste processo, a energia do fóton incidente é convertida no campo coulombiano do núcleo em um par pósitron-elétron. Para isso, a energia do fóton deve ser maior que duas vezes a massa de repouso de elétron, ou seja, 1022 keV. A energia excedente, $E_{\gamma} - 2m_0 c^2$, é distribuída entre as duas partículas na forma de energia cinética.

1.3. Medida absoluta da atividade: Método de coincidências

São chamados absolutos, ou primários, os métodos de medida onde o resultado final depende apenas da própria medida, sem a necessidade do conhecimento de nenhum padrão absoluto, a não ser o tempo.

O método de coincidências é um método absoluto de medidas utilizado em padronizações de radionuclídeos que se desintegram pela emissão simultânea de duas radiações distintas, como α - γ , β - γ , entre outras. Baseia-se no uso de dois detectores, um para cada tipo de radiação emitida e um módulo para a detecção dos eventos coincidentes, detectados simultaneamente nos dois detectores.

Considerando-se um caso genérico com esquema de decaimento simples onde a desintegração se dá pela emissão de uma partícula β seguida de radiação gama, as taxas de contagem registradas em cada uma das vias de detecção são dadas por:

$$N_{\beta} = N_0 \varepsilon_{\beta} \quad (1.13)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \varepsilon_{\gamma} \quad (1.14)$$

$$N_c = N_0 \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma} \quad (1.15)$$

onde

N_0	atividade da fonte
N_{β}	taxa de contagens na via beta
N_{γ}	taxa de contagens na via gama
N_c	taxa de contagens de coincidências
ε_{β}	eficiência de detecção da via beta
ε_{γ}	eficiência de detecção da via gama

Das equações acima pode-se concluir que

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \quad (1.16)$$

sendo $\frac{N_c}{N_\gamma}$ denominado parâmetro de eficiência, de modo que a atividade do radionuclídeo pode ser determinada apenas pelas taxas de contagem observadas, não dependendo do conhecimento de nenhum outro dado.

1.3.1. Técnica da extrapolação linear da eficiência

Geralmente, os radionuclídeos apresentam esquemas de decaimento mais complexos, com vários ramos beta seguidos da emissão gama coincidente, bem como a emissão de elétrons de conversão interna. Além disso, não podem ser descartados outros parâmetros intrínsecos ao método de medida, como a sensibilidade de um detector a outro tipo de radiação à qual ele não se destina.

Assim, as equações do item 1.5 são alteradas e a taxa de desintegração passa a depender dos parâmetros do esquema de decaimento, como descrito para um emissor β - γ com n ramos beta e P_r radiações gama para cada ramo beta^[3].

$$N_\beta = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta_r} - (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \sum_{s=1}^{P_r} b_{rs} \left(\frac{\alpha_r \varepsilon_{c\gamma_s} + \varepsilon_{c\gamma_s}}{1 + \alpha_{rs}} \right) \right] \quad (1.17)$$

$$N_\gamma = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \sum_{s=1}^{P_r} b_{rs} \frac{\varepsilon_{\gamma_{rs}}}{1 + \alpha_{rs}} \quad (1.18)$$

$$N_c = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \varepsilon_{\beta_r} \left[\sum_{s=1}^{P_r} b_{rs} \left(\frac{\varepsilon_{\gamma_{rs}}}{1 + \alpha_{rs}} \right) - (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \sum_{s=1}^{P_r} b_{rs} \varepsilon_{c\gamma_s} \right] \quad (1.19)$$

onde

ε_{β_r} eficiência do detector beta para o r -ésimo ramo beta

$\varepsilon_{\gamma_{rs}}$ eficiência do s -ésimo gama associado ao r -ésimo ramo beta

- α_{rs} coeficiente de conversão interna total do s-ésimo gama associado ao r-ésimo ramo beta
 ε_{ecrs} eficiência do detector beta para elétrons de conversão interna
 $\varepsilon_{\beta\gamma rs}$ eficiência do detector beta para a radiação gama
 $\varepsilon_{c rs}$ probabilidade de se registrar uma coincidência quando o ramo beta não é detectado, ou coincidências γ - γ
 a_r coeficiente do r-ésimo ramo beta
 b_{rs} abundância relativa do s-ésimo gama associado ao r-ésimo ramo beta

Pode-se simplificar estas equações omitindo-se as somatórias em s e as abundâncias relativas b_{rs} desde que elas sejam consideradas implícitas, de modo que:

$$N_{\beta} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} + \left(1 - \varepsilon_{\beta r} \right) \left(\frac{\alpha_r \varepsilon_{ecr} + \varepsilon_{\beta\gamma r}}{1 + \alpha_r} \right) \right] \quad (1.20)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} \quad (1.21)$$

$$N_c = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\frac{\varepsilon_{\beta r} \varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} + \left(1 - \varepsilon_{\beta r} \right) \varepsilon_{c r} \right] \quad (1.22)$$

e a equação (1.16) passa a ser escrita como:

$$\frac{N_{\beta} \cdot N_{\gamma}}{N_c} = N_{\beta\gamma} \frac{\sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} + \left(1 - \varepsilon_{\beta r} \right) \left(\frac{\alpha_r \varepsilon_{ecr} + \varepsilon_{\beta\gamma r}}{1 + \alpha_r} \right) \right] \sum_{r=1}^n a_r \frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r}}{\sum_{r=1}^n a_r \left[\frac{\varepsilon_{\beta r} \varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} + \left(1 - \varepsilon_{\beta r} \right) \varepsilon_{c r} \right]} \quad (1.23)$$

Pela equação (1.18), o conhecimento de N_0 está condicionado ao conhecimento dos parâmetros do esquema de decaimento e das probabilidades de detecção. Para contornar este problema foi desenvolvida a técnica de extrapolação linear da eficiência^[4,5,6].

Segundo esta técnica, pode-se determinar a taxa de desintegração de um nuclídeo com esquema de desintegração complexo sem o conhecimento prévio dos parâmetros do esquema e das eficiências de detecção, sendo N_0 obtido pela extrapolação da eficiência para o valor 1.

A possibilidade de utilização da técnica de extrapolação no método de coincidência depende da existência de uma relação funcional entre a contagem no detector beta, N_β , e o parâmetro de eficiência, $\frac{N_c}{N_\gamma}$, tal que N_β tenda para a atividade da fonte, N_0 , quando o parâmetro de eficiência tender à unidade, ou seja, que

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

Esta condição ocorre quando a eficiência dos vários ramos beta, ϵ_{β_r} puder ser representada como uma função de uma eficiência única ϵ_{β_s} .

$$\epsilon_{\beta_r} = f_r(\epsilon_{\beta_s})$$

Além disso, é necessário que a validade dessas funções se estenda para eficiências unitárias, ou seja, que as funções f_r tendam para a unidade quando uma das eficiências beta, ϵ_{β_s} , tender para este valor. Simbolicamente, tem-se:

$$f_r \rightarrow 1 \text{ quando } \epsilon_{\beta_s} \rightarrow 1 \text{ para } r = 1, 2, \dots, n$$

Portanto N_β é simplesmente uma função F do parâmetro de eficiência $\frac{N_c}{N_\gamma}$ tal que

$$N_{\beta} = N_0 F \left(\frac{N_{\gamma}}{N_{\epsilon}} \right) \quad (1.24)$$

onde $F \rightarrow 1$ quando $\frac{N_{\epsilon}}{N_{\gamma}} \rightarrow 1$. Esta é a fórmula de coincidências generalizada^[7].

Para um intervalo limitado de variação do parâmetro de eficiência e para espectros semelhantes dos grupos beta ou no caso de haver um grupo beta, ou ainda, de ser possível isolar um deles por discriminação gama, esta função é linear, podendo ser determinada através de seu coeficiente angular a correção para o esquema de desintegração.

A fórmula de coincidência generalizada pode ser posta em forma mais conveniente para sua solução gráfica ou analítica. Usando-se $\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_{\epsilon}}$ como variável dependente e $\left(\frac{1 - N_{\epsilon}/N_{\gamma}}{N_{\epsilon}/N_{\gamma}} \right)$ como parâmetro variável, obtém-se uma função G do parâmetro de ineficiência, cuja variação é mais lenta do que a da função F .

Com isso pode-se escrever a fórmula geral de coincidência como:

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_{\epsilon}} = N_0 G \left(\frac{1 - N_{\epsilon}/N_{\gamma}}{N_{\epsilon}/N_{\gamma}} \right) \quad (1.25)$$

onde a função $G \rightarrow 1$ e $\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_{\epsilon}} \rightarrow N_0$ quando $\left(\frac{1 - N_{\epsilon}/N_{\gamma}}{N_{\epsilon}/N_{\gamma}} \right) \rightarrow 0$.

Para grupos beta tais que suas eficiências possam ser consideradas inter-relacionadas, as fórmulas de coincidência generalizada podem ser particularizadas como

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_{\epsilon}} = N_0 \left[1 + C \left(\frac{1 - N_{\epsilon}/N_{\gamma}}{N_{\epsilon}/N_{\gamma}} \right) \right] \quad (1.26)$$

onde $\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} \rightarrow N_0$ quando $\left(\frac{1 - N_c/N_{\gamma}}{N_c/N_{\gamma}}\right) \rightarrow 0$.

Variando-se $\left(\frac{1 - N_c/N_{\gamma}}{N_c/N_{\gamma}}\right)$, obtém-se uma reta cujo coeficiente angular dará o valor

de N_0C e cuja ordenada inicial fornecerá o valor absoluto da atividade N_0 .

Determina-se, desta forma, a constante da correção para o esquema de desintegração, C , para um dado sistema de detecção e um dado radionuclídeo.

A variação do parâmetro de eficiência pode ser obtida pelo uso de absorvedores externos, ou por auto absorção na fonte, ou qualquer outro método que possibilite a variação da eficiência beta.

A taxa de desintegração N_0 é portanto determinada a partir do gráfico de $\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c}$ versus $\left(\frac{1 - N_c/N_{\gamma}}{N_c/N_{\gamma}}\right)$, de modo a determinar-se a função G que relacione $\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c}$ com N_0 .

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

1.4. Espectrometria da radiação X e γ

A espectrometria X e gama é um método de análise utilizada em metrologia das radiações ionizantes que tem aplicação em diferentes áreas, como monitoração ocupacional e ambiental, controle de efluentes em instalações, melhoria de dados nucleares e aplicações médicas^[8]. Consiste basicamente em identificar e determinar a natureza e a atividade de radionuclídeos contidos em uma amostra, bem como calcular os parâmetros da emissão radioativa, a partir do registro e análise de seu espectro de emissão.

Este espectro é único para cada nuclídeo, caracterizado pelo tipo de emissão radioativa, energia e intensidade (ou probabilidade de emissão) da radiação. Para obtê-lo, utiliza-se um detector acoplado a um sistema eletrônico de aquisição de dados, resultando em um espectro de natureza discreta (linhas).

Entretanto, os diferentes fenômenos eletrônicos no sistema de medição provocam o alargamento dessas linhas, transformando-as em picos de distribuição centrados na energia da radiação. A largura à meia-altura destes picos é definida como resolução e permite avaliar a qualidade do dispositivo de detecção.

Para associar os picos de um espectro a um radionuclídeo, determina-se a relação energia-canal, por meio de uma calibração. A seguir, determina-se a curva de eficiência de absorção total, a fim de calcular a atividade dos radionuclídeos por meio das áreas sob os picos. A relação entre a atividade e a área de um pico de energia $E_{X,\gamma}$ é dada por:

$$A = \frac{S(E_{X,\gamma})}{\varepsilon(E_{X,\gamma})p(E_{X,\gamma})T} \quad (1.27)$$

onde A é a atividade da amostra, $S(E_{X,\gamma})$ é a área do pico de energia $E_{X,\gamma}$ corrigida para decaimento, radiação de fundo, tempo morto, efeito soma, atenuação e geometria, $p(E_{X,\gamma})$ é a probabilidade de emissão de radiação X ou gama de energia $E_{X,\gamma}$, ε é a eficiência do pico de absorção total para esta energia e T o tempo de medida.

Vários fatores podem afetar a qualidade das medidas feitas em espectrômetros, como preparação das fontes, geometria do arranjo experimental, entre outras. Entretanto, a precisão dessas medidas depende invariavelmente da precisão da curva de calibração da eficiência em função da energia e também da precisão dos parâmetros de decaimento dos nuclídeos utilizados, sejam aqueles referentes aos padrões, ou ao que está sendo estudado.

Dentre estes parâmetros, a probabilidade de emissão gama por decaimento e a meia-vida necessitam ser conhecidos com boa exatidão pois influem diretamente no resultado final.

1.5. Formação de espectros

Quando observamos um espectro de emissão de fótons, o que vemos é o resultado das diferentes interações produzidas por eles no interior ou exterior do detector.

- Picos de absorção total

Fótons que não sofrem interações com o meio externo, depositando toda sua energia no interior do detector, por efeito fotoelétrico, várias interações Compton ou produção de pares. Para cada radiação característica de um radionuclídeo, forma-se um pico localizado na energia correspondente.

- Espalhamento Compton

Aparece em um espectro de formas diferentes:

a) Fótons que sofreram somente uma interação Compton no interior do detector. O fóton espalhado terá energia máxima quando o ângulo de espalhamento tender a zero e mínima para espalhamentos a 180° , assim, a energia depositada no detector será máxima para ângulo de 180° e próxima de zero para ângulos muito pequenos, resultando num fundo contínuo no espectro com energias entre zero keV e a energia máxima depositada.

b) Fótons que sofrem várias interações Compton no interior do detector antes de ser espalhado para fora dele. No espectro aparecem superpostos ao fundo contínuo e também além dele, formando um vale que acaba antes do pico de absorção total.

c) Fótons que interagiram por efeito Compton com o meio externo antes de depositar sua energia no detector, encontrados no fundo contínuo e no vale. Em alguns casos, os fótons espalham-se no meio externo em um ângulo próximo a 180° antes de atingir o detector, dando origem a um pico característico, chamado pico de retroespalhamento.

- Fenômenos de escape

Quando um fóton com energia E maior que 1022 keV alcança o detector, ele pode produzir um par elétron-pósitron acompanhado da aniquilação do pósitron dentro do detector e a emissão de dois fótons de 511 keV. Estes fótons podem sair do detector sem interagir, originando dois picos: o pico de escape simples, com energia $E-511$ keV, quando um único fóton escapa, e o pico de duplo escape, com energia $E-1022$ keV se os dois fótons escapam. A produção de pares pode também ter origem no exterior do detector, sendo que, neste caso, um dos dois fótons de aniquilação pode interagir com o detector e dar origem a um pico com 511 keV, chamado pico de aniquilação.

Um outro fenômeno de escape está ligado aos fótons X de fluorescência. Neste caso, haverá um pico com energia $E-E_x$, sendo E_x a diferença entre a energia de ligação das duas camadas concebidas pela reorganização eletrônica.

- Coincidências

A desexcitação do núcleo sucedendo uma desintegração pode originar uma ou várias transições gama. Quando emitidos em cascata, em um intervalo de tempo muito curto, muito inferior ao tempo de coleta de cargas do detector, um único impulso, soma dos dois eventos distintos, será registrado, desfalcando os picos correspondentes a energia de cada fóton e originando um pico soma de coincidência gama-gama. Pode ocorrer também no caso de um fóton gama seguido de um fóton X de rearranjo, formando um pico soma de coincidência gama-X.

1.6. Análise de espectros

Geralmente, os laboratórios de pesquisa desenvolvem códigos computacionais para a análise de espectros de acordo com sua necessidade de utilização, sendo aperfeiçoados com o tempo por meio de intercâmbio científico, adquirindo maior complexidade e facilidade de utilização.

De um modo geral, pode-se dizer que todos os programas de análise de espectros envolvem algumas rotinas básicas: operações que precedem a análise do espectro como calibração em energia, calibração em eficiência e calibração em resolução de toda a cadeia de medição e aquisição de um espectro de radiação de fundo; a busca de picos, seja ela manual ou automática; a análise de picos, determinando sua forma e sua área; a identificação dos núclídeos e cálculo da atividade.

No caso dos raios X e regiões de baixa energia, o espectro de fótons é bastante complexo e surge a necessidade de separar os picos que se apresentam superpostos, formando multipletos. Para isso, torna-se necessário a aplicação de rotinas para a deconvolução dessas regiões, ou seja, a separação das funções matemáticas individuais que deram origem à distribuição observada, para que cada pico possa ser analisado individualmente. Os resultados de uma deconvolução devem ser analisados cuidadosamente, uma vez que, ao contrário de outros cálculos de análise de espectro, que permitem verificação manual, estes dependem unicamente do programa computacional.

Em princípio, cada pico que contribui para o multipletto é caracterizado por três parâmetros: a altura do pico, ou área, sua posição no espectro e a forma do pico, bastando o conhecimento de dois destes parâmetros para a dedução do terceiro. Alguns programas operam mais com a altura do pico do que com sua área. Naturalmente, estes dois parâmetros são interrelacionados, porém a altura depende da área e da largura, sendo, portanto, mais adequado adotar-se somente a área.

A posição geralmente é determinada por uma calibração do espectro em energia com base nos singletos de maior intensidade ou considerando-se a biblioteca disponível que indica diretamente os picos que contribuem na formação do multipletto.

A forma do pico é definida de acordo com a natureza da radiação, X ou gama, sendo então representada por uma função matemática específica, por meio da qual o programa faz as aproximações necessárias para o ajuste aos dados experimentais.

1.7. Probabilidade de emissão X e gama por decaimento

A probabilidade de emissão X e gama por decaimento pode ser determinada por dois métodos distintos: o primeiro considerando-se o esquema de desintegração, levando em conta todas as probabilidades das transições dos níveis excitados β e γ , e o segundo considerando as medidas em um detector calibrado por fontes padrões primárias cuja atividade é obtida por medida em sistema absoluto.

O primeiro caso pode ser adotado para núclídeos com esquema de decaimento no qual não exista transição beta para o nível fundamental, sendo as probabilidades de emissão determinadas pelas intensidades relativas dos raios gama e coeficientes de conversão interna^[9].

No segundo método, a probabilidade de emissão por decaimento $p(E_{X,\gamma})$ é obtida das relações:

$$R(E_{X,\gamma}) = \frac{S(E_{X,\gamma})}{\varepsilon(E_{X,\gamma})} \quad (1.28)$$

$$p(E_{X,\gamma}) = \frac{R(E_{X,\gamma})}{A} \quad (1.29)$$

onde

$S(E_{X,\gamma})$ taxa de contagens no pico de absorção total da radiação de energia ($E_{X,\gamma}$) em estudo por unidade de tempo, corrigida para decaimento, radiação de fundo, tempo morto, efeito soma, atenuação e geometria

$R(E_{X,\gamma})$ taxa de emissão de fótons de energia $E_{X,\gamma}$ da fonte

$\varepsilon(E_{X,\gamma})$ eficiência de pico, isto é, a eficiência no pico de absorção total da radiação com energia $E_{X,\gamma}$ determinada por meio da medida de padrões

A atividade da fonte medida em sistema absoluto.

1.8. Análise de incertezas: Método de análise de covariâncias

A confiabilidade de resultados experimentais depende, em grande parte, de uma análise cuidadosa e precisa no tratamento das incertezas. Quando se trata da determinação de padrões, esta precisão assume um papel ainda mais importante.

A metodologia de análise de covariâncias^[10] é a forma mais completa de cálculo e apresentação das incertezas em dados experimentais, pois além da incerteza total, ela fornece informações sobre a existência de um nível de correlação entre as incertezas de todos os parâmetros envolvidos no cálculo, além de preservar o conteúdo estatístico dos resultados experimentais^[11].

Essas informações contidas nas incertezas parciais envolvidas e suas correlações fornecem a base para a construção da matriz de covariâncias, que representa completamente as incertezas nas medidas.

Suponhamos a existência de L fontes distintas de erros que determinam a incerteza total de um grupo de n dados $x=(x_1, x_2, \dots, x_n)$. Seja e_{il} a incerteza em x_i correspondente ao atributo l e C_l a matriz de correlação correspondente a essas incertezas parciais com elementos C_{ijl} , sendo a mesma definição válida para todos os componentes de x . O coeficiente C_{ijl} determina o grau de correlação entre as incertezas e_{xi} e e_{xj} devidos ao efeito l , sendo seu valor limitado ao intervalo $[-1,1]$, podendo ter diferentes significados:

$C_{ijl}=0$	indica a inexistência de correlação
$C_{ijl}=1$	indica a existência de correlação positiva
$C_{ijl}=-1$	indica a existência de correlação negativa
$-1 < C_{ijl} < 0$	indica correlação negativa parcial
$0 < C_{ijl} < 1$	indica correlação positiva parcial

A matriz de covariâncias total que representa esse grupo de dados é dada pelos elementos V_{xij} calculados pela equação:

$$V_{xij} = \sum_{l=1}^L C_{ijl} e_{il} e_{jl} \quad (1.30)$$

sendo a incerteza total na i -ésima medida dada por

$$\sigma_{xi} = (V_{xii})^{1/2} \quad (1.31)$$

2. PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS EM SISTEMA DE COINCIDÊNCIA

$4\pi\beta-\gamma$

Utilizando-se sistemas de medida absoluta $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$ e a aplicação do método de coincidência com a técnica de extrapolação linear da eficiência, descritos no Item 1.5, foram desenvolvidos os métodos de padronização do $^{166\text{m}}\text{Ho}$, ^{54}Mn e ^{72}Ga .

Estes sistemas também foram adotados na medida das fontes radioativas de ^{57}Co , ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{152}Eu e ^{241}Am previamente padronizadas no laboratório, para sua utilização como padrões na curva de calibração do espectrômetro gama em eficiência.

2.1. Arranjo experimental dos sistemas de coincidências $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$

Foram utilizados dois sistemas de coincidência semelhantes, compostos por um detector proporcional com geometria 4π , para detecção da radiação β e raios X, acoplado a cintiladores de NaI(Tl) , para detecção da radiação γ .

No primeiro, denominado Sistema I, adotado para as medidas do $^{166\text{m}}\text{Ho}$, ao detector proporcional, é acoplado um único cristal cintilador de NaI(Tl) enquanto no segundo, denominado Sistema II, empregado na padronização do ^{72}Ga e do ^{54}Mn , são utilizados dois cristais de NaI(Tl) . O posicionamento dos detectores nos dois sistemas está esquematizado na Figura 2.1. As diferenças entre estes sistemas são a maior eficiência gama no Sistema II, devido à presença de dois cintiladores, e uma janela de Al (espessura de 0,1mm) no detector proporcional do Sistema I, levando a uma menor atenuação dos raios gamas.

Os dois conjuntos são protegidos externamente com paredes e anéis de chumbo para minimizar a influência da radiação de fundo nas medidas.

Na foto da Figura 2.2. é possível uma melhor visualização do sistema de detecção II utilizado. As características físicas e do funcionamento dos detectores proporcionais e dos cristais cintiladores de NaI(Tl) são descritas a seguir, nos Itens 2.1.1. e 2.1.2.

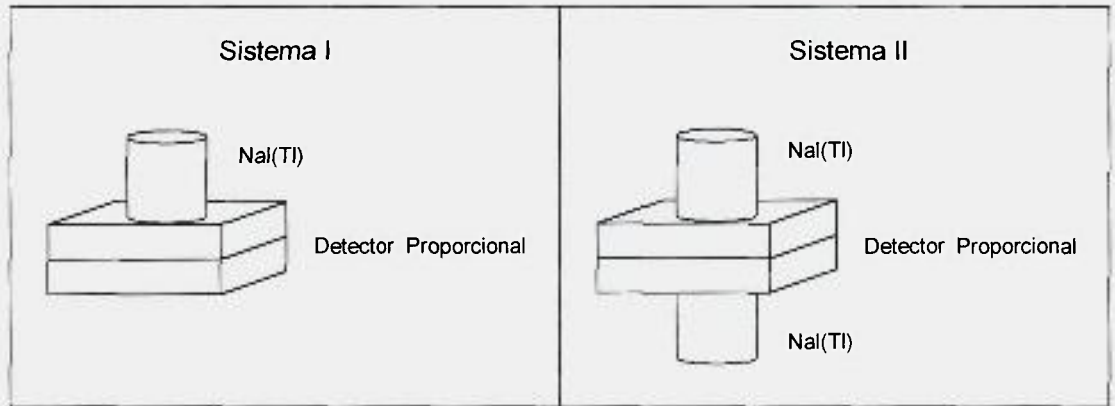


Figura 2.1. Esquema do posicionamento dos detectores que formam os sistemas de coincidências $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$.

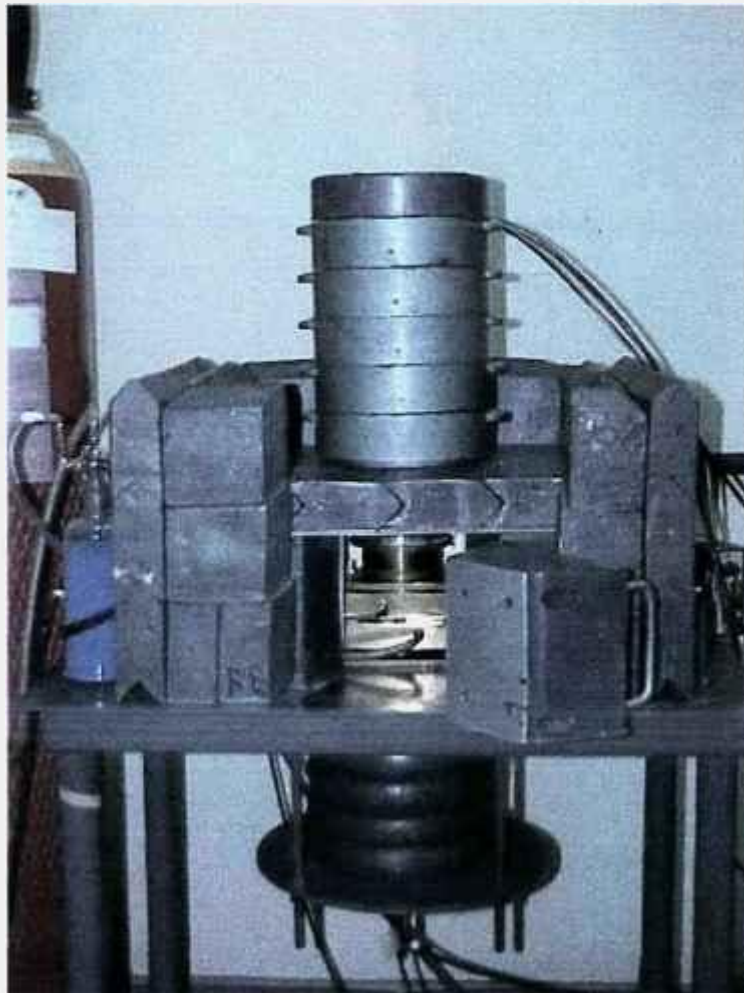


Figura 2.2. Sistema de coincidências $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$ II.

2.1.1. Detector proporcional com geometria 4π

Cada um dos contadores utilizados é formado por duas partes simétricas de latão com formato interno semi-cilíndrico. Cada uma destas partes possui um anodo, formado por um fio de aço inoxidável com diâmetro de $25\mu\text{m}$, muito bem esticado, preso por isoladores de teflon em um dos lados e ligados a conectores para alta tensão do outro.

O conjunto formado pelas duas partes justapostas apresenta um formato interno aproximadamente cilíndrico, com diâmetro de 3 cm e comprimento de 7,5 cm, como mostrado nas Figuras 2.3 e 2.4. Entre as duas metades encaixa-se uma placa deslizante, também de latão, para o posicionamento da fonte no interior do detector sem a necessidade de abri-lo, sendo a vedação feita com anéis de borracha.

O interior do contador é preenchido com gás de alta pureza constituído de 90% de argônio e 10% de metano (P10), operado à pressão de 0,1 MPa. O contador proporcional do Sistema I também pode ser pressurizado, acoplando-se um sistema de alta pressão.

As partículas emitidas pela fonte ionizam as moléculas do gás. Os elétrons livres assim formados são acelerados pelo campo elétrico no interior do detector em direção ao anodo, ganhando energia no percurso e ionizando outras moléculas do gás, originando uma avalanche, conhecida como avalanche Townsend^[12]. Essa avalanche termina quando todos os elétrons livres são coletados no anodo, sendo a corrente formada proporcional ao número de elétrons, que por sua vez, é proporcional à energia da partícula incidente, uma vez que o detector é operado na região proporcional apresentando um fator de multiplicação de aproximadamente 10^4 .

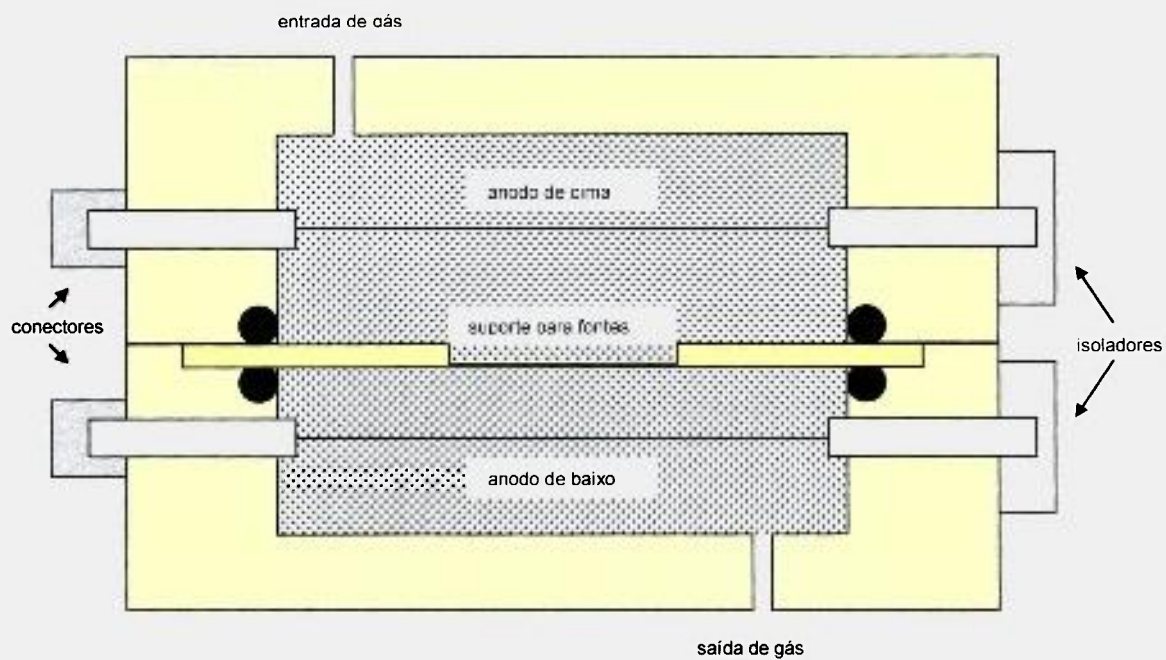


Figura 2.3: Esquema do contador proporcional, em corte transversal e vista frontal.

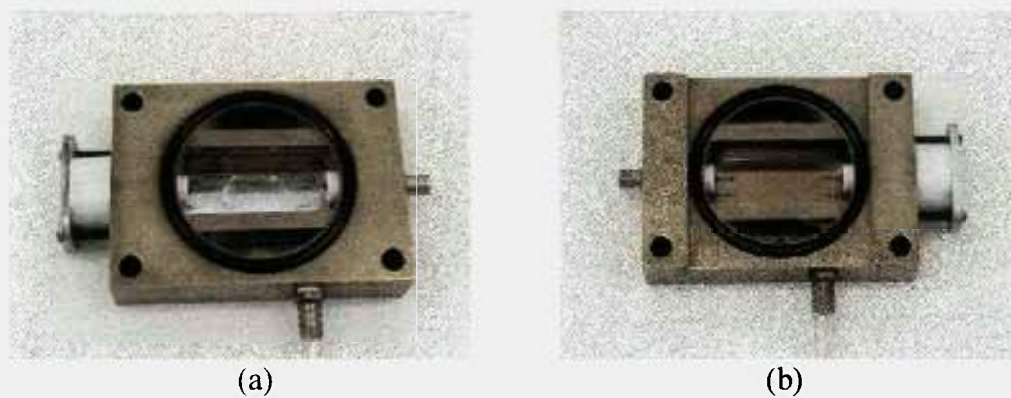


Figura 2.4. Contador proporcional do LMN (Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN). Cada foto corresponde a uma das metades do conjunto mostrando o seu interior. Na foto (b) pode-se perceber o nicho para o encaixe da placa deslizante com o suporte das fontes.

2.1.2. Cristal Cintilador de NaI(Tl)

Os cristais cintiladores de NaI dopados com impurezas de Tálcio (Tl) utilizados possuem dimensões de 76mm x 76mm.

Os fótons emitidos pela fonte radioativa incidem sobre a superfície do cristal produzindo ionizações que podem ser detectadas pela emissão de cintilações fracas através das quais as moléculas do cristal retornam ao estado fundamental. A luz visível assim gerada incidirá numa célula fotomultiplicadora, que a converterá em elétrons, os quais, por sua vez, serão multiplicados. Esta corrente eletrônica produz um pulso cuja altura é proporcional à energia dos fótons incidentes, uma vez que a saída de luz dos cintiladores é proporcional à energia perdida pela radiação α /ou partículas no interior do cristal.

2.1.3. Sistema eletrônico associado

A cada um dos detectores são acoplados equipamentos eletrônicos que permitem os ajustes necessários para a medida e aquisição de dados. O sistema eletrônico básico utilizado é apresentado na Figura 2.5.

Este sistema é composto por duas vias distintas, β e γ , cada uma destinada a um tipo de detector:

- *Via γ - Detector cintilador de NaI(Tl):* Os pulsos provenientes dos dois detectores distintos passam por amplificadores e são depois somados gerando um único sinal. A medida nesta via é feita selecionando-se a região do espectro gama referente a um ou mais picos de absorção total; para isso faz-se a discriminação destes por meio de um analisador monocanal com atrasador (Single Channel Analyser-Timing, ou simplesmente SCA-Timing) que permite selecionar a energia de interesse (janela). Após esta seleção, os pulsos são enviados a um módulo de porta e atraso (Gate and Delay Generator) onde é fixado o atraso para a separação dos pulsos no espectro de

aquisição de dados, sendo posteriormente enviados módulo TAC para o registro dos eventos.

- *Via β - Detector proporcional 4π* : O pulso proveniente do detector proporcional sofre o mesmo processo de ajuste descrito para a via γ , com a diferença de usar o discriminador apenas para cortar o ruído eletrônico, uma vez que a medida é feita no modo integral.

O método utilizado para o registro das contagens é o método TAC^[13], desenvolvido no LMN (Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN) e que utiliza um conversor de tempo em altura de pulso (módulo TAC) acoplado ao multicanal onde é feito o registro do espectro de aquisição de dados.

Para isso, o módulo TAC recebe os pulsos provenientes de ambas as vias, β e γ , após sua passagem conjunta por módulos de porta e atraso. Uma vez no TAC, um dos pulsos dará o início (*start*) e o outro o término (*stop*), havendo o registro das contagens do seguinte modo: uma contagem β quando ambos os pulsos forem provenientes do detector proporcional; uma contagem γ quando ambos os pulsos forem provenientes dos cintiladores e uma contagem de coincidência quando forem detectados um pulso de cada uma das vias.

Para a discriminação de duas janelas gama distintas, há a necessidade se fazer alterações no sistema eletrônico acrescentando-se módulos de atraso e de soma de pulsos, como está esquematizado na Figura 2.6. O trecho em destaque é inserido entre os módulos somador e os de porta e atraso do esquema original.

Na Figura 2.7 é apresentado um espectro típico registrado no multicanal, com a discriminação de duas janelas gama distintas simultaneamente. Dessa forma, o espectro de aquisição de dados apresenta cinco regiões diferentes, com dois picos devidos aos fótons γ , dois picos de coincidência e um pico devido ao decaimento β . As taxas de contagem são obtidas pela integração numérica das regiões de interesse.

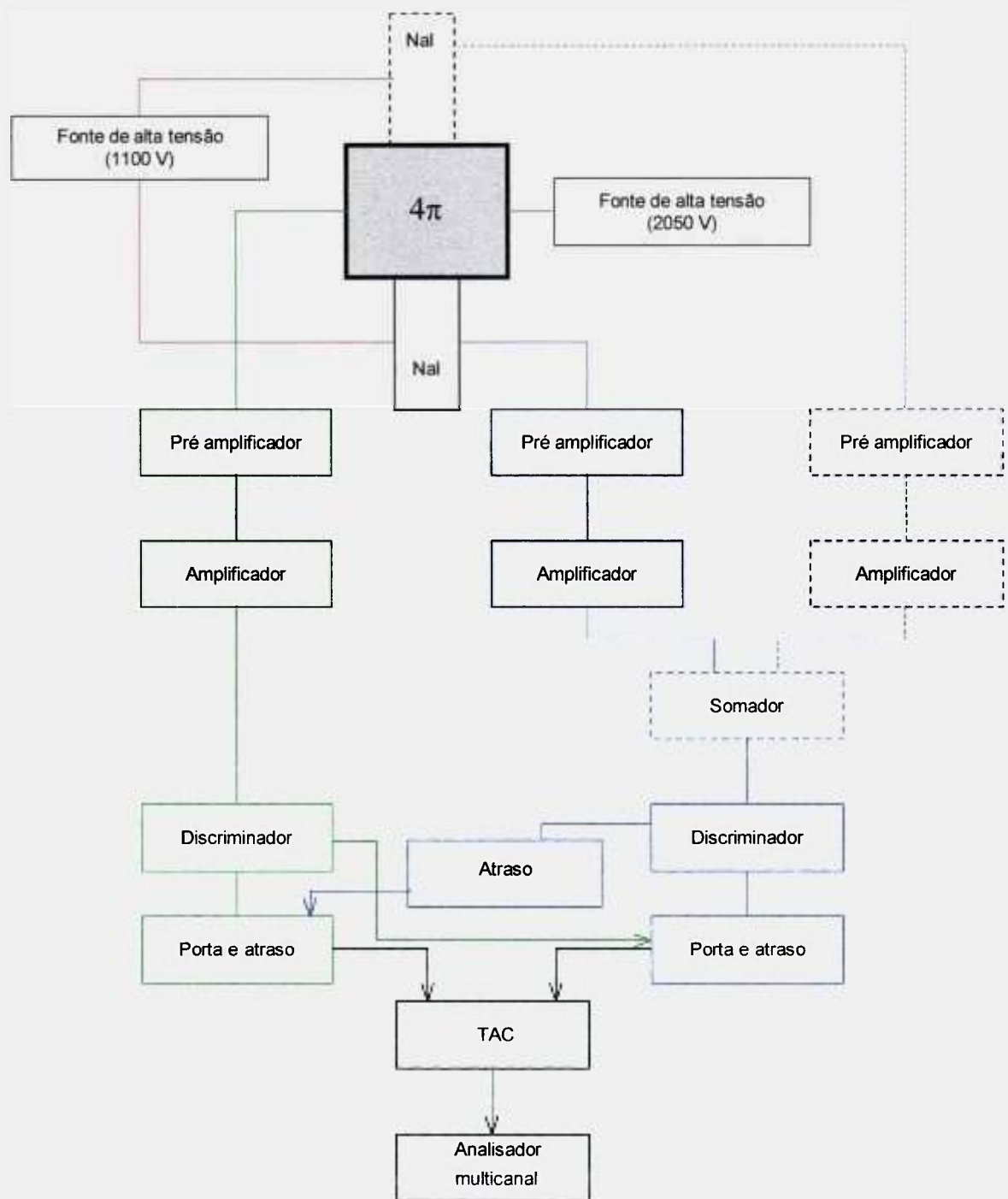


Figura 2.5: Arranjo eletrônico para medidas nos dois sistemas de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ utilizados discriminando-se uma única janela gama. Os blocos tracejados correspondem aos módulos que não fazem parte do sistema II que só utiliza um NaI(Tl).

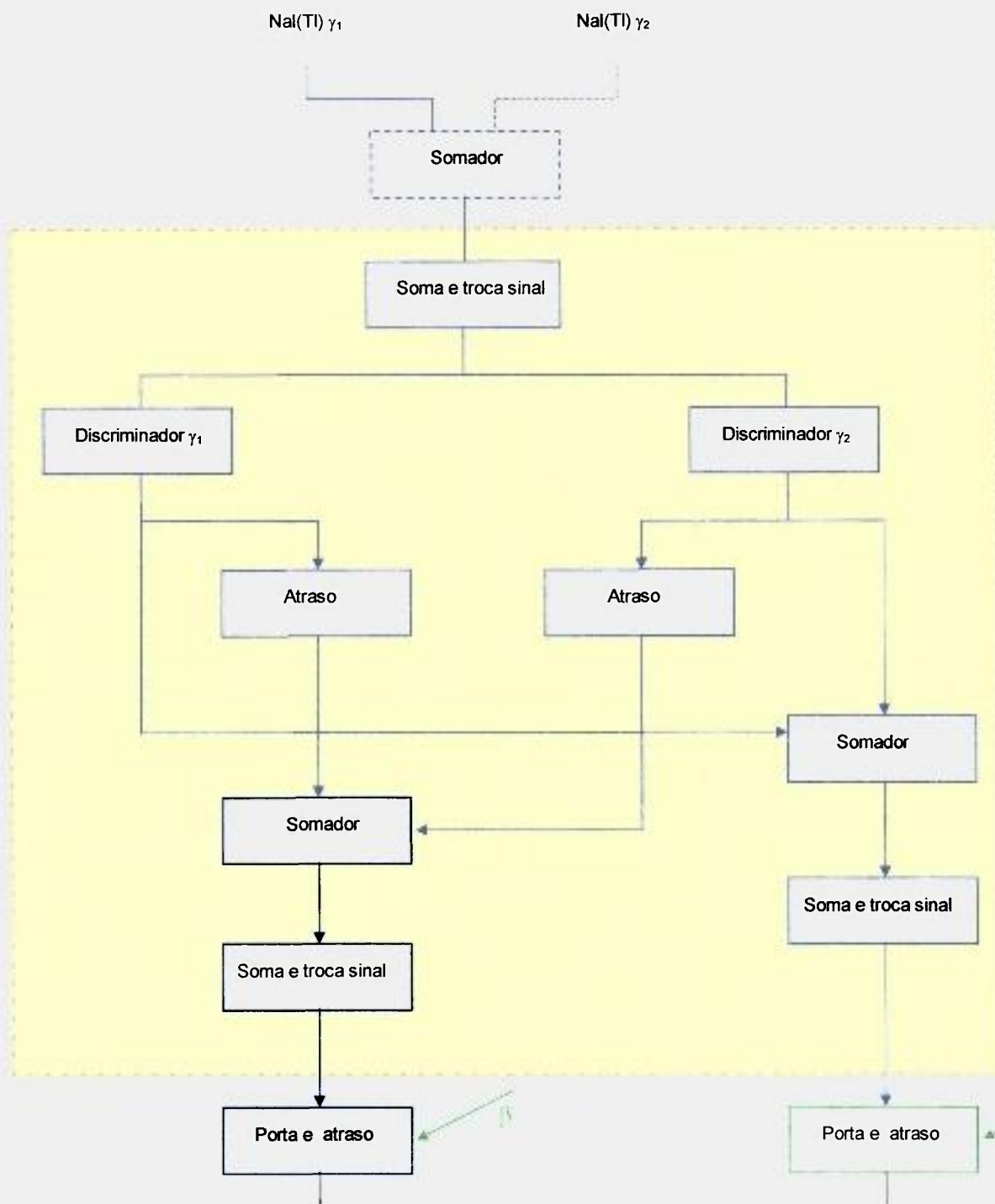


Figura 2.6: Em destaque, parte do arranjo eletrônico dos sistemas de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ utilizados para a discriminação de duas janelas gama.

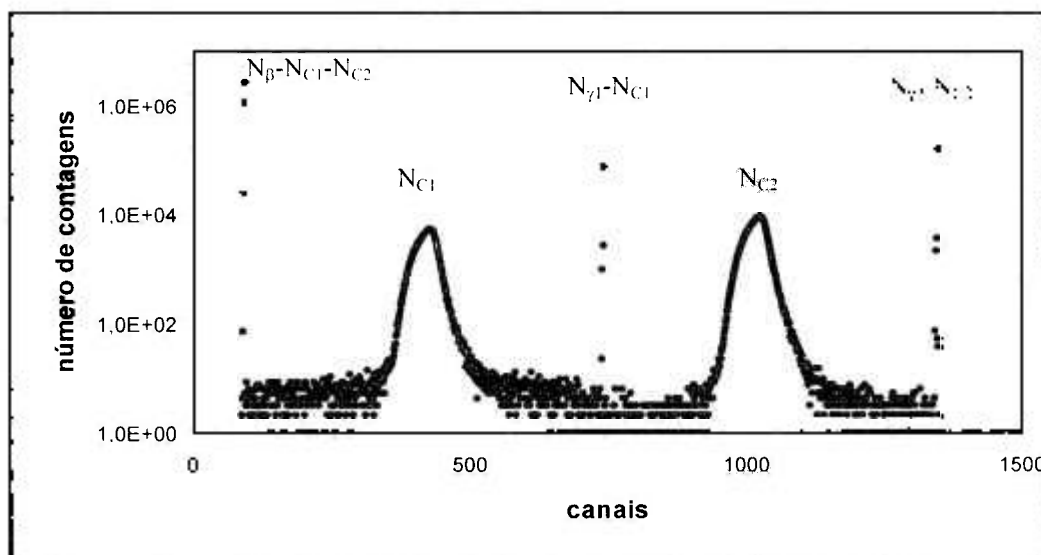


Figura 2.7: Espectro de aquisição de dados do sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com a discriminação de duas janelas gama. Da esquerda para a direita tem-se os picos correspondentes à via β , coincidência(1), via $\gamma(1)$, coincidência(2) e via $\gamma(2)$, cujas taxas de contagem estão indicadas.

2.2. Preparação das fontes para medida no sistema de coincidência

As fontes utilizadas em sistemas de medida absoluta devem ser preparadas com um substrato fino o suficiente para que não haja auto absorção das partículas beta.

Os substratos utilizados na confecção das fontes deste trabalho são filmes finos de Collodion (nitrato de celulose, com espessura de $\sim 10 \mu\text{g cm}^{-2}$) aderidos a arandelas de aço inoxidável com 0,2 mm de espessura, diâmetro interno de 2 cm e externo de 4 cm. O conjunto é metalizado em ambos os lados com Au, o que lhe confere uma espessura final de $20 \mu\text{g cm}^{-2}$, tornando-o condutor para que, uma vez colocado no interior do detector proporcional, não interfira no seu campo elétrico.

As fontes são preparadas depositando-se sobre o centro do substrato alíquotas conhecidas da solução radioativa. Para evitar a formação de cristais quando da secagem da solução, garantindo a homogeneidade do conjunto, adiciona-se uma gota de Cyastat, um agente que rompe a tensão superficial do líquido e faz-se a secagem com jato aquecido de

nitrogênio (45°C), impedindo a formação de cristais grandes com a secagem rápida. Na Figura 2.8 é mostrado um esquema das fontes.

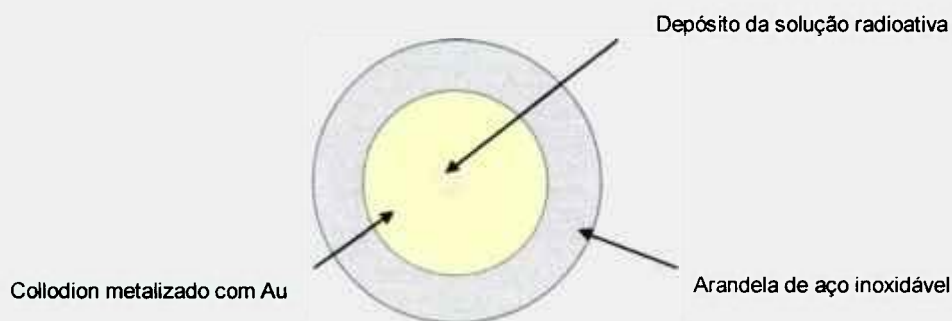


Figura 2.8. Esquema das fontes para as medidas no sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$.

A massa das fontes é determinada pelo método do picnômetro^[14], que consiste na pesagem do picnômetro que contém a solução radioativa em balança analítica de precisão (Sartorius MC 21S) antes e depois da deposição das alíquotas sobre o substrato, sendo a sua massa determinada pela diferença entre pesagens consecutivas. No cálculo da massa são feitas correções para condições normais de temperatura e pressão atmosférica.

2.3. Método para análise das medidas

A análise dos espectros adquiridos foi feita determinando-se as taxas de contagem de cada uma das regiões de interesse, correspondentes às taxas N_β , N_γ^n e N_c^n , onde n especifica cada uma das janelas gama distintas quando forem definidas duas janelas no sistema de medidas.

Esta análise é feita utilizando-se o programa CONTAC^[15] que determina as taxas de contagem por integração numérica das regiões definidas previamente por uma análise

visual dos espectros, informando-se ao programa os canais correspondentes às contagens beta, gama, coincidências e coincidências espúrias.

Também são aplicadas correções para perdas devidas ao tempo morto dos detectores e do sistema eletrônico, para radiação de fundo e para o decaimento das soluções em análise durante a medida. As coincidências são corrigidas para coincidências acidentais ou espúrias que ocorrem devido ao tempo de resolução dos detectores.

2.3.1. Correção para tempo morto

O tempo morto de um sistema de medida é o intervalo mínimo de tempo que este necessita para registrar duas contagens consecutivas, ou seja, os eventos que ocorrerem durante este intervalo não serão registrados, e haverá um erro nas taxas de contagem proporcional à atividade da fonte emissora.

No sistema TAC, o tempo morto é próprio do multicanal, dado em função do canal em que é registrado o evento. A correção é dada pela razão entre o tempo vivo (*live time*) e o tempo real (*real time*) de medida registrados no multicanal.

2.3.2. Correção para radiação de fundo

Para cada espectro de medida no sistema de coincidências registrado no multicanal é também adquirido um espectro da radiação de fundo, proveniente de eventos externos que incidem no detector e que geram contagens que não são devidas ao decaimento da amostra.

O espectro da radiação de fundo é adquirido após o registro do espectro da fonte contendo a amostra em estudo, mantendo as mesmas condições e geometria de medida. As taxas de contagens verdadeiras são obtidas subtraindo-se as taxas de contagem devidas à radiação de fundo ponto a ponto.

2.3.3. Correção para decaimento radioativo

Esta correção é feita para corrigir as perdas nas taxas de contagem devido ao decaimento radioativo durante o tempo de medida, sendo estas perdas mais significativas para radionuclídeos de meia-vida curta. As correções para taxas de contagem N registradas pelo sistema de aquisição de dados são feitas aplicando-se a equação 2.1

$$N_r = N \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}} e^{\lambda(t_m - t_r)} \quad (2.1)$$

onde

- N_r é a taxa de contagem na data de referência,
- N é a taxa de contagem na data da medida,
- t é o tempo de medida,
- t_r é a data de referência,
- t_m é a data da medida,
- λ é a constante de decaimento.

2.3.4. Correção para coincidências acidentais ou espúrias

As taxas de coincidências são corrigidas para coincidências acidentais devidas ao tempo de resolução do sistema de medida de acordo com o formalismo de Cox e Isham^[16] e adaptado por Smith^[17,18]. Este formalismo considera todos os casos possíveis para que ocorram coincidências acidentais.

2.4. Padronização do ^{166m}Ho

O ^{166m}Ho decai com uma meia-vida de 1200 anos por emissão β^- populando os níveis excitados do ^{166}Er , o qual se desexcita pela emissão de fótons X e gama em uma extensa faixa de energia, de 48 a 1427 keV. Nas Figuras 2.9 e 2.10 é apresentado seu esquema de decaimento e na Tabela 2.1 os seus principais modos de decaimento, com energias X e gama mais intensas e probabilidades de emissão^[19].

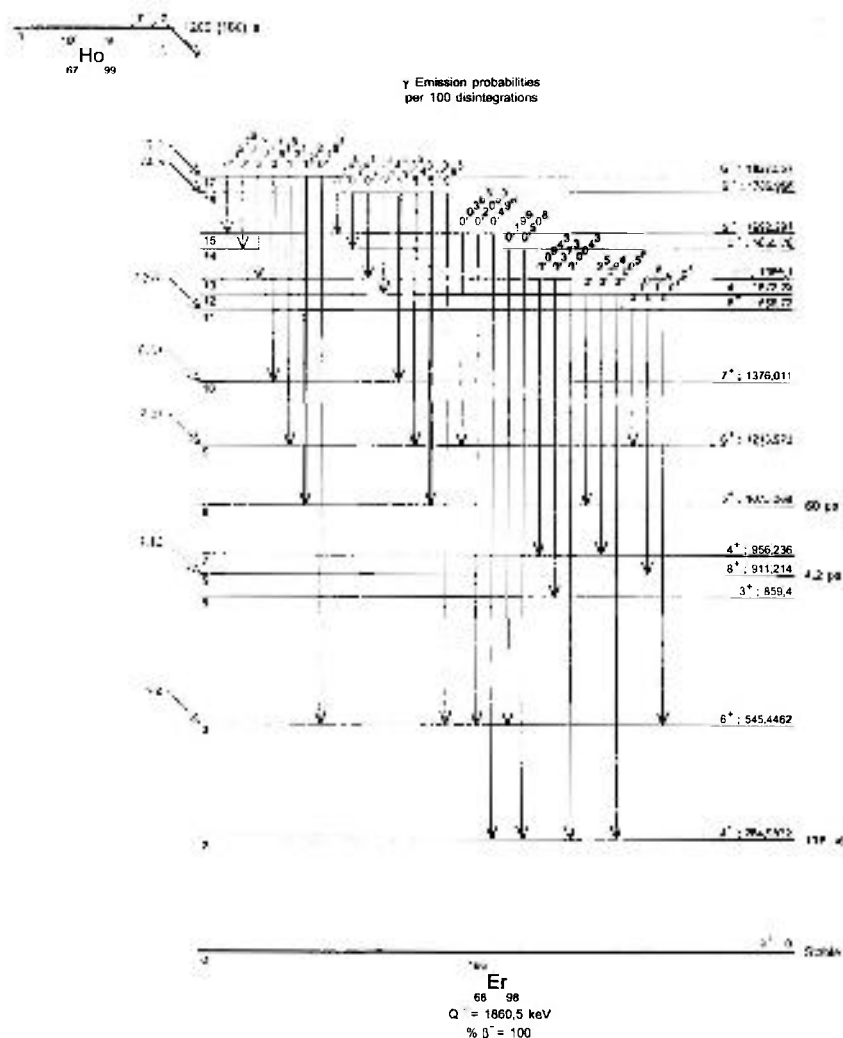


Figura 2.9: Esquema de decaimento do ^{166m}Ho ^[19]. Parte 1.

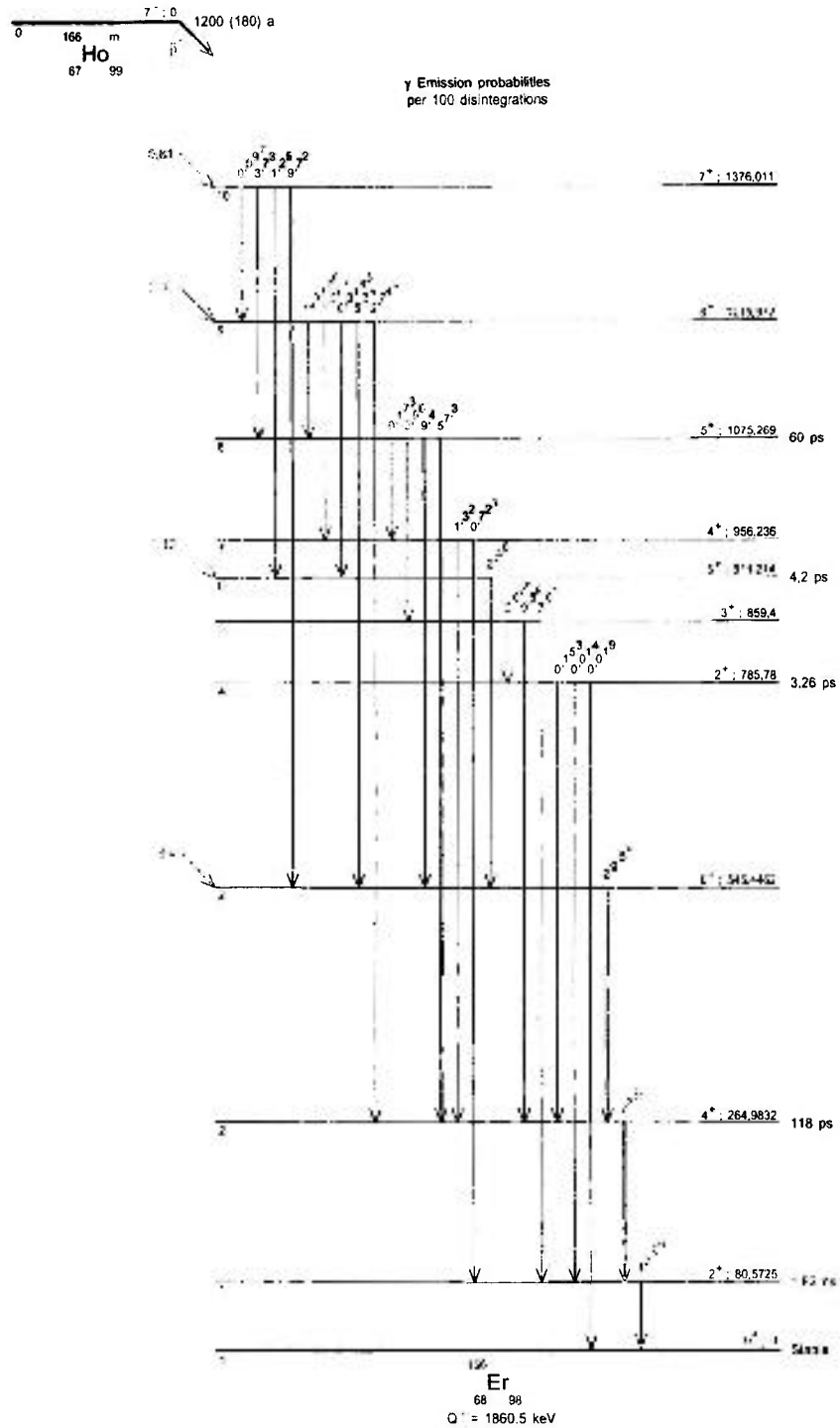


Figura 2.10: Esquema de decaimento do $^{166m}\text{Ho}^{[19]}$. Parte 2.

Tabela 2.1. Principais modos de decaimento do $^{166m}\text{Ho}^{[19]}$.

Radiação emitida	Energia (keV)	Intensidade(%)
XK α_2	48,2211	10,81(21)
XK α_1	49,1277	19,2(4)
$\gamma_{1.0}$	80,5725(13)	12,66(23)
$\gamma_{2.1}$	184,4107(11)	72,5(3)
$\gamma_{9.7}$	259,736(10)	1,078(10)
$\gamma_{3.2}$	280,4630(23)	29,54(25)
$\gamma_{10.8}$	300,741(3)	3,73(3)
$\gamma_{6.3}$	365,768(6)	2,46(4)
$\gamma_{16.10}$	410,956(3)	11,35(17)
$\gamma_{17.10}$	451,540(4)	2,915(14)
$\gamma_{8.3}$	529,825(4)	9,4(4)
$\gamma_{16.9}$	570,995(5)	5,43(20)
$\gamma_{9.3}$	670,526(4)	5,34(21)
$\gamma_{7.2}$	691,253(7)	1,32(7)
$\gamma_{16.8}$	711,697(3)	54,9(9)
$\gamma_{17.8}$	752,280(4)	12,2(3)
$\gamma_{5.1}$	778,827(6)	3,01(8)
$\gamma_{8.2}$	810,286(4)	57,3(11)
$\gamma_{10.3}$	830,565(4)	9,72(18)
$\gamma_{9.2}$	950,988(4)	2,744(19)
$\beta_{0.17}^-$	32,9(9)	17,2(4)
$\beta_{0.16}^-$	73,5(9)	74,8(12)
$\beta_{0.11}^-$	304,6(9)	0,394(5)
$\beta_{0.10}^-$	484,5(9)	0,81(26)
$\beta_{0.9}^-$	644,5(9)	2,31(29)
$\beta_{0.6}^-$	949,3(9)	1,12(6)
$\beta_{0.3}^-$	1315,1(9)	3,4(6)

Por estas características, como meia vida longa e ampla faixa de emissão gama, algumas com altas probabilidades de emissão, como em 80,57, 184,41, 711,69 e 810,28 keV, o ^{166m}Ho pode ser considerado um bom padrão para calibração de espectrômetros.

Seu esquema de decaimento, no entanto, apresenta algumas discrepâncias no que se refere às probabilidades de emissão por decaimento, necessitando de medidas experimentais com boa exatidão que ajude a dirimi-las, melhorando as compilações encontradas na literatura.

Esta necessidade tem motivado alguns autores a publicarem seus trabalhos a respeito da padronização do ^{166m}Ho e da determinação de suas probabilidades de emissão X e gama ao longo dos últimos anos.

Em 2001, Bernardes et al.^[20], publicaram seu trabalho sobre a utilização do ^{166m}Ho como um padrão multi emissor gama para a calibração de espectrômetros. A solução radioativa utilizada foi fornecida pelo NMIJ (Japão) para uma comparação interlaboratórios (mesma solução utilizada neste trabalho). A atividade dela foi determinada por medida em sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com incerteza de 0,5% e as probabilidades de emissão foram determinadas com espectrômetro coaxial de Ge, com incerteza da ordem de 0,65% para a energia mais intensa (184 keV).

Em 2000, Hino et al.^[21] publicaram um artigo com a medida absoluta da atividade do ^{166m}Ho e o desenvolvimento de fontes seladas deste radionuclídeo para a padronização de emissores γ em câmeras de ionização. A atividade da solução foi determinada pelo método de coincidências em sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com fontes preparadas em filmes finos de VYNS a partir de solução radioativa fornecida pelo NMIJ (Japão) para comparação interlaboratórios (mesma solução utilizada neste trabalho), com três tipos de discriminação γ distintas: uma janela no fôtopico de 185 keV, outra contendo os picos entre 700 e 830 keV e a terceira em modo integral acima de 80 keV. Os resultados para as diferentes janelas selecionadas concordaram entre si com incerteza de 0,5%.

Em 1996 Morel et al.^[22] publicaram um trabalho onde determinaram as probabilidades de emissão KX e γ do ^{166m}Ho utilizando dois detectores de germânio

calibrados, um do tipo planar e outro coaxial. Os picos X e γ dos espectros foram analisados ajustando-se, respectivamente, funções de Voight e distribuições gaussianas. A atividade da solução radioativa utilizada foi determinada com a medida de fontes pontuais em detector cintilador de iodeto de sódio, com incerteza de 0,2%. Os resultados finais para as probabilidades de emissão γ das linhas mais intensas foram determinados com incertezas da ordem de 0,5%.

2.5. Padronização do ^{54}Mn

O ^{54}Mn decai com meia-vida de 312,3 dias por captura eletrônica. Na Figura 2.11 é apresentado seu esquema de decaimento.

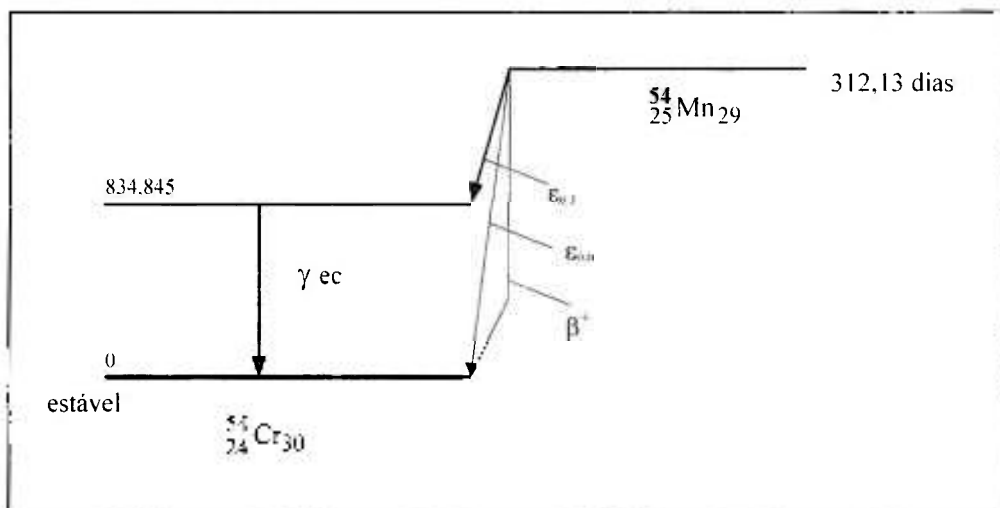


Figura 2.11: Esquema de decaimento do ^{54}Mn .

Tabela 2.2. Modos de decaimento do ^{54}Mn .

Radiação emitida	Energia (keV)	Probabilidade(%)
XL	0,50 – 0,65	0,65(13)
XK α_2	5,405	7,66(13)
XK α_1	5,415	15,0(3)
XK β_3	5,947	} 3,05(6)
XK β_1	5,947	
$\epsilon_{0,1}$	542,3(10)	99,9997(3)
$\epsilon_{0,0}$	1377,1(10)	0,0003(3)
$\beta^+_{0,1}$	355,1(10)	0,00000057
$\gamma_{1,0}$	834,845(5)	99,9997(3)

2.6. Padronização do ^{72}Ga

A padronização do ^{72}Ga no sistema de coincidências foi desenvolvida devido ao interesse das suas linhas de energia gama na região de alta energia, onde não há muitos padrões disponíveis.

O ^{72}Ga decai com uma meia-vida de 14,10(2) horas por emissão β^- , populando os estados excitados do ^{72}Ge , como mostram as Figuras 2.12 e 2.13. Na Tabela 2.3 estão as principais linhas de energia gama emitidas com suas respectivas probabilidades de emissão^[24].

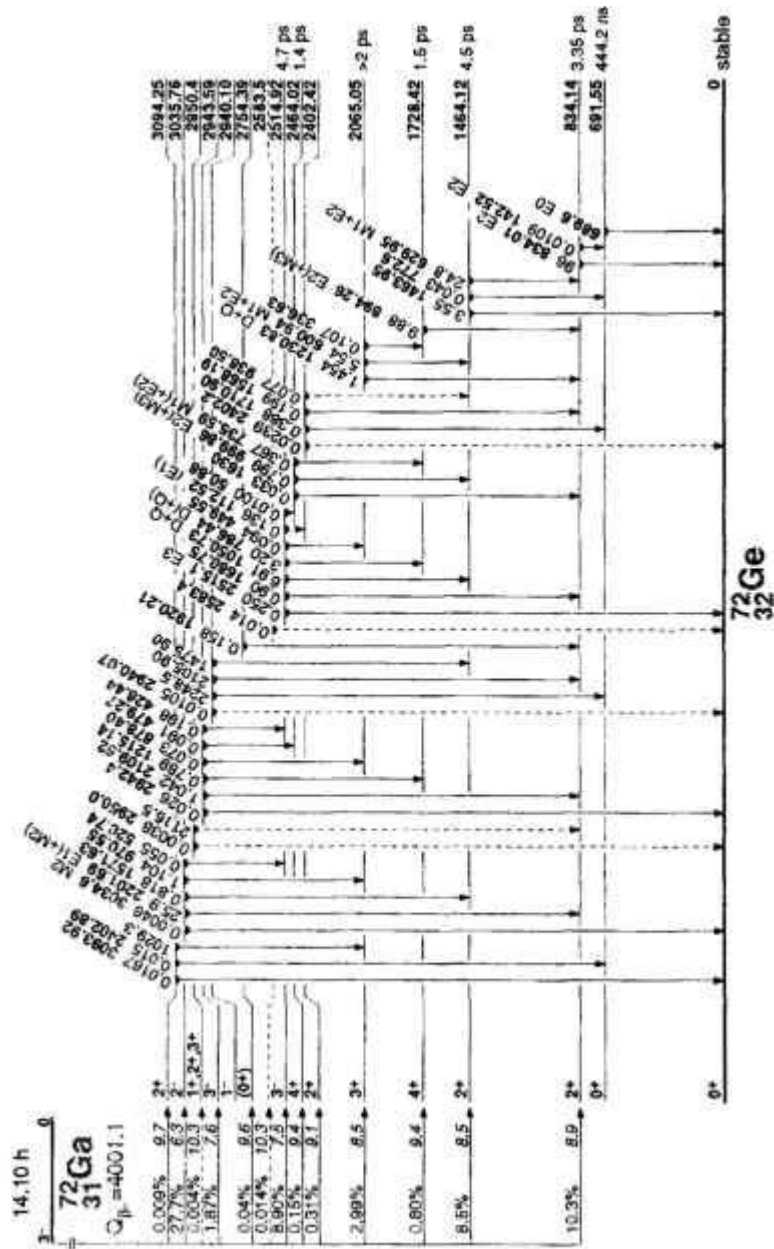


Figura 2.12. Esquema de decaimento do ^{72}Ga . Parte 1^[24].

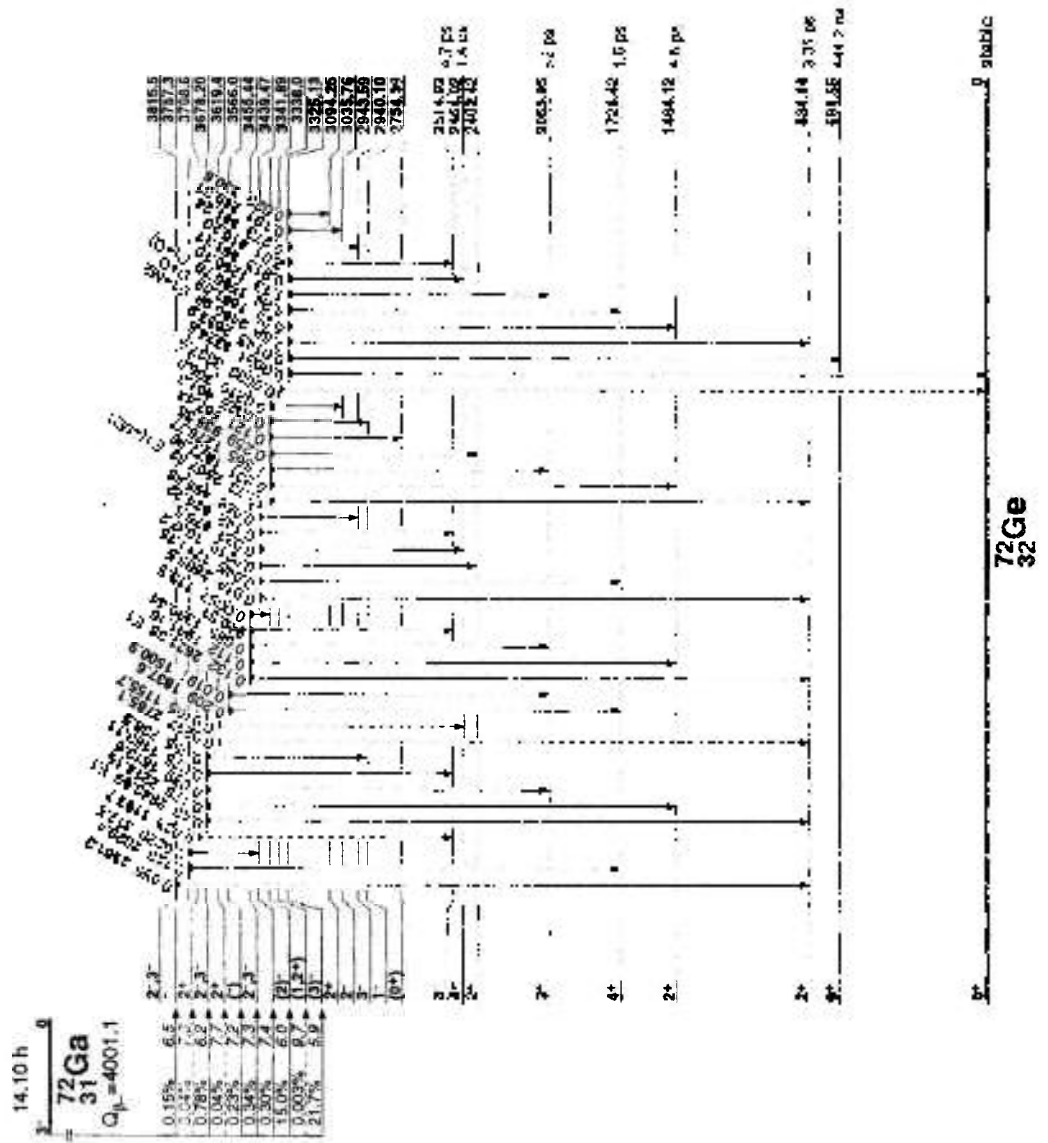


Figura 2.13. Esquema de decaimento do ^{72}Ga . Parte 2^[24].

Tabela 2.3. Principais linhas de energias gama de decaimento do $^{72}\text{Ga}^{[24]}$.

Energia (keV)	Intensidade(%)
600,95(3)	5,53(11)
629,96(4)	24,76(48)
786,44(8)	3,20(6)
810,20(9)	2,008(38)
834,03(3)	95,63(7)
861,11(5)	0,913(20)
894,25(10)	9,87(16)
999,86(6)	0,798(14)
1050,69(5)	6,91(11)
1230,86(7)	1,453(19)
1260,10(7)	1,128(29)
1276,76(7)	1,564(16)
1464,00(7)	3,547(57)
1596,68(8)	4,236(86)
1861,09(6)	5,250(77)
2201,66(7)	25,91(47)
2490,98(7)	7,67(23)
2507,79(7)	12,77(23)

O ^{72}Ga pode ser usado como um padrão auxiliar para calibração de espectrômetros, principalmente devido às emissões gama de alta intensidade de 629,96, 834,03, 2201,66 e 2507,79 keV, sendo que estes últimos ajudariam a preencher o intervalo de energia entre 1836,08 e 2754,03 keV do ^{88}Y e ^{24}Na , respectivamente, geralmente utilizados como padrões na região de alta energia nas curvas de calibração.

Como possui meia-vida curta, o desenvolvimento do método de padronização em sistema de coincidência, determinando as constantes de correção para o seu esquema de decaimento, é de grande interesse, pois possibilitará o seu uso como padrão na calibração de espectrômetros apenas fazendo-se uma medida simples da atividade em sistema de medida absoluta.

Na literatura, a maioria dos trabalhos publicados, como Medeiros^[25], Camp^[26] e Rester^[27] apresentam medidas das intensidades relativas de emissão gama obtidas com boa exatidão, considerando um dos gamas de maior abundância (834 keV) com probabilidade de 100%.

Em 2004, Miyahara et al^[28], da Universidade de Nagoya, Japão, publicaram seu trabalho sobre medidas altamente precisas das intensidades relativas do ⁷²Ga. As medidas foram feitas em dois sistemas com detectores de HPGe, um do tipo vertical, com eficiência relativa de 25% e distância fonte-detector de 30 cm e outro do tipo horizontal, com eficiência relativa de 24% e distância fonte-detector de 9 cm, considerando o esquema de decaimento, muito favorável no caso do ⁷²Ga, uma vez que quase todos os níveis alimentam o nível correspondente ao gama mais intenso de 834,03 keV. As baixas incertezas alcançadas, da ordem de 0,05% para a energia mais intensa, deveu-se à alta precisão na curva de calibração dos espectrômetros utilizados.

Não foram, no entanto, localizados trabalhos onde a medida das probabilidades de emissão é determinada por medidas absolutas que empregam o método de coincidências $4\pi\beta-\gamma$.

2.7. Simulação da curva de extrapolação linear da eficiência pelo método de Monte Carlo.

A metodologia de simulação do processo de detecção do sistema de coincidências, obtido pela teoria de Monte Carlo desenvolvida por Takeda et al.^[29], foi aplicada neste trabalho na padronização do ^{166m}Ho e ⁷²Ga, para comparação do comportamento previsto pela simulação com os dados experimentais.

Esta simulação utiliza o código de Monte Carlo MCNP (Monte Carlo N-Particle Transport Code System) sendo consideradas as características do detector proporcional e do cristal cintilador utilizados e o esquema de decaimento do radionuclídeo em estudo.

O programa faz uma simulação do espectro de coincidências medido e do espectro gama medido no cintilador de NaI(Tl), permitindo a escolha do intervalo de energia gama que resulta na determinação da atividade com melhor precisão.

Como resultado, esta simulação prediz em detalhes a curva de extrapolação principalmente na região de alta eficiência, região esta dificilmente alcançada com os dados experimentais devido à auto absorção das partículas beta de baixa energia na própria fonte.

Na Figura 2.14 é mostrado o espectro gama teórico obtido para o caso do ^{166m}Ho , ressaltando os intervalos de energia que poderiam ser considerados na discriminação da janela gama.

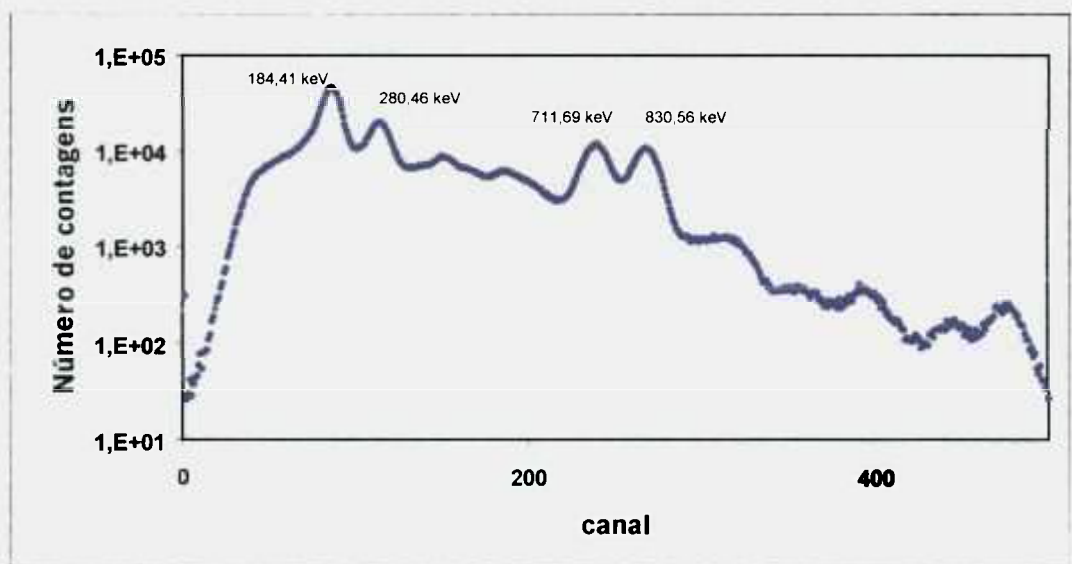


Figura. 2.14: Espectro gama do ^{166m}Ho em cristal cintilador de NaI(Tl) obtido por simulação utilizando o método de Monte Carlo.

O gráfico da Figura 2.15 mostra a simulação da curva de extrapolação da eficiência para diferentes janelas gama discriminadas, no qual se verifica que cada escolha resulta em um comportamento (inclinação) diferente. As janelas selecionadas foram:

- Janela 1 no pico de 184,41 keV
- Janela 2 no pico de 280,46 keV
- Janela 3 abrangendo os picos de 711,69 a 810,28 keV
- Janela 4 abrangendo os picos de 184,41 a 810,28 keV

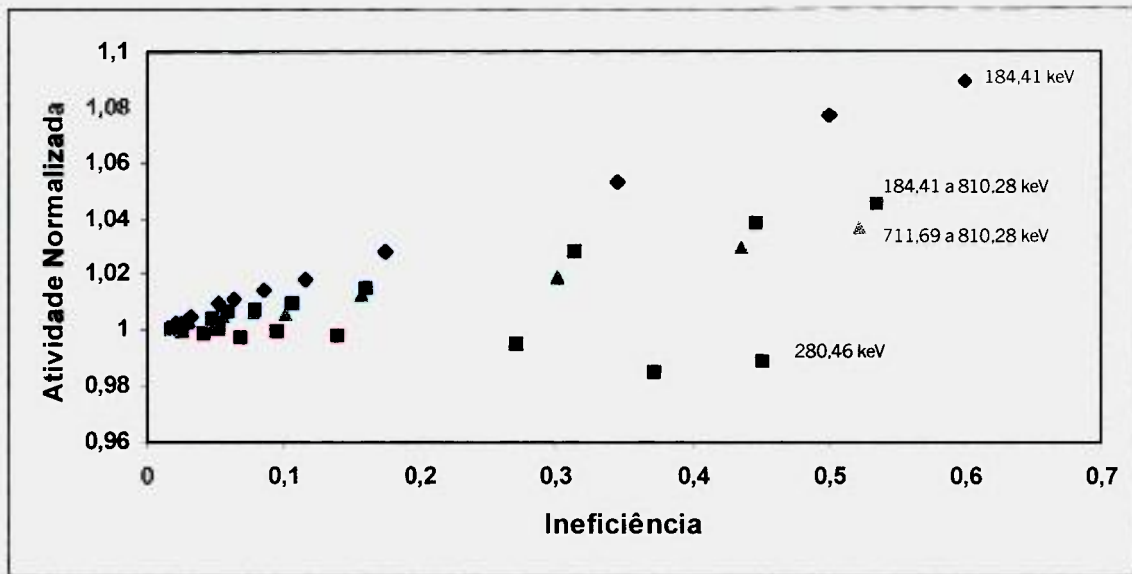


Figura 2.15. Diferença no comportamento das curvas de extrapolação da eficiência para o ^{166m}Ho conforme a escolha da janela gama. Dados obtidos por simulação utilizando o método de Monte Carlo.

Como pode ser visto pelas diferentes inclinação obtidas, a escolha da janela gama é de grande importância no planejamento da medida absoluta. Isto porque, quando a simulação é feita antes das medidas, pode-se determinar qual janela gama permite a obtenção de uma menor correção para o esquema de desintegração (equação 1.26), implicando em resultados mais precisos.

No Capítulo 4 serão apresentados os resultados da simulação juntamente com os dados experimentais do ^{166m}Ho e também sua aplicação aos dados experimentais do ^{72}Ga .

3. ESPECTROMETRIA X E GAMA COM DETECTOR SEMICONDUTOR DE HPGE

Tipicamente, a espectrometria gama é feita com detectores semicondutores de germânio hiperpuro, os chamados detectores de HPGe. Essa preferência se deve às seguintes vantagens: tamanho reduzido, alta eficiência se comparado aos detectores a gás, devido a maior densidade dos sólidos, pulsos rápidos, altura de pulso proporcional a energia depositada e alta resolução.

Os fótons emitidos pela fonte radioativa interagem com o cristal semicondutor produzindo pares elétron-lacuna na camada de uma junção pn do mesmo. Os elétrons e as lacunas são coletados em terminais opostos por causa da voltagem através da junção, da mesma forma que elétrons e íons são coletados em detectores a gás^[30,31]. Essa coleta gera pulsos cuja amplitude é proporcional à energia liberada na interação.

Os pulsos coletados no detector são amplificados e enviados a um módulo multicanal (MCA) com conversor de pulsos analógicos em digitais (ADC) o qual distribui estes pulsos em função de sua amplitude nos canais do MCA formando um histograma que representa o número de fótons absorvidos em função de suas energias. O resultado final mostrará o espectro gama do radionuclídeo em estudo com um ou mais picos em distribuição aproximadamente normal (ou gaussiana) correspondentes aos fótons que depositaram toda sua energia no interior do cristal, ou seja, os picos de absorção total, montados sobre o espectro contínuo proveniente das interações com perda parcial de energia.

A identificação de um radionuclídeo é feita a partir da calibração do espectro em energia localizando os picos de absorção total. Essa calibração é feita pela medida de várias fontes-padrão com energias bem conhecidas, localizando os picos e relacionando suas centróides (canal) à energia correspondente.

3.1. Calibração do espectrômetro em eficiência

Os radionuclídeos denominados primários, ou de referência, são aqueles que apresentam parâmetros com boa exatidão e são os radionuclídeos recomendados para determinação da curva de calibração em eficiência de um determinado espectrômetro gama.

A calibração em eficiência do espectrômetro é feita por meio da medida de fontes padrões com atividade, energia e probabilidade de emissão X e gama bem conhecidas e meia-vida longa o bastante para não interferir na taxa de contagem obtida. A eficiência é determinada pela equação

$$\varepsilon(E_{X,\gamma}) = \frac{S(E_{X,\gamma})}{Ap(E_{X,\gamma})Tf_{\tau}f_a f_g f_s} \quad (3.2)$$

onde

$\varepsilon(E_{X,\gamma})$	eficiência do pico de absorção total correspondente à energia $E_{X,\gamma}$
$S(E_{X,\gamma})$	área sob o pico de absorção total correspondente à energia $E_{X,\gamma}$
A	atividade absoluta da fonte na data da medida
T	tempo de medida
f_{τ}	fator de correção para tempo morto
f_a	fator de correção para atenuação na própria fonte
f_g	fator de correção para geometria de medida
f_s	fator de correção para efeito soma
$p(E_{X,\gamma})$	probabilidade de emissão X ou gama de energia $E_{X,\gamma}$

A relação entre eficiência e energia é logarítmica, sendo a curva determinada por um ajuste polinomial. A equação obtida será da forma

$$\ln \varepsilon(E)_{\gamma_i} = \sum_{j=0}^n a_j (\ln E_{\gamma_i})^j \quad (3.3)$$

onde

- a_j coeficientes do ajuste
 n grau do polinômio ajustado

3.2. Sistema de medida com detector semiconductor de HPGe

O detector utilizado é o ReGe (*Reverse-electrode Ge detector*) mod. Canberra GX020, coaxial, com janela de Be, diâmetro de 57,7 mm e comprimento de 41,5 mm, eficiência relativa de 20% e resolução de 1,79 keV para a energia de 1332 keV do ^{60}Co ^[32]. No corpo do detector estão também o pré-amplificador e o filtro de alta tensão, posicionados junto ao cristal. O conjunto é montado sobre um “dewar” com nitrogênio líquido, o que garante ao cristal operar à temperatura necessária para um melhor desempenho, com baixo ruído eletrônico e alta resolução.

A Figura 3.1 mostra um esquema do detector utilizado. O ReGe é similar a outros detectores de Ge coaxiais, com uma importante diferença: os eletrodos do ReGe são opostos aos do detector coaxial convencional, estando o eletrodo tipo-p (íon implantado do Boro) no lado externo e o eletrodo tipo-n (Lítio difundido) na parte interna. Essa configuração traz duas vantagens: a espessura da janela (0,2 μm , permitindo um intervalo de energia de 5 keV a 10 MeV) e maior resistência aos danos devidos à radiação.

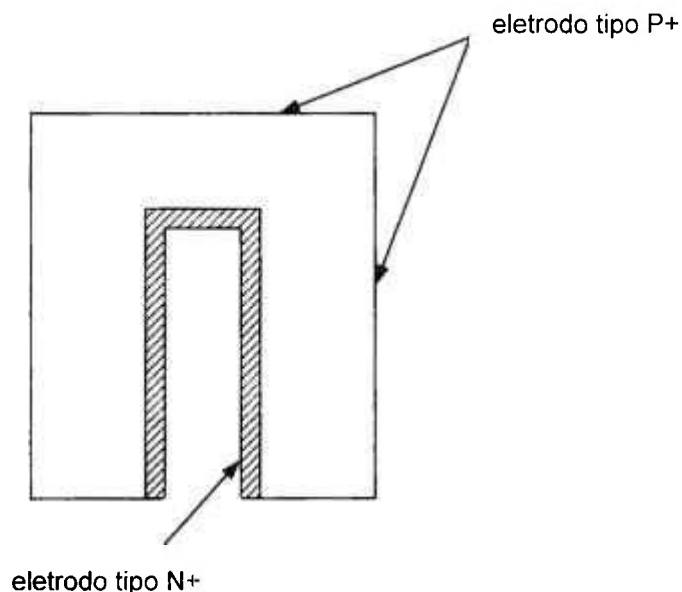


Figura 3.1. Seção de corte do detector ReGe^[32].

Na foto da Figura 3.2 vê-se o suporte de lucite para as fontes, posicionado sobre o detector e dentro de uma blindagem de chumbo. Nesta configuração, a distância fonte-detector é de 17,6 cm.

Na Figura 3.3 é apresentado um diagrama do sistema eletrônico para as medidas no espectrômetro de HPGe. Os pulsos provenientes no detector passam pelo amplificador e são registrados no Analisador Multicanal, placa TRUMP da Ortec, inserida em um microcomputador e gerenciada pelo programa MAESTRO^[33].

Um gerador de pulsos é utilizado para o cálculo do tempo morto do sistema de medida, por meio da análise da área de seu pico registrado no espectro, posicionado fora da zona dos picos de interesse para não interferir nas medidas.



Figura 3.2 Foto do suporte para fontes do arranjo experimental com espectrômetro HPGe.

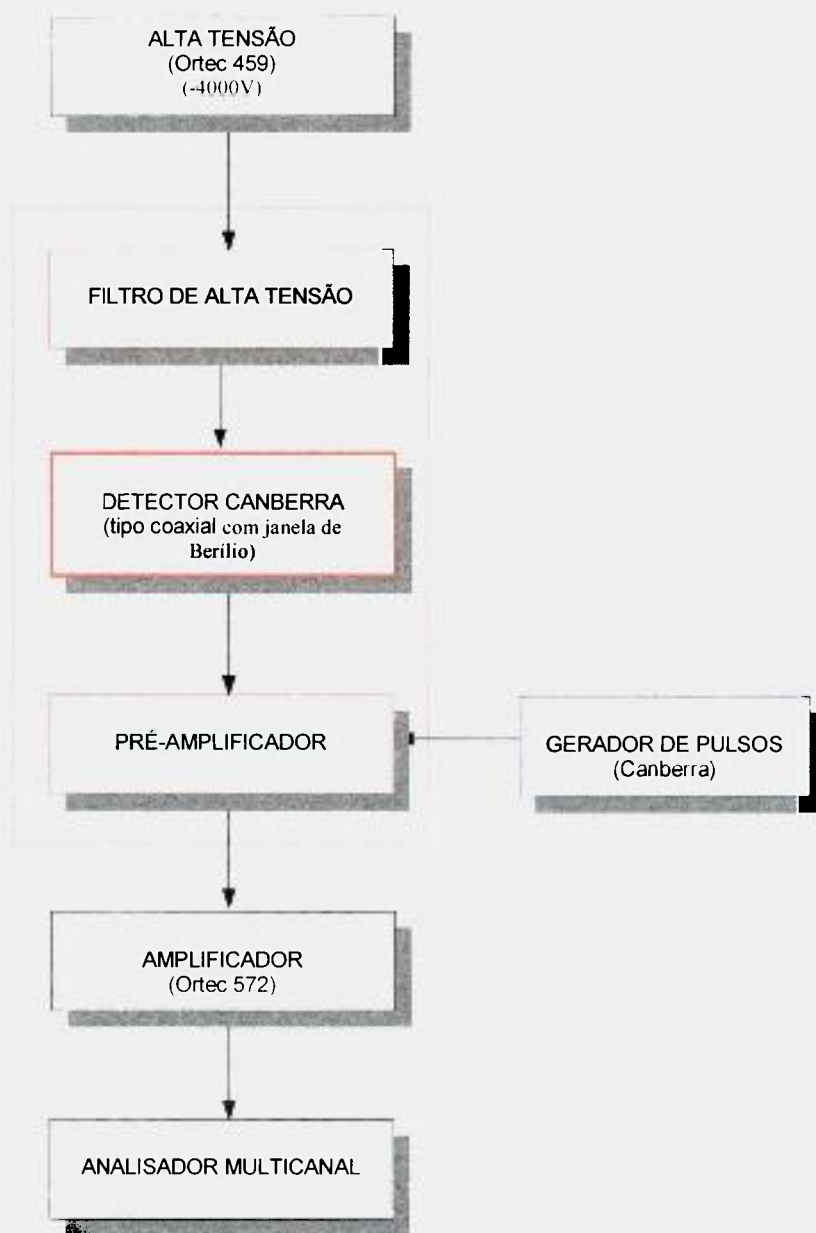


Figura 3.3: Esquema do sistema eletrônico para medidas no espectrômetro HPGe.

3.3. Métodos para análise dos espectros

Para este trabalho foram escolhidos dois métodos de análise de espectros, aplicados por dois programas de computador com características de análise e utilização distintas.

Um deles, o programa ALPINO^[34], que utiliza o método de integração numérica, foi utilizado na análise dos espectros para energias acima de 39 keV. Para regiões de energias menores ou em regiões com superposição de picos, como no caso dos raios X do ^{166m}Ho, na faixa de 48 a 49 keV, foi adotado o programa COLEGRAM^[35,36], que aplica o ajuste de funções na análise dos espectros.

3.3.1. Método de integração numérica

O programa ALPINO^[34], desenvolvido no LMN (Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN), possibilita a análise dos espectros a partir da leitura canal por canal do espectro em estudo, bem como de parâmetros fornecidos pelo usuário em arquivo de entrada, como meia-vida, fatores de correção de tempo morto e geometria de medida, linhas de energia de interesse com respectivas probabilidades de emissão, entre outros. A área sob os picos de interesse é determinada por integração numérica^[30] de acordo com a equação 3.4^[31].

$$S(E_\gamma) = \sum_{K_2+1}^{K_3-1} C_i - S_B F_K \quad (3.4)$$

onde

- C_i contagem no canal i
- F_K fator que leva em consideração o número de canais do pico de absorção total e o número de canais da região de fundo
- S_B área do espectro da radiação de fundo dada por^[31]

$$S_B = \sum_{K_1}^{K_2} C_i + \sum_{K_3}^{K_4} C_i \quad (3.5)$$

K_i canais considerados na soma, dados por

$K_1 = K_p - 3D$ é o canal de início da contagem da radiação de fundo

$K_2 = K_p - 2D$ é o canal de início do pico de absorção total

$K_3 = K_p + 2D$ é o canal final do pico de absorção total

$K_4 = K_p + 3D$ é o canal final de contagem da radiação de fundo

com K_p o canal da centróide do pico e D a resolução do espectrômetro.

Uma vez determinada a área, o cálculo da atividade da fonte medida e/ou a eficiência de detecção com suas respectivas incertezas é feito pela aplicação da equação 3.2.

Apesar da sua facilidade de utilização e boa precisão nos cálculos, sendo utilizado já há alguns anos nas medidas de rotina do LMN, seu uso é limitado pela incapacidade da análise de picos em regiões complexas, como as de baixas energias, onde os picos geralmente aparecem superpostos, podendo, nestes casos, ser utilizado na determinação da área total do pico, sem separação das diferentes linhas de energia envolvidas.

Para melhorar a análise de regiões de baixas energias, foi desenvolvida um versão do programa que subtrai a radiação de fundo pela aplicação da equação^[37]

$$BG = A_0 + A_1x + A_2x^2 + A_3\left(\frac{1}{1+e^z}\right) \quad (3.5)$$

onde

$$x = (x_i - x_p)$$

$$z = (x_i - x_p)/\sigma$$

$$x_i = \text{canal}$$

$$x_p = \text{canal do pico}$$

$$\sigma = \text{FWHM}/2,35482$$

3.3.2. Método de ajuste de funções

O programa COLEGRAM^[35,36], desenvolvido no DAMRI/LPRI(França), permite a análise de regiões complexas fazendo a deconvolução dos picos que aparecem superpostos, calculando a área sob os fotopicos de interesse após um ajuste de funções que melhor definem cada tipo de pico, como a Função de Gauss para fotopicos devido a fótons gama, descrita pela equação

$$G(x) = \frac{A}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(x-x_0)^2}{2\sigma^2}\right) \quad (3.6)$$

onde

x_0 é a posição do pico,

A é a amplitude,

σ é o desvio padrão,

e a Função de Voight para os raios X, que é o resultado da convolução de uma função Lorentziana por um perfil Gaussiano, da forma

$$V(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} L(x') \cdot G(x-x') dx' \quad (3.7)$$

com $L(x) = \frac{\Gamma/2\pi}{(x-x_0)^2 + (\Gamma/2)^2}$, onde Γ é a largura da Lorentziana.

A análise de espectros com este programa é visual, possibilitando acompanhar o ajuste das funções escolhidas aos pontos experimentais que formam o espectro verificando sua qualidade e precisão, não requerendo o conhecimento de nenhum outro parâmetro.

Para a região de radiação de fundo, pode-se ajustar funções exponenciais, polinomiais, com um ou dois degraus, de acordo com a necessidade de cada região.

Uma vez determinadas as áreas dos picos em estudo por este programa, a atividade da fonte medida e/ou a eficiência de detecção com suas respectivas incertezas são calculadas pela aplicação da equação 3.2.

3.4. Correções Aplicadas

Foram feitas correções nas áreas dos fotopicos de interesse para radiação de fundo, fator geométrico, atenuação da radiação pela própria fonte, tempo morto e efeito soma.

3.4.1. Fator Geométrico e de Atenuação

Considerando-se que foram utilizadas fontes preparadas em filmes finos de Collodion para as fontes-padrão e também para as amostras em estudo, a geometria de medida não se altera e, portanto, as correções para atenuação na própria fonte e fator geométrico podem ser consideradas iguais a 1.

3.4.2. Tempo Morto

O fator de correção para tempo morto é determinado pelo método do pulsador.

Um pulsador envia pulsos ao sistema eletrônico a intervalos de tempo regulares, com frequência conhecida (60 hertz) juntamente com os pulsos enviados pelo detector, sendo seu pico posicionado no final do espectro para não interferir na medida. O fator de correção é dado pela equação

$$f_{\tau} = \frac{S_{pm}}{S_{pr}} \quad (3.8)$$

onde

S_{pr} taxa real de contagens do pulsador (60 cps)

S_{pm} área sob o pico do pulsador no espectro da fonte medida

3.4.3. Efeito soma

Podem aparecer nos espectros pulsos causados pela detecção coincidente de dois ou mais fótons, principalmente em medidas de radionuclídeos que emitem múltiplas radiações gama em cascata. Quando o intervalo entre dois gamas simultâneos é muito pequeno, da ordem de ns, estes gamas são, na prática, emitidos em coincidência. É então possível que ambos os fótons interajam com o detector e depositem toda a sua energia em um intervalo de tempo pequeno, comparado com o tempo de resolução do detector ou do sistema eletrônico associado.

Se o número desses eventos coincidentes acumulados for suficiente para a formação de um pico, este aparecerá no espectro como um pico-soma, correspondente à soma das energias dos dois gamas individuais. Também haverá contribuição dos eventos de soma no fundo contínuo, em razão das interações com perda parcial de energia.

A probabilidade de ocorrência do efeito soma aumenta com o aumento da eficiência total, ou seja, diminuindo a distância fonte-detector ou para detectores com maior volume sensível, sendo, porém, independente da atividade das fontes.

A correção para efeito soma ou empilhamento foi feita utilizando-se o programa COINCIG^[38], desenvolvido no LMN. Neste código, os fatores de correção são determinados por meio de uma simulação da emissão de fótons gama em cascata e raios X, que dariam origem às coincidências gama-gama e X-gama de acordo com o esquema de desintegração de cada radionuclídeo.

3.5. Curva de calibração do espectrômetro HPGe

Para a determinação da curva de calibração do espectrômetro de HPGe foram medidas fontes em Collodion de ^{24}Na , ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{152}Eu e ^{241}Am previamente padronizadas no sistema de coincidências. Na Tabela 3.1 são apresentados estes radionuclídeos com suas respectivas meia-vidas, energias utilizadas, intensidade gama e as atividades das fontes.

Tabela 3.1. Dados das fontes padrões utilizadas na calibração do espectrômetro HPGe.

Radionuclídeo	Meia Vida (dias)	Energia ^{II} (keV)	I _{X_i} (%) ^{III}	Atividade (kBq/g)	Data de Referência
⁵⁴ Mn	312,3(4)	834,843(6)	99,975(2)	311,15(81)	30/09/03 às 21:00h
⁵⁷ Co	271,79(9)	14,4127(4)	9,16(15)	53,20(28)	23/01/04 às 0:00h
		122,0614(3)	85,60(17)		
		136,4743(5)	10,68(8)		
⁶⁰ Co	1925,5(5)	1173,238(4)	99,86(2)	160,07(24)	25/06/02 às 0:00h
		1332,502(5)	99,98(1)		
¹³³ Ba	3862(15)	53,16 ^[39]	2.200(22)	755,5(2,5)	01/08/02 às 0:00h
		80,90	36,77(30)		
		276,398(1)	7,14(3)		
		302,853(1)	18,30(6)		
		356,017(2)	61,94(14)		
		383,851(3)	8,90(3)		
¹⁵² Eu	4933(11)	39,90 ^a	59,1(12)	139,31(12)	01/07/99 às 9:00h
		121,7824(4)	28,37(13)		
		244,6989(10)	7,53(4)		
		344,2811(19)	26,57(11)		
		411,126(3)	2,238(10)		
		443,965(4)	3,125(14)		
		778,903(6)	12,97(6)		
		867,390(6)	4,214(25)		
		964,055(4)	14,63(6)		
		1112,087(6)	13,54(6)		
²⁴¹ Am	157850(240)	13,927	13,2(4)	294,9(4)	30/11/02 às 21:00h
		17,611	19,4(6)		
		20,997	2,9(2)		
		26,345	2,4(1)		
		59,537(1)	36,0(4)		
²⁴ Na		1368,633(6)	99,935(15)	199,24(24)	01/02/05 às 12:00h
		2754,030(14)	99,855(5)		

^{II} média das energias dos raios X de 39.52 a 40.12 keV

Os espectros obtidos foram analisados pelos programas descritos no Item 3.4, de acordo com a característica das diferentes regiões dos espectros.

Definidas as eficiências para cada energia padrão, ajustou-se três regiões diferentes, sendo

- região 1: de 13,9 a 136,47 keV,
- região 2: de 122,06 a 443,96 keV,
- região 3: de 244,70 a 2754,0 keV.

de acordo com o polinômio da equação 3.3, aplicando-se o programa LOGFIT3^[40], desenvolvido no laboratório, que utiliza o método dos mínimos quadrados no ajuste e a metodologia de análise de covariância para o cálculo das incertezas.

Essas regiões foram definidas devido às mudanças no comportamento da curva, havendo dificuldades especialmente na região intermediária, onde existem poucos pontos de energia padrões disponíveis. Diferentes faixas de ajuste testadas levaram a maiores incertezas.

A Figura 3.3 mostra a curva de calibração obtida. Os pontos representam os dados experimentais e a linha contínua as curvas ajustadas. Também foi feito uma simulação da curva de eficiência pelo método de Monte Carlo, determinando as eficiências total e de pico para todas as energias dos radionuclídeos padrões utilizados. Esta simulação é representada no gráfico em vermelho. A Figura 3.4 mostra os resíduos entre os ajustes e os pontos experimentais.

Foi aplicada correção para efeito soma, como descrito no item 3.4.3, somente para as eficiências das linhas de energia gama, uma vez que o programa utilizado não calcula as correções para soma X-X.

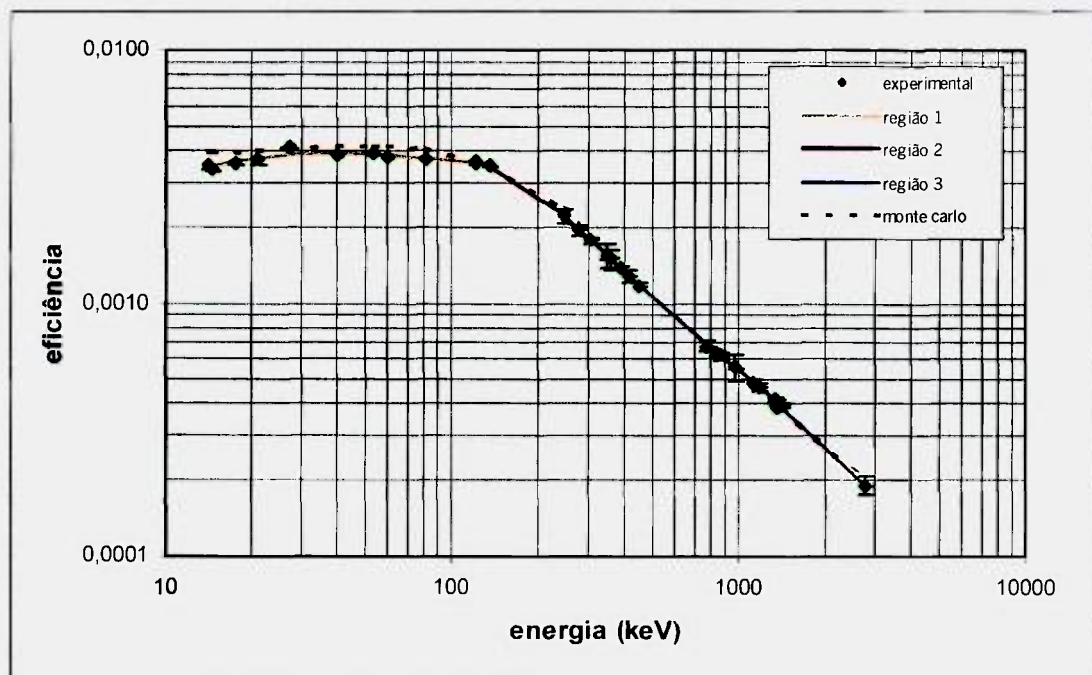


Figura 3.3: Curva de calibração do espectrômetro HPGe para fontes em Collodion, na faixa de energia de 13 e 2754 keV.

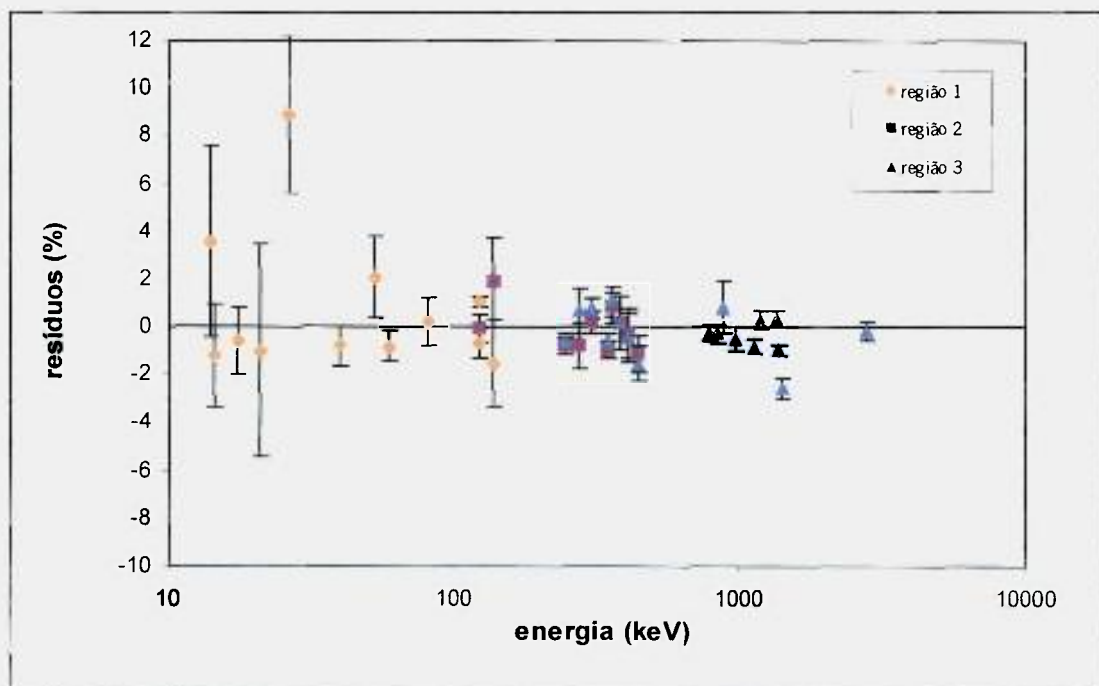


Figura 3.4: Resíduos entre os valores experimentais e ajustados da curva de calibração em eficiência do espectrômetro HPGe em função da energia.

Nota-se que, na região 2 da curva de calibração, existe um número muito baixo de pontos, e uma lacuna entre 136,47 e 244,69 keV. Nesta faixa, a utilização do ^{166m}Ho como padrão de calibração seria de grande importância, devido à sua emissão gama de 184,4keV, ajudando a definir com melhor precisão o ajuste desta região.

A região 3, apesar de conter um bom número de pontos, também apresenta duas lacunas que poderiam ser minimizados com o uso do ^{72}Ga como padrão secundário de calibração, como sugerido no Item 2.6.

No gráfico dos resíduos, observa-se um melhor ajuste a partir da região intermediária, com maior discrepância em baixas energias. Estas discrepâncias podem ser atribuídas às altas incertezas nas probabilidades de emissão X e gama nesta faixa de energia, demonstrando a necessidade de novos resultados experimentais com o objetivo de melhorar a precisão destes parâmetros.

4. RESULTADOS E DISCUSSÕES

Neste capítulo são apresentados os resultados deste trabalho para a padronização de radionuclídeos em sistema de medida absoluta, bem como para as probabilidades de emissão gama do ^{72}Ga e do $^{166\text{m}}\text{Ho}$, fazendo uma comparação destes últimos com os resultados existentes na literatura.

4.1. Padronização do $^{166\text{m}}\text{Ho}$

Foram preparadas 10 fontes, de acordo com o procedimento descrito no Item 2.2., a partir de uma solução fornecida pelo NMIJ (National Metrology Institute of Japan) por intermédio do LNMRI (Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes) e que foi utilizada em comparação internacional de medidas de atividade entre laboratórios^[41].

Para a padronização do $^{166\text{m}}\text{Ho}$ no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ I, o sistema eletrônico foi ajustado discriminando-se duas janelas gama distintas, uma na região do fotopico de 184,414 keV (janela gama 1) e outra na região dos fotopicos de 711,693 keV e 810,31 keV (janela gama 2). A Figura 4.1 mostra o espectro gama com as duas janelas em destaque.

Mediu-se as fontes variando-se a eficiência do detector β de 87 a 67% para janela gama 1 e de 88 a 71% para janela gama 2 com a adição de absorvedores externos de Collodion.

Obteve-se dois conjuntos distintos de dados, cada um representando uma das janelas gama discriminadas. Esses dados foram analisados pelo programa CONTAC^[15] determinando os valores de $N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$ e $(1-N_C/N_{\gamma})/(N_C/N_{\gamma})$ e suas incertezas, aplicando também as correções necessárias, como descrito no Capítulo 2.3.

Os valores obtidos são apresentados nas Tabelas 4.1 e 4.2 e as curvas de extrapolação da eficiência correspondentes estão apresentadas nos gráficos das Figuras 4.2 e 4.3.

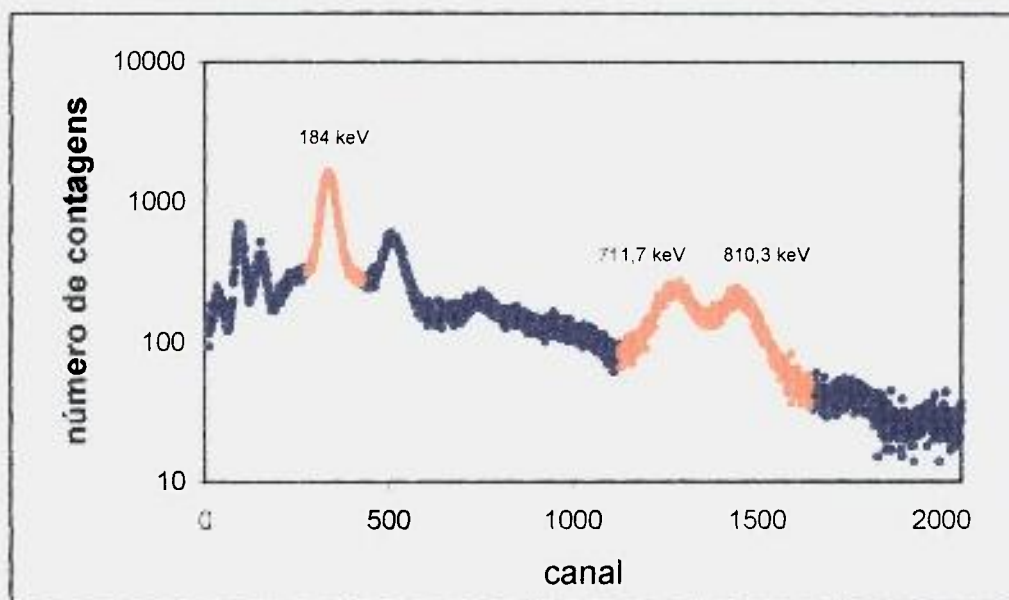


Figura 4.1 Espectro gama do ^{166m}Ho em detector de NaI(Tl). As regiões em destaque correspondem às janelas discriminadas no sistema de medidas, sendo a janela gama 1 no fotopico de 184,4 keV e a janela gama 2 compreendendo a região entre os fotopicos de 711,7 e 810,3 keV.

Tabela 4.1. Dados das medidas do ^{166m}Ho no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com variação da eficiência β com a adição de absorvedores externos para a janela gama 1.

Medida	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_C (\times 10^3)$	N_C/N_{γ}	$(1-N_C/N_{\gamma})/(N_C/N_{\gamma})$
1	131,9(5)	0,8583	0,1651(8)
2	131,6(5)	0,8629	0,1589(7)
3	131,5(6)	0,8498	0,1767(8)
4	132,9(4)	0,7904	0,2652(13)
5	131,0(6)	0,8687	0,1512(7)
6	132,5(5)	0,8102	0,2343(11)
7	133,2(6)	0,7706	0,2977(14)
8	133,5(4)	0,7666	0,3045(15)
9	131,5(4)	0,8505	0,1758(8)
10	131,4(5)	0,8720	0,1468(7)
11	131,6(5)	0,8598	0,1631(8)
12	131,3(6)	0,8636	0,1579(7)
13	131,5(6)	0,8511	0,1749(8)
14	131,6(6)	0,8415	0,1884(9)
15	131,6(6)	0,8346	0,1982(9)
16	132,4(6)	0,8273	0,2088(10)
17	133,1(6)	0,8131	0,2299(11)
18	137,8(9)	0,6717	0,4888(24)
19	137,1(9)	0,6871	0,4554(22)
20	135,7(6)	0,7314	0,3673(18)
21	131,9(5)	0,8372	0,1945(9)
22	134,0(7)	0,7869	0,2708(13)
23	134,3(7)	0,7729	0,2939(14)
24	134,0(7)	0,7765	0,2879(14)
25	135,4(6)	0,7486	0,3358(16)
26	137,5(9)	0,6849	0,4600(23)
27	135,2(6)	0,7404	0,3507(17)
28	134,8(6)	0,7476	0,3377(16)
29	133,5(4)	0,7724	0,2946(14)
30	134,0(5)	0,7875	0,2698(13)
31	133,0(3)	0,8109	0,2332(11)
32	132,6(4)	0,8592	0,1639(8)
33	132,5(3)	0,8485	0,1786(8)
34	132,5(3)	0,8721	0,1467(7)
35	133,8(4)	0,7836	0,2761(13)
36	132,3(4)	0,8651	0,1559(7)
37	132,6(4)	0,8700	0,1494(7)

Tabela 4.2. Dados das medidas do ^{166m}Ho no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com variação da eficiência β com a adição de absorvedores externos para a janela gama 2.

Medida	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$ ($\times 10^3$)	N_C/N_{γ}	$(1-N_C/N_{\gamma})/(N_C/N_{\gamma})$
1	129,2(6)	0,8760	0,1416(7)
2	129,3(6)	0,8643	0,1570(7)
3	129,6(6)	0,8102	0,2342(11)
4	128,9(5)	0,8829	0,1326(6)
5	129,6(8)	0,8279	0,2079(10)
6	129,3(6)	0,7939	0,2596(12)
7	129,7(7)	0,7888	0,2677(13)
8	128,9(5)	0,8676	0,1526(7)
9	129,4(5)	0,8857	0,1291(6)
10	129,6(6)	0,8728	0,1457(7)
11	129,6(6)	0,8747	0,1432(7)
12	129,5(6)	0,8641	0,1573(7)
13	130,0(7)	0,8521	0,1736(8)
14	129,7(7)	0,8472	0,1804(9)
15	129,8(7)	0,8440	0,1848(9)
16	130,4(8)	0,8299	0,2050(10)
17	130,9(10)	0,7067	0,4150(20)
18	131,4(10)	0,7167	0,3952(19)
19	130,6(7)	0,7599	0,3160(15)
20	129,3(5)	0,8541	0,1708(8)
21	131,2(10)	0,7103	0,4079(20)
22	130,1(8)	0,8104	0,2340(11)
23	130,0(8)	0,7987	0,2521(12)
24	130,7(8)	0,7961	0,2561(12)
25	130,5(7)	0,7764	0,2880(14)
26	131,3(10)	0,7173	0,3941(19)
27	130,9(7)	0,7651	0,3071(15)
28	130,8(7)	0,7704	0,2981(14)
29	131,2(5)	0,7860	0,2723(13)
30	131,6(6)	0,8023	0,2464(13)
31	130,8(5)	0,8716	0,1473(7)
32	130,6(3)	0,8611	0,1613(8)
33	131,0(4)	0,8819	0,1339(6)
34	130,5(5)	0,8771	0,1401(7)
35	130,9(5)	0,8807	0,1354(6)

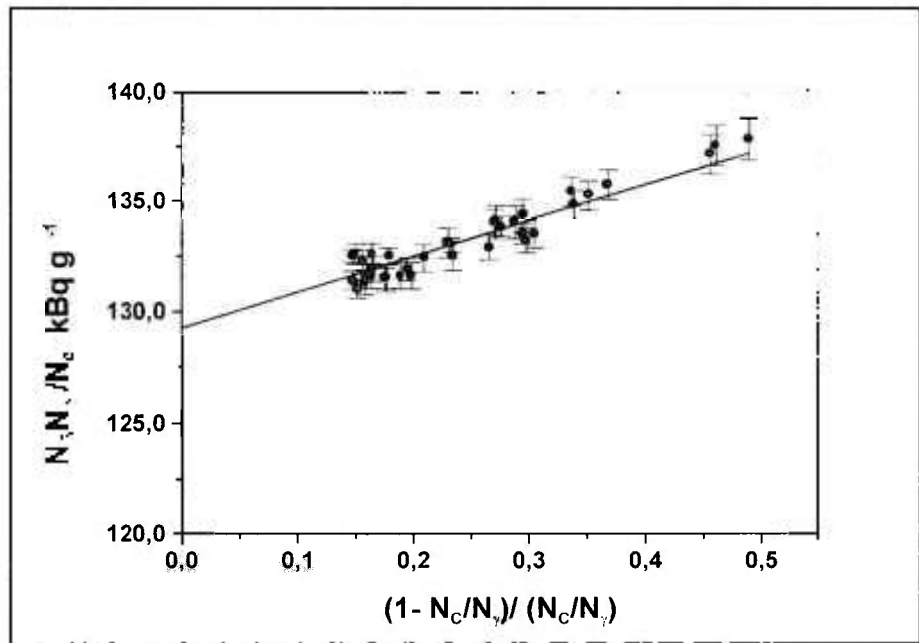


Figura 4.2. Curva de extrapolação da eficiência do ^{166m}Ho para a energia gama de 184,41keV.

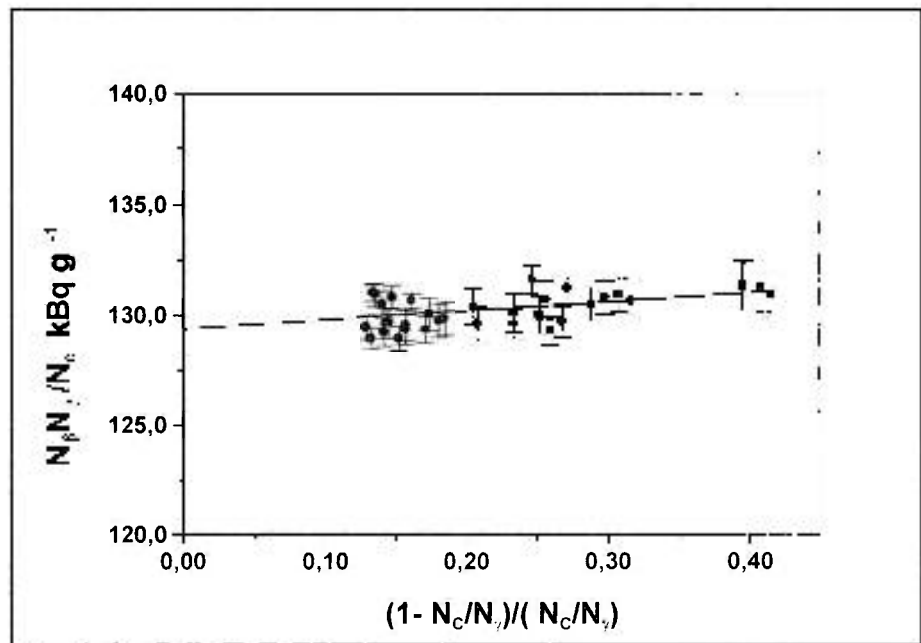


Figura 4.3. Curva de extrapolação da eficiência do ^{166m}Ho para a janela gama dos fotopicos de 711.69 e 830,31 keV.

A diferença na inclinação das retas é devida aos diferentes processos envolvidos no decaimento.

Na Tabela 4.3 são apresentados os resultados dos ajustes dos pontos experimentais para retas do tipo $y = a + bx$, calculados utilizando-se o programa LINFIT^[42]. No cálculo das incertezas foram considerados os erros parciais na massa das fontes, parâmetro de ineficiência e área de N_{β} , com fatores de correlação iguais a 1, 0 e 0, respectivamente. No cálculo da incerteza na média foram considerados ainda as incertezas na área de radiação de fundo, tempo morto e tempo de resolução.

Tabela 4.3: Parâmetros dos ajuste das curvas de extrapolação com respectiva matriz de covariância e atividade N_0 extrapolada para ineficiência $\beta = 1$ do ^{166m}Ho .

		Parâmetros (x 10 ³)	Matriz de covariância dos parâmetros (x 10 ³)	
janela γ_1	a	129,26(28)	0,083	
	b	16,09(1,13)	-0,273	1,274
janela γ_2	a	129,38(34)	0,115	
	b	4,05(1,51)	-0,446	2,292
		média de $N_0(x 10^3 \text{ kBqg}^{-1}) = 129,32(35)$		

De acordo com estes valores, a atividade da solução radioativa utilizada na data de referência considerada é de 129,32(35) kBq g⁻¹ e 129,60(35) kBq g⁻¹ na data de referência de 01/03/99 0 UT. Este último valor é compatível com os resultados participantes da comparação internacional realizada pelo BIPM (The 2000 Regional Comparison of ^{166m}Ho ^[41]) com a solução radioativa utilizada neste trabalho. O resultado desta comparação é apresentado no gráfico da Figura 4.4, representado pela diferença entre os valores individuais dos laboratórios (A_{ei}) e o valor de referência do SIR (KCRV - Key Comparison Reference Value), igual a 130,16(25)kBq g⁻¹. A relação dos laboratórios participantes está no Anexo 1.

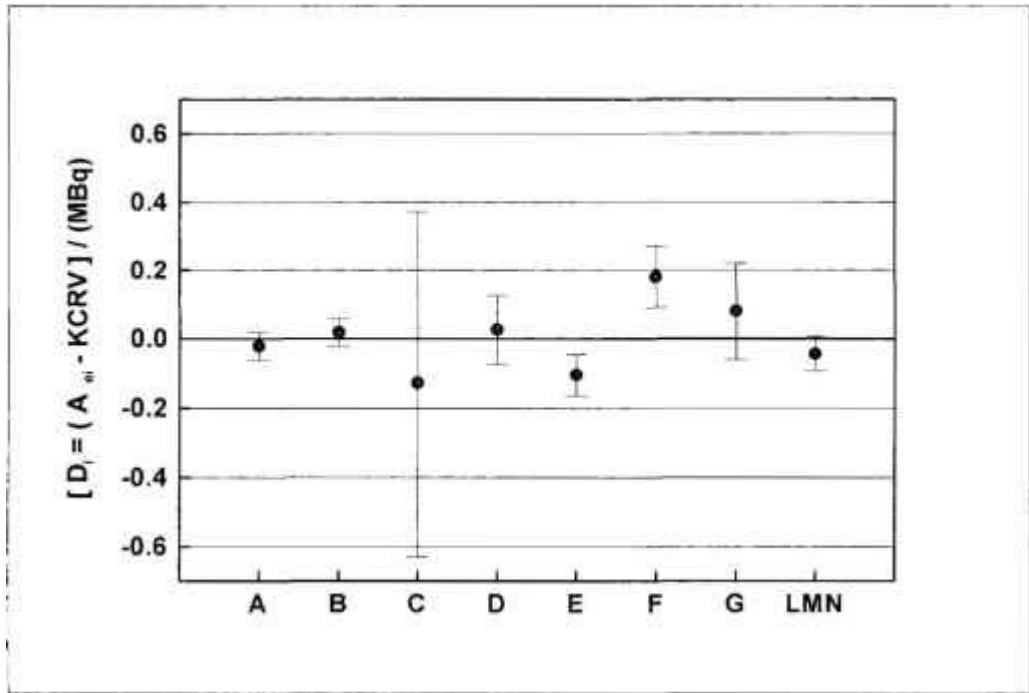


Figura 4.4. Resultado da comparação internacional do ^{166m}Ho . O resultado deste trabalho é representado sob a sigla LMN. Na abscissa, os valores estão representados pela diferença entre a média dos valores participantes (KCRV) e os valores individuais (A_{ei}). A relação de todos os laboratórios participantes está no Anexo 1.

4.1.1. Aplicação da simulação das curvas de extrapolação na padronização do ^{166m}Ho

A curva experimental de extrapolação de $(N_{\beta}N_{\gamma}/N_c)$ versus $(1-N_c/N_{\gamma})/(N_c/N_{\gamma})$ obtida para as duas janelas gama comparada com a curva de extrapolação teórica calculada pelo método de Monte Carlo é apresentada nas Figuras 4.5 e 4.6.

A curva teórica foi obtida multiplicando-se a atividade unitária calculada pela simulação de Monte Carlo para o parâmetro de ineficiência experimental, pela média da razão $(N_{\beta}N_{\gamma}/N_c)_{\text{exp}} / (N_{\beta}N_{\gamma}/N_c)_{\text{MC}}$, a qual fornece a taxa de desintegração prevista pelo cálculo de Monte Carlo descrito no Item 2.8.

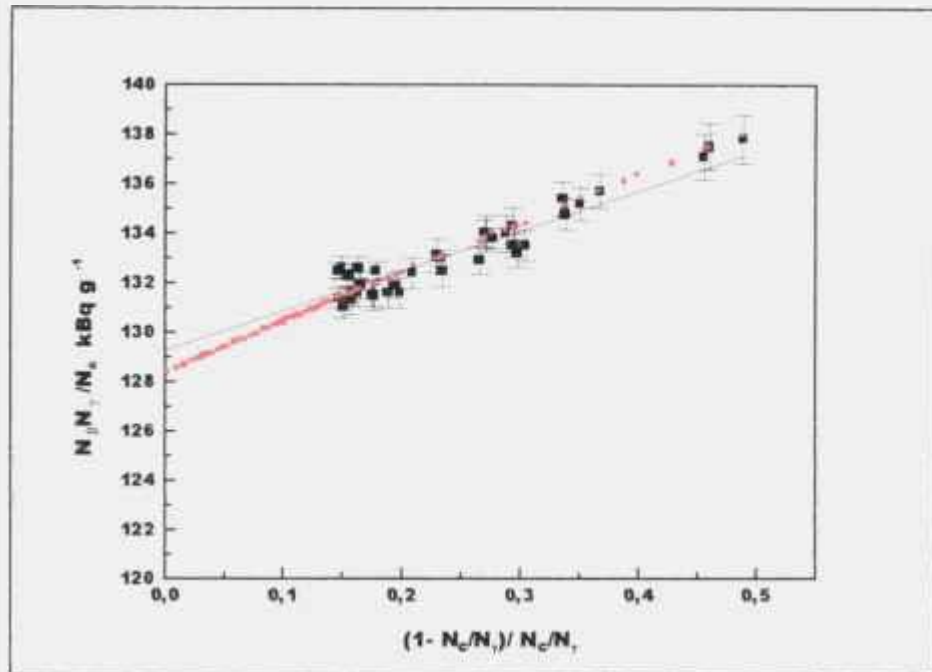


Figura 4.5: Comparação das curvas de extrapolação experimental (em preto) e teórica (em vermelho) para a janela gama 1 da padronização do $^{166\text{m}}\text{Ho}$.

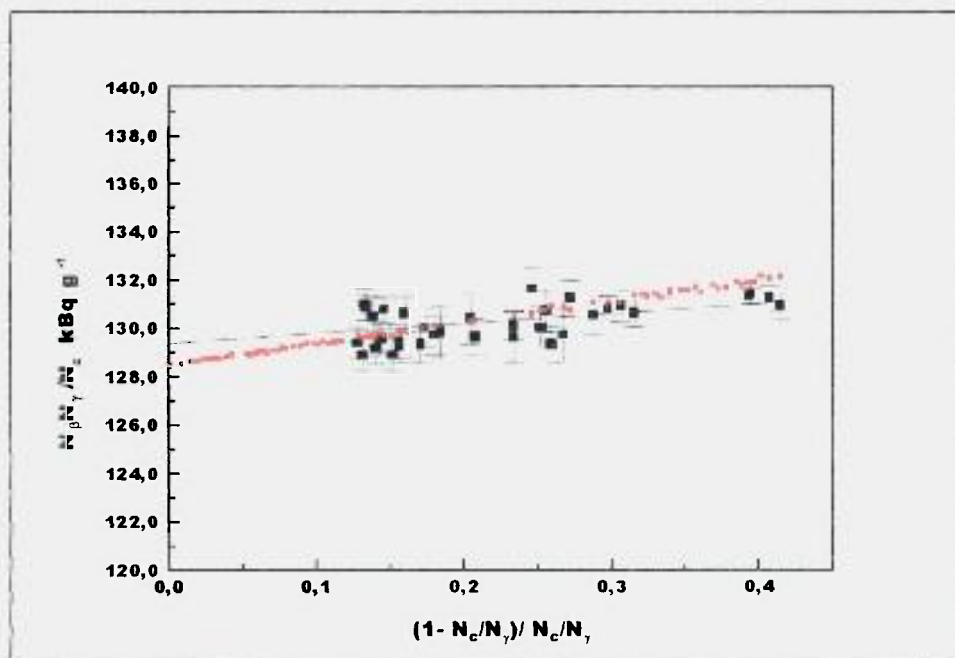


Figura 4.6: Comparação das curvas de extrapolação experimental (em preto) e teórica (em vermelho) para a janela gama 2 da padronização do $^{166\text{m}}\text{Ho}$.

Na Tabela 4.4 são apresentados os valores da atividade obtidos experimentalmente comparados com o valor extrapolado previsto na simulação para as duas janelas gama selecionadas.

Tabela 4.4: Valores de atividade ($\times 10^3 \text{ kBqg}^{-1}$) experimental em comparação com o valor extrapolado previsto pela simulação de Monte Carlo para as duas janelas gama do $^{166\text{m}}\text{Ho}$.

	Janela gama 1	Janela gama 2	média
MC	128,32(19)	128,4(29)	128,36(17)
exp	129,26(35)	129,38(35)	129,32(35)

Os resultados apresentam discrepâncias que podem ser causadas pela definição dos parâmetros das janelas gama usados no cálculo, que podem ser um pouco diferentes da janela experimental utilizada, uma vez que, como mostrado no Item 2.8, a inclinação da curva teórica depende fortemente dos intervalos de energia discriminados.

4.2. Padronização do ^{54}Mn

Para a padronização do ^{54}Mn foram preparadas 14 fontes em substrato de Collodion metalizado com Au, seguindo-se os procedimentos descritos anteriormente no Capítulo 2.2, à partir de uma solução radioativa enviada pelo BIPM para participação em comparação internacional entre laboratórios^[43].

Uma das fontes foi medida no sistema de medida absoluta II selecionando-se a janela gama no fotopico de 834,84 keV e a variação da eficiência β foi feita por discriminação eletrônica de 31 a 10%. Os dados foram analisados com o uso do programa CONTAC^[15] e os valores calculados estão na Tabela 4.5.

Tabela 4.5. Dados das medidas do ^{54}Mn no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com variação da eficiência β com discriminação eletrônica.

Medida	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$ ($\times 10^3$)	N_C/N_{γ}	$(1-N_C/N_{\gamma})/(N_C/N_{\gamma})$
1	312,8(4)	0,3124	2,201(3)
2	313,2(5)	0,2802	2,569(5)
3	312,6(4)	0,3062	2,266(3)
4	313,1(5)	0,2896	2,453(4)
5	313,4(6)	0,2663	2,755(4)
6	313,5(5)	0,2804	2,566(5)
7	313,3(5)	0,2290	3,366(7)
8	313,6(5)	0,2502	2,997(6)
9	315,8(7)	0,1463	5,834(11)
10	314,1(5)	0,2338	3,278(6)
11	313,6(6)	0,2035	3,915(8)
12	315,2(6)	0,1746	4,726(9)
13	315,9(6)	0,1677	4,962(11)
14	317,0(7)	0,1339	6,469(16)
15	317,5(7)	0,1126	7,883(18)
16	317,6(7)	0,1065	8,392(20)

A curva de extrapolação da eficiência foi obtida com um ajuste linear por meio do programa LINFIT^[42]. O gráfico com os pontos experimentais e a reta ajustada são apresentados na Figura 4.7., com os respectivos parâmetros do ajuste listados na Tabela 4.6.

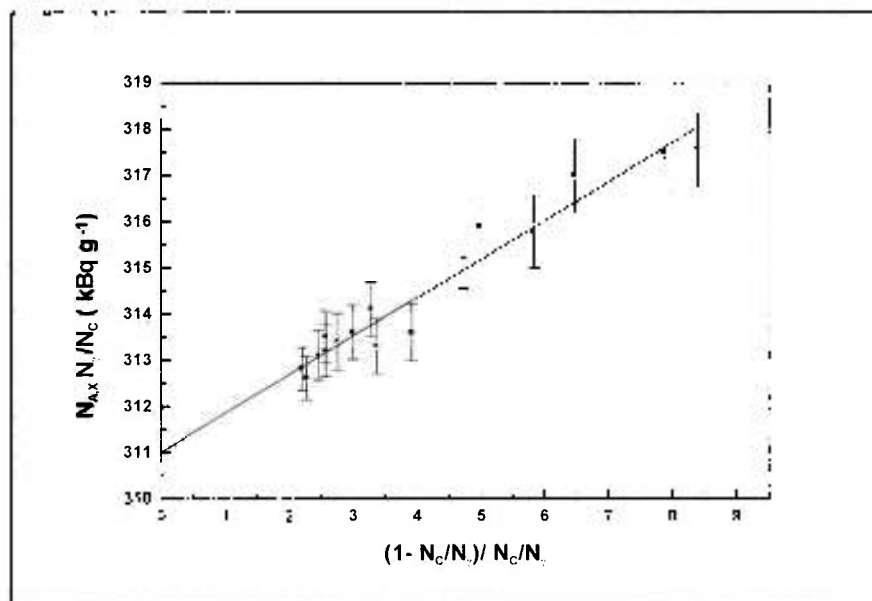


Figura 4.7: Curva de extrapolação da eficiência para o ^{54}Mn obtida variando-se a eficiência do detector proporcional de 31 a 10% com discriminação eletrônica.

Tabela 4.6. Parâmetros do ajuste dos dados experimentais para a curva de extrapolação da eficiência do ^{54}Mn .

Parâmetros	Matriz de covariância dos parâmetros		
a	311002(428)	183130	
b	838(7)	-19848	5760

Para as demais fontes, foi feita uma medida simples no sistema de coincidências, aplicando-se a inclinação obtida no ajuste por meio da equação 1.26, determinando-se os respectivos valores de N_0 , cuja média ponderada resultou no valor final da atividade, de 311,15(81) kBq g⁻¹.

O resultado da comparação internacional entre laboratórios para a determinação da atividade da solução radioativa de ^{54}Mn utilizada neste trabalho é apresentado na Figura 4.8. A relação dos laboratórios participantes está no Anexo 2.

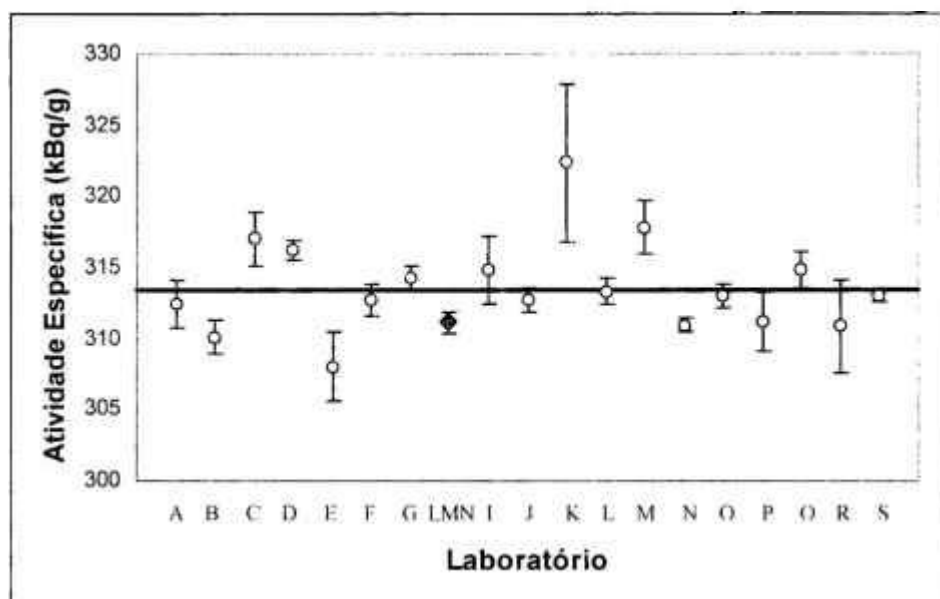


Figura 4.8: Resultado da comparação internacional entre laboratórios da medida de atividade absoluta da solução de ^{54}Mn utilizada neste trabalho. O ponto em destaque é referente ao resultado deste trabalho (LMN). As linhas indicam o valor médio e sua incerteza, da ordem de 0,23%.

4.3. Padronização do ^{72}Ga

Para este trabalho, o ^{72}Ga foi obtido por meio da reação $^{71}\text{Ga} (n,\gamma) ^{72}\text{Ga}$ pela irradiação de Ga_2O_3 (em pó) em fluxo de nêutrons térmicos de $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ no reator de pesquisa tipo piscina, de 3 MW de potência do IPEN/CNEN – SP (IEA-R1).

Inicialmente foi feito um estudo para verificar o método de dissolução do óxido de Gálio. Segundo a literatura especializada^[44], deveria ser possível dissolvê-lo em ácido (a quente) ou em solução básica. Foram feitas várias tentativas, a frio e a quente, utilizando-se alguns ácidos (HCl e HNO_3) e NaOH em solução aquosa. No entanto, todas as tentativas foram frustradas, pois ocorria apenas uma dissolução parcial a quente em meio básico, e esta opção foi descartada pela dificuldade de aquecimento do material irradiado.

Decidiu-se então utilizar o óxido sem dissolvê-lo, fazendo-se antes um teste com solução radioativa de ^{60}Co para verificar se ocorreria auto absorção e conseqüentemente variação significativa na eficiência β . Isto foi feito depositando uma pequena alíquota de

pó de Ga_2O_3 sobre um filme duplo de Collodion e a seguir pingando-se duas gotas de uma solução padronizada de ^{60}Co . Após a secagem, a fonte assim preparada foi selada com filmes de Collodion sobre as amostras depositadas, para que não houvesse perda de material.

Esta fonte foi medida no sistema de medida absoluta para verificar a variação de eficiência do detector devido à presença do pó. Com a adição do Ga_2O_3 a eficiência foi de 80,1%, considerada adequada devido à presença de quatro filmes de Collodion utilizados para reforçar e selar a fonte, sendo que a eficiência usual para fontes de ^{60}Co é de 90%.

Após o teste foram feitas duas irradiações distintas, com massas variando entre 300 e 600 μg de Ga_2O_3 . Para cada irradiação foram preparadas 5 fontes em Collodion metalizado com Au para a medida no sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$. O pó irradiado foi depositado sobre o substrato após ser misturado em água destilada e a secagem foi feita sob luz infravermelha. Para finalizar, as fontes foram seladas com um filme duplo de Collodion. Aguardou-se 24 horas para o decaimento do isótopo ^{70}Ga , formado pela reação $^{69}\text{Ga}(n, \gamma)^{70}\text{Ga}$ com meia vida de 21 minutos.

Para as medidas das fontes de ^{72}Ga no sistema de coincidências II discriminou-se duas janelas gamas distintas, uma abrangendo os picos de 629,979 e 834,170 keV (janela gama 1) e outra os picos de 2201,582 e 2507,714 keV (janela gama 2). Das cinco fontes preparadas em cada irradiação, selecionou-se duas para as medidas. A Figura 4.9 mostra o espectro gama com as duas janelas discriminadas em destaque.

Variou-se a eficiência do detector proporcional de 95 a 69% para a janela gama 1 e de 95 a 61% para a janela gama 2 com a adição de absorvedores de Collodion e de alumínio com espessuras variadas.

Obteve-se quatro conjuntos de dados para cada janela gama, referentes a duas fontes de cada irradiação, que foram analisados utilizando-se o programa CONTAC^[15], determinando os valores de $N_\beta N_\gamma / N_c$ e $(1 - N_c / N_\gamma) / (N_c / N_\gamma)$ para a elaboração das curvas de extrapolação do ^{72}Ga .

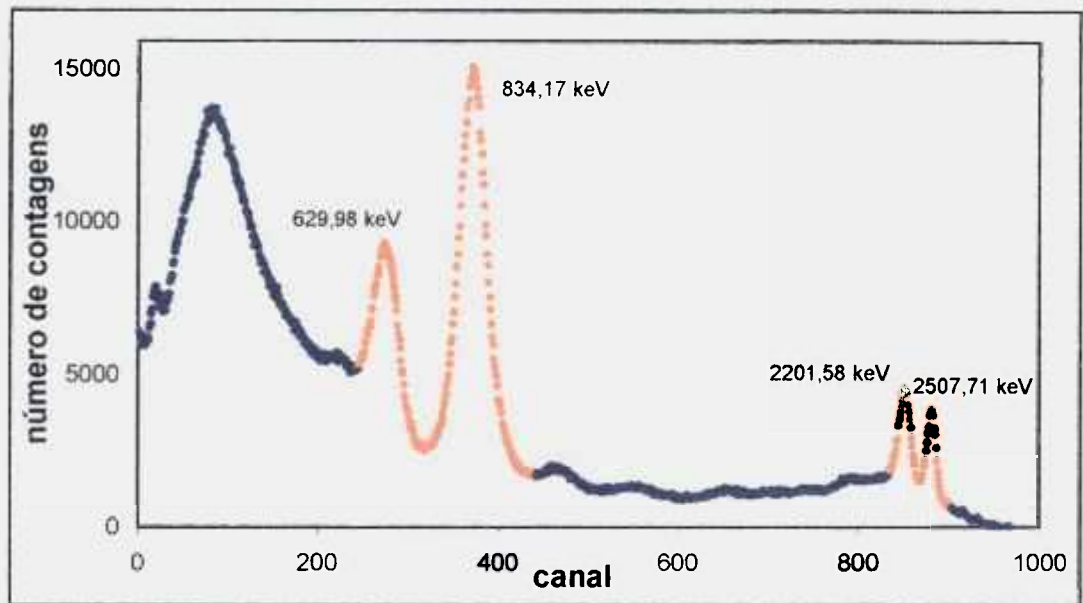


Figura 4.9. Espectro gama do ^{72}Ga em detector de NaI(Tl). As regiões em destaque correspondem às janelas discriminadas no sistema de medida, sendo a janela gama 1 nos picos de 629,979 a 834,170 keV e a janela gama 2 nos picos de 2201,582 e 2507,714 keV.

Para a janela gama 1 foi ajustada uma equação do tipo $y = \text{constante}$ e para a janela gama 2 ajustou-se uma curva de grau 1 do tipo $y = a + bx$.

A análise foi concluída com a normalização dos dados pelos respectivos valores de N_0 obtidos na extrapolação para eficiência igual a 1 das curva ajustadas, possibilitando uma visualização conjunta dos dados e também a comparação com a análise teórica do comportamento estas curvas de extrapolação, de acordo com o método descrito no Item 2.8

4.3.1. Resultados da primeira irradiação

- Fonte 1

Nas Tabelas 4.7 e 4.8 são apresentados os resultados da análise dos dados obtidos no sistema de medida absoluta para a fonte 1. A variação do parâmetro de ineficiência β foi de 0,04 a 0,06 para a janela gama 1 e de 0,05 a 0,07 para a janela gama 2. O número pequeno de pontos experimentais foi devido a problemas com a adição de absorvedores de alumínio.

Tabela 4.7. Dados das medidas do ^{72}Ga no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com variação da eficiência β com a adição de absorvedores externos para a janela gama 1.

Medida	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$	N_C/N_{γ}	$(1 - N_C/N_{\gamma})/(N_C/N_{\gamma})$
1	3886(7)	0,9551	0,0469(8)
2	3882(8)	0,9512	0,0513(9)
3	3887(8)	0,9523	0,0500(9)
4	3883(8)	0,9475	0,0554(9)
5	3885(8)	0,9477	0,0552(9)
6	3869(8)	0,9485	0,0542(9)
7	3885(8)	0,9465	0,0565(9)
8	3870(9)	0,9423	0,0612(9)

Tabela 4.8. Dados das medidas do ^{72}Ga no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com variação da eficiência β com a adição de absorvedores externos para a janela gama 2.

Medida	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$	N_C/N_{γ}	$(1 - N_C/N_{\gamma})/(N_C/N_{\gamma})$
1	3905(10)	0,9505	0,052(2)
2	3934(11)	0,9411	0,063(3)
3	3925(11)	0,9408	0,063(3)
4	3918(12)	0,9391	0,065(3)
5	3913(12)	0,9378	0,066(3)
6	3931(12)	0,9355	0,069(3)
7	3937(12)	0,9350	0,070(3)
8	3926(13)	0,9288	0,077(3)
9	3934(14)	0,9275	0,078(3)

Os parâmetros dos ajustes lineares destes dados são apresentados na Tabela 4.9.

Tabela 4.9: Parâmetros dos ajustes de $N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$ versus $(1 - N_C/N_{\gamma})/(N_C/N_{\gamma})$ para as duas janelas gama selecionadas na medida em sistema de coincidências da fonte 1 de ^{72}Ga .

	Parâmetros	Matriz de covariância dos parâmetros	
janela γ_1	a	3882(3)	6.15
janela γ_2	a	3859(30)	959,1
	b	992,41(468)	-14074,9 219751

• Fonte 2

Nas Tabelas 4.10 e 4.11 estão os resultados da análise dos dados obtidos no sistema de medida absoluta para a fonte 2 de ^{72}Ga , variando-se o parâmetro de ineficiência β de 0,05 a 0,15 para a janela gama 1 e de 0,05 a 0,21 para a janela gama 2.

Tabela 4.10. Dados das medidas do ^{72}Ga no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com variação da eficiência β com a adição de absorvedores externos para a janela gama 1.

Medida	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$	N_C/N_{γ}	$(1 - N_C/N_{\gamma})/(N_C/N_{\gamma})$
1	3871(8)	0,9454	0,0577(2)
2	3886(14)	0,9562	0,0458(4)
3	3886(14)	0,9509	0,0516(4)
4	3881(14)	0,9518	0,0506(4)
5	3881(14)	0,9491	0,0536(4)
6	3874(14)	0,9468	0,0562(5)
7	3878(15)	0,9437	0,0596(5)
8	3874(15)	0,8916	0,1216(7)
9	3878(15)	0,9411	0,0626(5)
10	3878(15)	0,8743	0,1438(8)
11	3873(20)	0,8675	0,1527(9)
12	3850(20)	0,9380	0,0661(9)
13	3857(21)	0,9341	0,0705(9)
14	3835(21)	0,9314	0,0736(9)
15	3836(21)	0,9204	0,0865(9)
16	3833(21)	0,9189	0,0883(9)

Tabela 4.11. Dados das medidas do ^{72}Ga no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com variação da eficiência β com a adição de absorvedores externos para a janela gama 2.

Medida	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$	N_C/N_{γ}	$(1 - N_C/N_{\gamma})/(N_C/N_{\gamma})$
1	3951(9)	0,9264	0,079(1)
2	3935(14)	0,9443	0,059(1)
3	3945(15)	0,9368	0,068(1)
4	3940(15)	0,9375	0,067(1)
5	3940(15)	0,9347	0,070(1)
6	3939(15)	0,9313	0,074(1)
7	3947(16)	0,9271	0,079(2)
8	3987(17)	0,8662	0,154(2)
9	4023(18)	0,8428	0,187(3)
10	3940(16)	0,9263	0,080(2)
11	4065(23)	0,8264	0,210(3)
12	3920(23)	0,9213	0,085(3)
13	3942(24)	0,9140	0,094(3)
14	3972(25)	0,8889	0,125(4)

Os parâmetros dos ajustes lineares destes dados são apresentados na Tabela 4.12.

Tabela 4.12: Parâmetros dos ajustes de $N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$ versus $(1 - N_C/N_{\gamma})/(N_C/N_{\gamma})$ para as duas janelas gama selecionadas na medida em sistema de coincidências da fonte 2 de ^{72}Ga .

	Parâmetros	Matriz de covariância dos parâmetros	
janela γ_1	a	3874(3)	9,03
janela γ_2	a	3888(5)	25,98
	b	716(51)	-225,43
			2642,19

4.3.2. Resultados da segunda irradiação

- Fonte 3

Nas Tabelas 4.13 e 4.14 e na Figura 4.9 são apresentados os resultados da análise dos dados obtidos no sistema de medida absoluta para a fonte 3, com variação do parâmetro de ineficiência β de 0,09 a 0,43 para a janela gama 1 e de 0,11 a 0,32 para a janela gama 2.

Tabela 4.13. Dados das medidas do ^{72}Ga no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com variação da eficiência β com a adição de absorvedores externos para a janela gama 1.

Medida	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$	N_C/N_{γ}	$(1 - N_C/N_{\gamma})/(N_C/N_{\gamma})$
1	11531(24)	0,6966	0,435(1)
2	11550(20)	0,8210	0,218(1)
3	11571(19)	0,8446	0,183(1)
4	11542(19)	0,8752	0,1426(8)
5	11559(19)	0,8575	0,1661(9)
6	11580(17)	0,9029	0,1075(7)
7	11562(17)	0,9046	0,1055(7)
8	11562(17)	0,9081	0,1013(7)
9	11599(17)	0,8669	0,1535(8)
10	11581(16)	0,9088	0,1004(6)
11	11570(15)	0,9095	0,0994(6)
12	11584(15)	0,9105	0,0982(6)
13	11587(13)	0,9110	0,0976(6)
14	11596(11)	0,9111	0,0975(4)
15	11597(11)	0,9103	0,0985(6)

Tabela 4.14: Dados das medidas do ^{72}Ga no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com variação da eficiência β com a adição de absorvedores externos para a janela gama 2.

Medida	$N_\beta N_\gamma / N_C$	N_C / N_γ	$(1 - N_C / N_\gamma) / (N_C / N_\gamma)$
1	11730(41)	0,8794	0,137(3)
2	12227(64)	0,7599	0,316(6)
3	12233(39)	0,7752	0,290(4)
4	12160(36)	0,8037	0,244(3)
5	11960(32)	0,8446	0,184(3)
6	12049(33)	0,8227	0,216(3)
7	11812(27)	0,8852	0,130(2)
8	11765(27)	0,8890	0,125(2)
9	11801(25)	0,8896	0,124(2)
10	11922(29)	0,8434	0,186(3)
11	11755(24)	0,8954	0,117(2)
12	11736(23)	0,8966	0,115(2)
13	11751(23)	0,8976	0,114(2)
14	11778(22)	0,8962	0,116(2)
15	11735(16)	0,9003	0,111(1)
16	11742(19)	0,8990	0,112(2)

Os parâmetros dos ajustes lineares destes dados são apresentados na Tabela 4.15.

Tabela 4.15: Parâmetros dos ajustes de $N_\beta N_\gamma / N_C$ versus $(1 - N_C / N_\gamma) / (N_C / N_\gamma)$ para as duas janelas gama selecionadas na medida em sistema de coincidências da fonte 3 de ^{72}Ga .

Parâmetros		Matriz de covariância dos parâmetros	
janela γ_1	a	11578(5)	21,38
janela γ_2	a	11439(18)	345,81
	b	2858(131)	-1864,59
			17169,70

- Fonte 4

Nas Tabelas 4.16 e 4.17 e na Figura 4.10 são apresentados os resultados da análise do conjunto de dados obtidos no sistema de medida absoluta para a fontes de ^{72}Ga número 4, também preparadas com a segunda irradiação de Ga_2O_3 , variando-se o parâmetro de ineficiência β de 0,06 a 0,21 para a janela gama 1 e de 0,07 a 0,28 para a janela gama 2.

Tabela 4.16: Dados das medidas do ^{72}Ga no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com variação da eficiência β com a adição de absorvedores externos para a janela gama 1.

Medida	$N_\beta N_\gamma / N_C$	N_C / N_γ	$(1 - N_C / N_\gamma) / (N_C / N_\gamma)$
1	41566(216)	0,9072	0,102(1)
2	41570(212)	0,9131	0,095(1)
3	41449(215)	0,8445	0,184(1)
4	41316(210)	0,9223	0,084(1)
5	41351(210)	0,8755	0,142(1)
6	41466(207)	0,8921	0,121(1)
7	41491(211)	0,8241	0,213(1)
8	41419(202)	0,9247	0,081(1)
9	41474(203)	0,9244	0,082(1)
10	41518(203)	0,8532	0,172(1)
11	41516(203)	0,8727	0,146(1)
12	41615(199)	0,9289	0,0765(9)
13	41600(195)	0,9350	0,0696(9)
14	41622(191)	0,8851	0,129(1)
15	41676(187)	0,9385	0,0655(8)
16	41628(183)	0,9411	0,0626(8)

Tabela 4.17: Dados das medidas do ^{72}Ga no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com variação da eficiência β com a adição de absorvedores externos para a janela gama 2.

Medida	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$	N_C/N_{γ}	$(1 - N_C/N_{\gamma})/(N_C/N_{\gamma})$
1	42325(258)	0,8910	0,122(4)
2	42426(254)	0,8947	0,118(4)
3	42264(245)	0,9016	0,109(3)
4	43140(271)	0,8392	0,192(5)
5	42771(260)	0,8648	0,156(4)
6	43849(293)	0,7798	0,282(6)
7	42182(236)	0,9080	0,101(3)
8	42024(231)	0,9123	0,096(3)
9	43405(269)	0,8161	0,225(5)
10	42893(253)	0,8447	0,184(4)
11	42156(223)	0,9170	0,091(3)
12	42101(218)	0,9238	0,082(3)
13	42694(230)	0,8629	0,159(4)
14	42070(206)	0,9297	0,076(2)
15	42074(206)	0,9312	0,074(2)

Os parâmetros dos ajustes lineares destes dados são apresentados na Tabela 4.18.

Tabela 4.18: Parâmetros dos ajustes de $N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$ versus $(1 - N_C/N_{\gamma})/(N_C/N_{\gamma})$ para as duas janelas gama selecionadas na medida em sistema de coincidências da fonte 4 de ^{72}Ga .

	Parâmetros	Matriz de covariância dos parâmetros	
janela γ_1	a	41536(26)	706
janela γ_2	a	41391(197)	39083
	b	8769(693)	-35164
			481428

4.3.3. Análise das duas irradiações em conjunto

Na Tabela 4.19 são apresentadas as médias dos valores de $(N_{\beta}N_{\gamma}/N_c)$ extrapolados para ineficiência zero. Na extrapolação, às incertezas nos parâmetros foram acrescidos os erros no tempo morto, tempo de resolução e radiação de fundo. As médias foram determinadas considerando-se as incertezas parciais e os fatores de correlação envolvidos.

Tabela 4.19: Média dos valores de $(N_{\beta}N_{\gamma}/N_c)$ extrapolados para as fontes de ^{72}Ga .

fonte	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$ (Bq)		$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$ (Bq)		média (N_0) (Bq)
	Janela gama 1	inclinação	Janela gama 2	inclinação	
1	3882(10)	0	3860(31)	0,26(12)	3880(10)
2	3875(9)	0	3889(9)	0,18(1)	3881(7)
3	11578(60)	0	11440(61)	0,25(1)	11512(41)
4	41536(220)	0	41391(206)	0,21(2)	41459(149)

Para uma melhor visualização dos resultados, os valores de $(N_{\beta}N_{\gamma}/N_c)$ das quatro fontes anteriormente apresentados nos Itens 4.3.1 e 4.3.2 foram normalizados pelos seus respectivos valores de N_0 para que pudessem ser analisados em conjunto. Os gráficos resultantes são apresentados nas Figuras 4.10 e 4.11, correspondendo, respectivamente, às janelas gama 1 e gama 2.

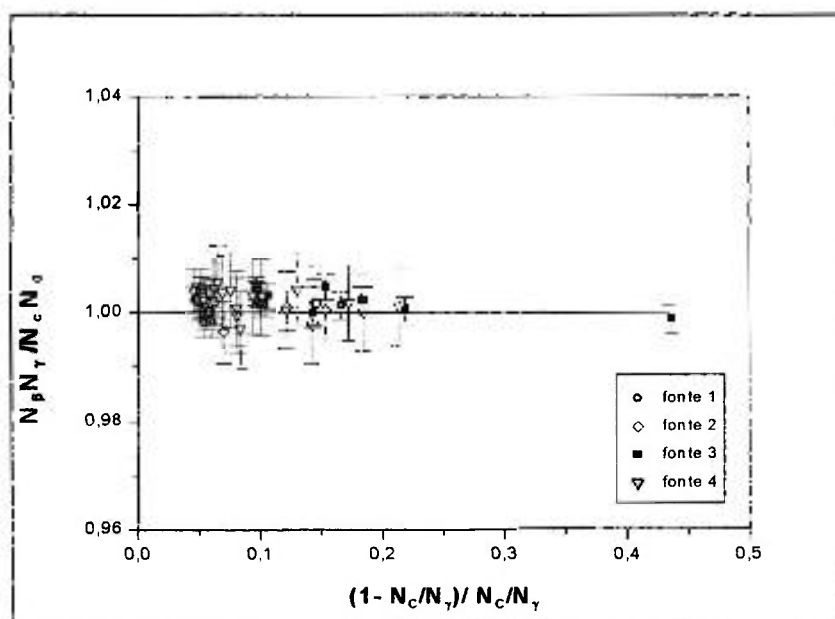


Figura 4.10: Curva de extrapolação da eficiência normalizada do ^{72}Ga para a janela gama 1 (fotopicos de 629,97 e 834,17 keV). Variou-se a eficiência do detector de 95 a 69%.

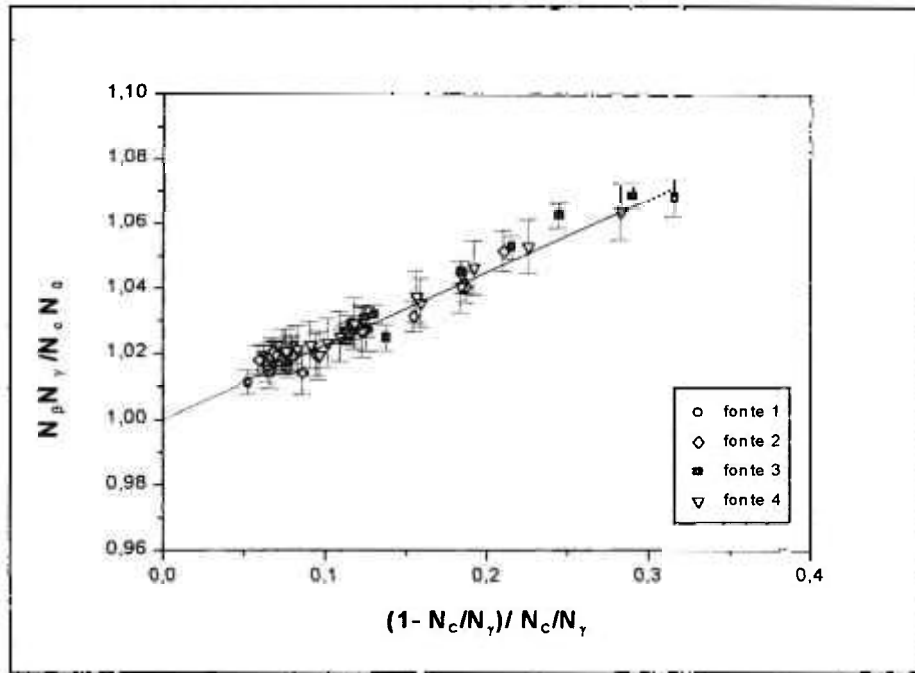


Figura 4.11: Curva de extrapolação da eficiência normalizada do ^{72}Ga para a janela gama 2 (fotopicos de 2201,58 e 2507,71 keV), com inclinação média de 0,225(37). Variou-se a eficiência do detector β de 95 a 76%.

Também neste caso, a diferença de inclinação das retas para as diferentes janelas gama se deve aos processos envolvidos no decaimento.

4.3.4. Aplicação da simulação das curvas de extrapolação na padronização do ^{72}Ga

Um outro modo de obter a atividade das fontes foi feito usando os parâmetros teóricos $(N_{\beta}N_{\gamma}/N_c)_{MC}$ para uma atividade unitária calculados pelo método de Monte Carlo, para o parâmetro de ineficiência experimental, fornecendo a razão $(N_{\beta}N_{\gamma}/N_c)_{exp} / (N_{\beta}N_{\gamma}/N_c)_{MC}$ para cada medida.

O valor médio destas razões fornece a taxa de desintegração prevista pelo cálculo de Monte Carlo descrito no Item 2.8.

Na Tabela 4.20 são apresentados estes valores para as duas janelas gama selecionadas. A atividade final é a média entre os resultados das duas janelas gama de cada fonte.

Tabela 4.20: Parâmetros de ajuste da curva de extrapolação usando simulação de Monte Carlo para as duas janelas gama do ^{72}Ga .

fonte	Atividade (Bq)		
	Janela gama 1	Janela gama 2	média
1	3878(8)	3861(8)	3870(7)
2	3877(8)	3884(18)	3878(5)
3	11578(23)	11440(34)	11547(16)
4	41524(203)	41272(252)	41501(74)
Inclinação	0,0119(5)	0,228(3)	

Nas Figuras 4.12 e 4.13 são mostrados os valores experimentais ($N_{\beta}N_{\gamma}/N_cN_0$) versus $(1-N_c/N_{\gamma})/(N_c/N_{\gamma})$ comparados com a simulação (linha contínua). No anexo 4 são apresentados os valores do cálculo de Monte para as janelas gama 1 e gama 2.

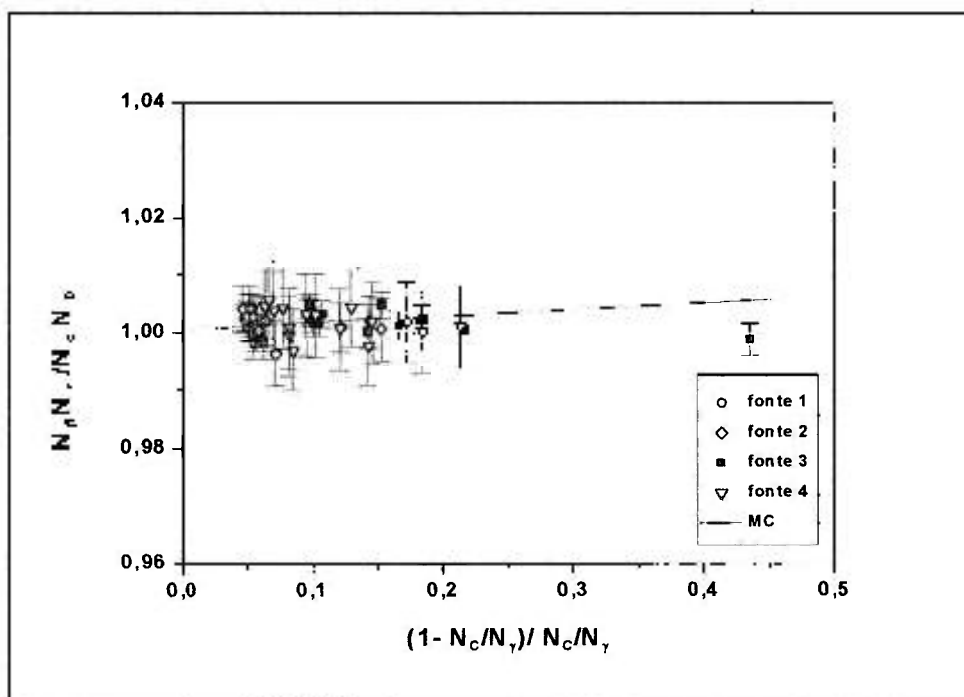


Figura 4.12: Dados experimentais para janela gama 1 do ^{72}Ga normalizados, em comparação com a simulação da curva de extrapolação da eficiência pelo método de Monte Carlo

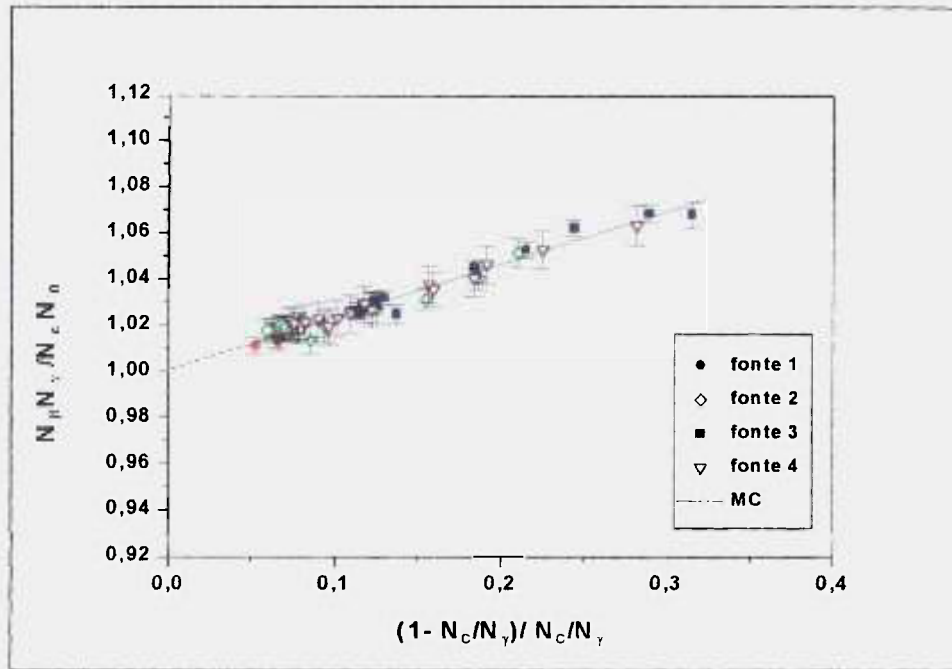


Figura 4.13: Dados experimentais para janela gama 2 do ^{72}Ga normalizados, em comparação com a simulação da curva de extrapolação da eficiência pelo método de Monte Carlo

Estes resultados mostram que os ajustes experimentais apresentados anteriormente nos Itens 4.3.1 e 4.3.2 concordam com aqueles obtidos pela simulação de Monte Carlo. Isto indica que, em casos em que somente poucos pontos experimentais são disponíveis e que a extrapolação se torna difícil, a previsão com a esta simulação pode ser usada com boa exatidão.

4.5. Determinação de probabilidades de emissão X e gama

As fontes de ^{166}Ho e ^{72}Ga padronizadas no sistema de coincidências foram medidas no espectrômetro de HPGe, sendo as probabilidades de emissão gama para as linhas de energia mais intensas determinadas por meio das equações 1.28 e 1.29.

A eficiência gama das linhas estudadas foi obtida da curva de calibração do espectrômetro, apresentado no Item 3.6 e a atividade das fontes foi determinada na padronização no sistema de medida absoluta (Itens 4.1. e 4.3).

4.5.1 Probabilidades de emissão X e gama do ^{166}Ho

A Figura 4.14 mostra um espectro de ^{166}Ho típico obtido.

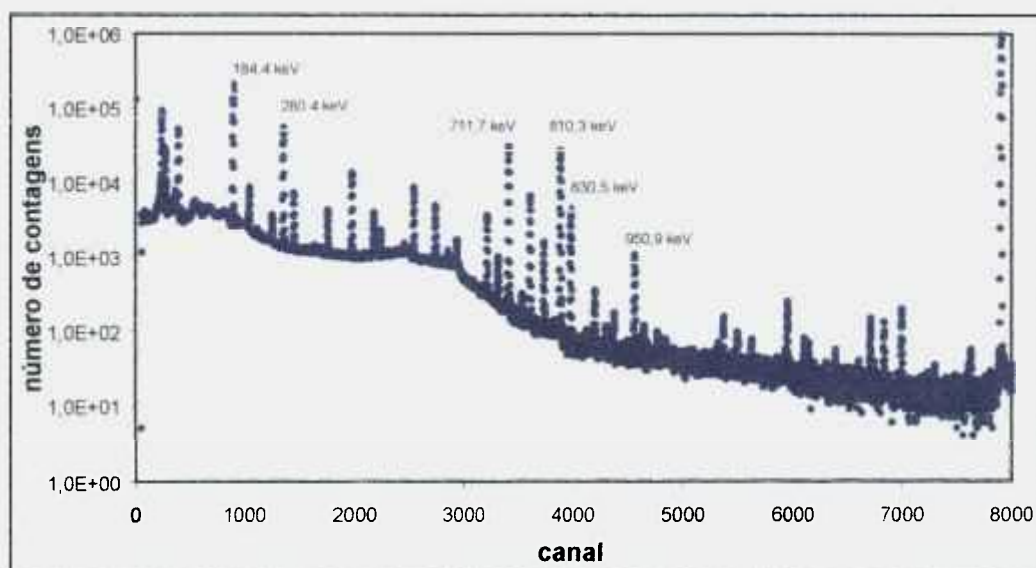


Figura 4.14. Espectro típico do ^{166}Ho registrado em espectrômetro HPGe destacando os picos mais intensos. O pico à direita (canal \cong 7900) corresponde ao pulsador.

Para a determinação das probabilidades de emissão X e gama, os espectros foram analisados pelos métodos descritos no Item 3.4, de acordo com a necessidade de cada tipo de região/radiação em estudo.

Na Tabela 4.29 são apresentados os resultados das probabilidades de emissão por decaimento para os quatro espectros analisados, juntamente com as médias de cada energia, obtida considerando-se os erros parciais e metodologia de análise de correlação. Na Tabela 4.30 os resultados finais (médias) são comparados com dados da literatura.

Tabela 4.29: Probabilidades de emissão gama calculadas para o ^{166m}Ho .

energia(keV)	espectro 1	espectro 2	espectro 3	espectro 4	média
48,2211	0,1388(20)	0,1437(18)	0,1403(19)	0,1418(19)	0,1424(17)
49,1277	0,1904(26)	0,1930(23)	0,1925(26)	0,1934(25)	0,1928(22)
80,6	0,1274(18)	0,1333(21)	0,1326(23)	0,1207(19)	0,1257(14)
184,4	0,7144(98)	0,7105(99)	0,7231(104)	0,7177(101)	0,7134(96)
280,46	0,2919(21)	0,2898(30)	0,2946(32)	0,2899(27)	0,2917(22)
300,74	0,0281(4)	0,0355(11)	0,0374(14)	0,0372(8)	0,0297(3)
410,96	0,1118(9)	0,1149(19)	0,1168(23)	0,1143(16)	0,1125(9)
451,54	0,0297(5)	0,0278(12)	0,0284(16)	0,0335(10)	0,0299(5)
529,83	0,0949(9)	0,0946(21)	0,0957(24)	0,0996(17)	0,0955(8)
571,00	0,0543(7)	0,0561(17)	0,0549(22)	0,0526(13)	0,0543(6)
670,53	0,0526(6)	0,0578(17)	0,0523(20)	0,0514(13)	0,0529(6)
711,70	0,5377(40)	0,5392(59)	0,5515(65)	0,5411(53)	0,5385(32)
752,28	0,1205(11)	0,1175(24)	0,1252(28)	0,1208(20)	0,1205(11)
778,83	0,0294(6)	0,0299(13)	-	0,0291(10)	0,0294(5)
810,29	0,5694(42)	0,5704(63)	0,5682(69)	0,5675(57)	0,5693(40)
830,57	0,0965(9)	0,0964(22)	0,1013(26)	0,0979(18)	0,0969(9)
950,99	0,0270(6)	0,0257(12)	-	0,0280(10)	0,0271(5)

Tabela 4.30: Resultados para as probabilidades de emissão gama do ^{166m}Ho .

Comparação com dados da literatura. (%)

Energia (keV)	Este trabalho	BNM 2004^[19]	Bernardes 2002^[20]	Hino et al. 2000^[21]	Morel et al. 1995^[22]
48,2211	14,24(17)	10,81(21)	9,98(15)	-	10,29(8)
49,1277	19,28(22)	19,2(4)	19,55(28)	-	18,56(13)
80,6	12,57(14)	12,66(23)	11,68(10)	11,84(16)	12,06(8)
184,4	71,34(96)	72,5(3)	72,60(47)	72,4(7)	70,21(35)
280,46	29,17(22)	29,54(25)	29,30(15)	29,7(3)	28,55(14)
300,74	2,97(3)	3,73(3)	3,633(20)	-	3,593(18)
410,96	11,25(9)	11,35(17)	11,17(6)	11,39(13)	11,10(6)
451,54	2,99(5)	2,915(14)	-	-	2,852(26)
529,83	9,55(8)	9,4(4)	9,35(5)	9,63(11)	9,36(5)
571,00	5,43(6)	5,43(20)	5,42(3)	5,54(8)	5,41(3)
670,53	5,29(6)	5,34(21)	5,32(3)	5,65(9)	5,31(3)
711,70	53,85(32)	54,9(9)	53,8(2)	56,0(5)	53,6(3)
752,28	12,05(11)	12,2(3)	11,98(6)	12,27(15)	11,92(6)
778,83	2,94(5)	3,01(8)	3,019(18)	-	2,978(18)
810,29	56,93(40)	57,3(11)	56,6(3)	58,2(5)	56,4(3)
830,57	9,69(9)	9,72(18)	9,56(5)	9,77(12)	9,58(5)
950,99	2,71(5)	2,744(19)	2,693(19)	-	2,663(16)

Os resultados obtidos neste trabalho para as energias gama com intensidades mais altas concordam com os demais autores, com exceção do gama de 80,6 keV, que é compatível, dentro da incerteza experimental, com os valores da referência BNM^[19], mas discorda dos outros resultados.

No caso dos raios X, o de 48,22 keV apresenta um valor 37% acima da média dos demais autores, enquanto o raio X de 49,13 keV apresenta concordância dentro da incerteza experimental.

4.5.2. Probabilidades de emissão gama do ^{72}Ga

Para a determinação das probabilidades de emissão gama do ^{72}Ga , as fontes em substrato de Collodion utilizadas em sua padronização foram medidas no espectrômetro de HPGe, e seu espectro característico é mostrado na Figura 4.15.

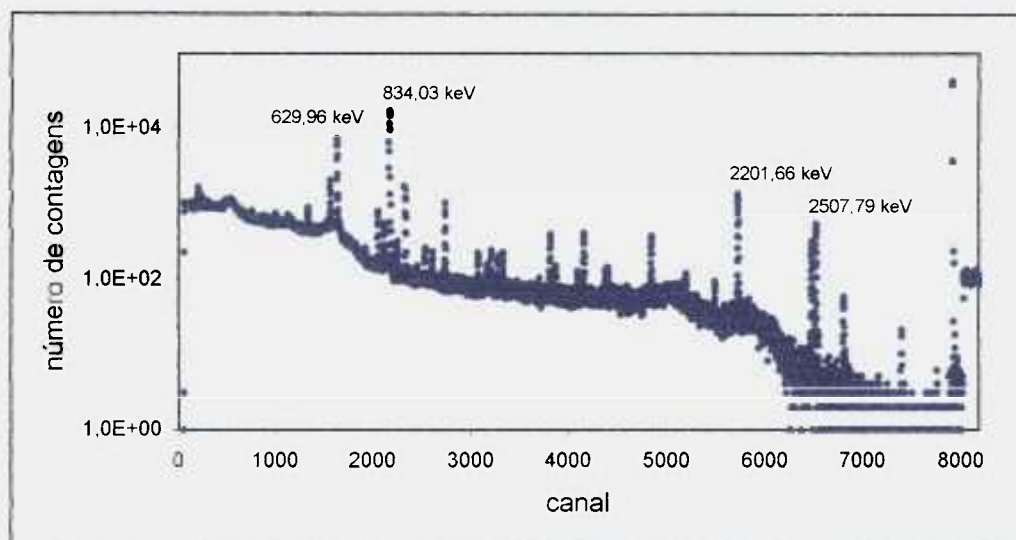


Figura 4.15. Espectro do ^{72}Ga registrado em espectrômetro HPGe com destaque dos picos mais intensos.

Após a análise dos espectros pelo método descrito no Item 3.4.1, considerando-se a intensidade de todas as linhas de energia de interesse igual a 1, aplicou-se as equações 1.28 e 1.29, com o valor de atividade absoluta previamente determinado no Item 4.3 como resultado da padronização do ^{72}Ga . Obteve-se os valores apresentados na Tabela 4.31. As médias são ponderadas pelas incertezas experimentais, levando-se em conta também a correlação entre elas.

Na Tabela 4.32, os resultados deste trabalho são apresentados juntamente com os valores encontrados na literatura para as probabilidades de emissão gama mais intensas do ^{72}Ga .

Tabela 4.31: Probabilidades de emissão gama para o ^{72}Ga .

energia (keV)	espectro 1	espectro 2	espectro 3	Média
600,95	0,0599(12)	0,0556(10)	0,0593(6)	0,0587(5)
629,96	0,2588(26)	0,2482(22)	0,2604(19)	0,2575(13)
786,44	0,0304(9)	0,0344(8)	0,0332(5)	0,0329(4)
810,2	0,0208(8)	0,0206(7)	0,0211(4)	0,0209(3)
834,03	0,9468(76)	0,9298(67)	0,9560(62)	0,9488(41)
861,11	0,0102(7)	0,0067(5)	0,0086(3)	0,0083(2)
894,25	0,0983(16)	0,0996(13)	0,1005(9)	0,1000(6)
999,86	0,0093(7)	0,0063(6)	0,0086(3)	0,0082(3)
1050,69	0,0685(14)	0,0716(12)	0,0690(7)	0,0694(5)
1230,86	0,0122(9)	0,0150(8)	0,0141(4)	0,0139(3)
1260,1	0,0107(8)	0,0117(7)	0,0110(4)	0,0111(3)
1276,76	0,0158(9)	0,0145(7)	0,0151(4)	0,0151(3)
1464,00	0,0342(8)	0,0371(10)	0,0362(4)	0,0359(4)
1596,68	0,0442(14)	0,0409(11)	0,0429(7)	0,0427(5)
1861,09	0,0554(16)	0,0520(14)	0,0534(8)	0,0534(6)
2201,66	0,2673(39)	0,2664(32)	0,2705(22)	0,2693(19)
2490,98	0,0753(20)	0,0751(17)	0,0773(10)	0,0766(8)
2507,79	0,1365(28)	0,1304(22)	0,1308(14)	0,1314(11)

Tabela 4.32: Probabilidades de emissão gama do ^{72}Ga determinados neste trabalho e encontradas na literatura.(%)

Energia (keV)	Este trabalho	Miyahara et al. 2004^[28]	King 1989^[45]
600,95	5,87(5)	5,829(12)	5,54(11)
629,96	25,75(13)	26,156(38)	24,8(5)
786,44	3,29(4)	3,337(9)	3,20(6)
810,2	2,09(3)	2,084(6)	2,01(4)
834,03	94,88(41)	95,53(5)	95,63(7)
861,11	0,83(2)	0,939(4)	0,913(20)
894,25	10,00(6)	10,145(14)	9,88(16)
999,86	0,82(3)	0,794(4)	0,799(14)
1050,69	6,94(5)	6,998(11)	6,91(11)
1230,86	1,39(3)	1,421(5)	1,45(2)
1260,1	1,11(3)	1,165(5)	1,13(3)
1276,76	1,51(3)	1,591(6)	1,565(16)
1464,0	3,59(4)	3,617(11)	3,55(6)
1596,68	4,27(5)	4,399(12)	4,24(9)
1861,09	5,34(6)	5,430(18)	5,25(8)
2201,66	26,93(19)	26,930(86)	25,9(5)
2490,98	7,66(8)	7,738(29)	7,65(23)
2507,79	13,14(11)	13,365(38)	12,78(23)

As probabilidades de emissão por decaimento das principais linhas de energia gama do ^{72}Ga determinadas neste trabalho pelo método absoluto, quando comparadas com os valores da literatura, apresentam concordância em algumas energias.

Nota-se, no entanto, que mesmo os valores dos outros autores nem sempre são concordantes entre si.

5. CONCLUSÕES

No presente trabalho foi desenvolvida a metodologia de medida de atividade dos radionuclídeos ^{54}Mn , $^{166\text{m}}\text{Ho}$ e ^{72}Ga conforme o objetivo proposto. O método de medida do ^{72}Ga em sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ empregado não foi utilizado por nenhum outro autor na literatura e se mostrou adequado na padronização deste radionuclídeo.

Os resultados das padronizações do $^{166\text{m}}\text{Ho}$ e do ^{54}Mn foram comparados com os resultados de comparações internacionais e observou-se uma boa concordância entre eles.

Na simulação de Monte Carlo para as curvas de extrapolação da eficiência do $^{166\text{m}}\text{Ho}$ houve uma discrepância da ordem de 0,7% em relação à curva experimental, causada provavelmente pela definição dos parâmetros do cálculo, uma vez que o resultado experimental é concordante com os valores da comparação internacional.

Os resultados das probabilidades de emissão gama por decaimento obtidos para os gamas do $^{166\text{m}}\text{Ho}$ foram comparados com outros autores da literatura. Os valores obtidos para as emissões gamas mais intensas apresentam boa concordância dentro do erro experimental. No caso dos raios X, o resultado para o raio X de 49,13 keV concorda, dentro do erro experimental, com a maioria dos autores, o que não ocorre com o raio X de 48,22 keV, que apresentou uma diferença de 37% em relação à média dos autores apresentados.

Os resultados da padronização do ^{72}Ga no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ com duas janelas distintas foram consistentes e a simulação de Monte Carlo na curva de extrapolação da eficiência mostrou boa concordância no valor das atividades determinadas experimentalmente.

As discrepâncias observadas nos resultados das probabilidades de emissão gama por decaimento para o ^{72}Ga demonstram a necessidade de mais resultados experimentais advindos de medidas absolutas.

Os resultados obtidos para o ^{166m}Ho e ^{72}Ga por meio de medidas diretas em sistemas primários complementam a rastreabilidade dos esquemas de decaimento, ressaltando a viabilidade do uso destes radionuclídeos como padrões para calibração de espectrômetros, uma vez que suas energias gama mais intensas complementam os intervalos de energia com poucos padrões disponíveis, como os gamas de 80,57 e 184,41 keV do ^{166m}Ho na região de baixas energias e gamas acima de 600 keV do ^{72}Ga , onde geralmente se utilizam o ^{152}Eu , ^{24}Na e ^{88}Y . Este último, no entanto, é de difícil obtenção por ser produzido em ciclotrons, o que não ocorre com o ^{72}Ga , produzido facilmente em reatores.

Para trabalhos futuros, sugere-se a aplicação de um ajuste não linear da curva de calibração em eficiência do espectrômetro, de modo a que seja considerado todo o intervalo de energia analisado (de 13 a 2754 keV).

Com relação à padronização absoluta, sugere-se o desenvolvimento dos métodos para outros radionuclídeos que possam ser utilizados como padrões secundários para complementação das curvas de calibração de espectrômetros.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] International Atomic Energy Agency. *X-ray and gamma-ray standards for detector calibration* IAEA-TCDOC-619, 1991.
- [2] DEBERTIN, K., HELMER, R. G. *Gamma and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*, 1st ed. North Holland . Amsterdam, 1988.
- [3] MOURA, L.P., *Método de coincidência generalizado para a medida absoluta da atividade de radionuclídeos – Aplicação na determinação do coeficiente de conversão interna da transição de 279 keV do ²⁰³Tl.*. Tese de Doutorado, Universidade Estadual de Campinas, 1969.
- [4] BAERG, A.P. The efficiency extrapolation method in coincidence counting. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, v. 112, p. 143-150, 1973.
- [5] CAMPION, P.J. The standardization of radioisotopes by the Beta-Gamma Coincidence Method using high efficiency detectors. *Applied. Radiation. Isotopes.*, v. 4, p. 232-248, 1959.
- [6] BAERG, A.P. Absolute measurement of radioactivity. *Metrologia*, v. 3, n. 4, p. 105-108, 1967.
- [7] SMITH, D.L., Improved corrections formulae for coincidence counting. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, v. 152, p. 505-519, 1978.
- [8] DELGADO, J. U., *Probabilidades de emissão X e gama determinadas por espectrometria em regiões complexas*. Tese de Doutorado, Universidade Federal do Rio de Janeiro, 2000.
- [9] BROWNE, E., Calculated uncertainties of absolute γ -ray intensities and decay branching ratios from decay schemes. . *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, v. A 249, p. 461-467, 1986.

- [10] GERALDO, L.P., and SMITH, D.L., *Least square methods and covariance matrix applied to the relative efficiency calibration of a Ge(Li) detector*. São Paulo, Pub. IPEN 243, 1989.
- [11] HELENE, O., *Método dos mínimos quadrados com formalismo matricial: Guia do usuário*, Notas de aula, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, 2001.
- [12] KNOLL, G.L., *Radiation detection and measurement*, 3.ed., John Wiley & Sons, NeW York, 2000.
- [13] LAVRAS, W., KOSKINAS.M.F, DIAS, M.S. and FONSECA, K.A., Primary standardization of ^{51}Cr radioactive solution. *V Regional IRPA Congress - Congress on Radiation Protection and Safety, II Iberian and Latin American Congress of Radiological Protection Societies, Recife - PE - Brasil, 04 de maio de 2001*.
- [14] CAMPION, P.J., *Procedures for accurately diluting and dispersing radioactive solutions*. Bureau International de Poids et Mesures, (Monografie BIPM-1), 1975, Paris.
- [15] DIAS, M.S., Programa computacional CONTAC - Comunicação Pessoal, 2003.
- [16] COX, D.R. and ISHAM,V., A bivariate point process connected with electronic counters. *Proceedings of the Royal Society of London, A*, 356, p. 149-160, 1977.
- [17] SMITH, D.L., Improved corrections formulae for coincidence counting. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, v. 152, p. 505-519, 1978.
- [18] SMITH, D.L., Some developments ins the Cox-Isham theory to coincidence corrections. including the extension to the computer-discrimination method. *Applied Radiation Isotopes*, A, 38(10), p. 813-822, 1987.
- [19] SCHONFELD, E. and DERSCH, R., $^{166\text{m}}\text{Ho}$, *BNM - Table de Radionucléides*, Commissariat à L'Énergie Atomique, 1999-2004.

- [20] BERNARDES, E.M.O., DELGADO, J.U., TAUHATA, L., SILVA, C.J., IWAHARA, A., POLEDNA, R., and PASCHOA A.S., $^{166\text{m}}\text{Ho}$: a multi- γ standard for the calibration of Ge spectrometers, *Applied. Radiation Isotopes*, v.56, p.157-161, 2002.
- [21] HINO, Y., MATUI, S., YAMADA, T., TAKEUCHI, N., ONOMA, K., IWAMOTO, S. and KOGURE, H.I, Absolute measurement of $^{166\text{m}}\text{Ho}$ radioactivity and development of sealed sources for standardization of γ -ray emitting nuclides, *Applied. Radiation Isotopes*, v.52, p.545-549, 2000.
- [22] MOREL, J., ETCHEVERRY, M. and PLAGNARD, J., Emission Probabilities of KX and γ Rays Following $^{166}\text{Ho}^{\text{m}}$ Decay, *Applied. Radiation. Isotopes*, v. 47, n. 5/6, p. 529-534, 1996.
- [23] HELMER, R.G. and SCHONFELD, E., ^{54}Mn , *BNM - Table de Radionucléides*, Commissariat à L'Énergie Atomique, 2004.
- [24] BROWNE, R. and SHIRLEY, V., *Table of Radioactive Isotopes*. 8th. Ed., John Wiley & Sons, New York, 1986.
- [25] MEDEIROS, J.A.G., ZAMBONI, C.B., LAPLLI, A.L., KENCHIAN, G. and CRUZ, M.T.F., Decay of ^{72}Ga . *Applied Radiation and Isotopes* v.54, p.245-259, 2001.
- [26] CAMP, D.C., Energy levels in ^{72}Ge from decay of ^{72}Ga and ^{72}As . *Nuclear Physics*, v.A121, 561-591, 1968.
- [27] RESTER, A.C., HAMILTON, J.H. and RAMAYYA, A.V., Decay of As-72 to levels of Ge-72. *Nuclear. Physics*, v. A162, p. 481-496, 1971.
- [28] MIYAHARA, H., OGATA, Y., FUJIKI, K., KATOH, K. and MARNADA, N., Highly precise measurements of the relative gamma-ray intensities for ^{56}Mn and ^{72}Ga . *Applied Radiation and Isotopes*, v.60, p. 295-299, 2004.

- [29] TAKEDA, M.N., DIAS, M.S. and KOSKINAS.M.F., Monte Carlo simulation of activity measurements by means of $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence system. *Brazilian Journal of Physics*. v. 34, n. 3a, p. 852-854, 2004.
- [30] PRICE, W.J., *Nuclear radiation detection*. 2.ed., McGraw Hill, New York, 1964.
- [31] KOKTA, L., Determination of peak area. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. v.112, p.245-251, 1973.
- [32] *Germanium detectors – User’s manual*. Camberra Industries, copyright 1993.
- [33] Maestro for Workgroups - Windows Multi-Channel Analysis, Model A65-B1, Version 3.06, EG&G ORTEC, .1995.
- [34] DIAS, M.S., Programa computacional ALPINO - Comunicação Pessoal, 2000.
- [35] RUELLAN, H., LÉPY, M., ETCHEVERRY, M., PLAGNARD, J., and MOREL, J., A New Spectra Processing Code Applied to the Analysis of ^{235}U e ^{238}U in the 200 keV Energy Range, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. v. A369, p.651-656, 1996.
- [36] RUELLAN, H., LÉPY, M.C., and PLAGNARD, J., *Presentation du logiciel COLEGRAM*, Note Technique LPRI/95/016,1995.
- [37] DIAS, M.S., CARDOSO, V., VANIN, V.R., and KOSKINAS, M.F., Combinations of nonlinear function and mixing method for fitting HPGe efficiency curve in the 59 – 2754keV energy range. *Applied Radiation and Isotopes*, v. 60, p. 683-687, 2004.
- [38] TAKEDA, M.N., *Determinação da correção para o efeito de soma em cascata para espectrômetros de HPGe pelo método de Monte Carlo*.. Dissertação de Mestrado, Universidade de São Paulo, São Paulo, 2001.
- [39] HELMER, R.G. and SCHONFELD, E., ^{152}Eu , *BNM - Table de Radionucléides*, Commissariat à L'Énergie Atomique, 2004.

[40] DIAS, M.S., and MOREIRA, D.S., Programa computacional LOGFIT - Comunicação Pessoal, 2005.

[41] RATEL, G., MICHOTTE, C., and HINO, Y., ***BIPM comparison BIPM.RI(II)-K1.Ho-166m of activity measurements of the radionuclide ^{166m}Ho and links for the 2000 regional comparison APMP.RI(II)-K2.Ho-166m.***, 2003.

[42] DIAS, M.S., Programa computacional LINFIT - Comunicação Pessoal, 1997.

[43] RATEL, G., ***International comparison of activity measurements of a solution of ^{54}Mn .*** BIPM, França, 2004.

[44] LANGE, N. A. ***Handbook of Chemistry***, McGraw-Hill, New York, 1961.

[45] KING, M.M., Nuclear data sheets for A=72. ***Nuclear Data Sheets, 1989.***

ANEXO 1

**LABORATÓRIOS PARTICIPANTES NA COMPARAÇÃO DE MEDIDAS DE
ATIVIDADE DO ^{166m}Ho**

	Sigla	Nome	País
A	BNM	Bureau National de Métrologie – Laboratoire	France
	LNHB	National Henri Becquerel	
B	NMIJ	National Metrology Institute of Japan	Japão
C	CNEA	Comision Nacional de Energia	Argentina
D	INER	Institute of Nuclear Energy Research	Chinese Taipei
E	KRISS	Korea Research Institute of Standards and Science	Korea
F	LNMRI	Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações	Brazil
		Ionizantes	
G	NIM	National Institute of Metrology	China

ANEXO 2

**LABORATÓRIOS PARTICIPANTES NA COMPARAÇÃO DE MEDIDAS DE
ATIVIDADE DO ⁵⁴Mn**

	Sigla	Nome	País
A	BARC	Bhabha Atomic Research Centre	India
B	BEV	Bundesamt für Eich-und Vermessungswesen	Austria
C	BIPM	Bureau International des Poids et mmesures	France
D	BNM- LNHB	Bureau National de Métrologie – Laboratoire National Henri Becquerel	France
E	CIEMAT	Centro de Investigaciones Energéticas Medioambientales y Tecnológicas	Spain
F	CMI-IIR	Czech Metrology Institute	Czech Republic
G	CNEN- IRD/LNMRI	Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes	Brazil
LMN	CNEN- IPEN/LMN	Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – Laboratório de Metrologia Nuclear	Brazil
I	CSIR-NML	Council for Scientific and Industrial Research	South Africa
J	IFIN	Natinal Institute of Research and Development for Physics and Nuclear Engeering	Romania
K	ININ	Instituto nacional de Investigaciones Nucleares	Mexico
L	IRA	Institut de Radiophysique Appliquée	Switzerland
M	IRMM	Institute for Reference Materials and Measurements	Belgium
N	NMIJ	National Metrology Institute of Japan	Japão
O	NPL	National Physical Laboratory	United Kingdom
P	PTB	Physikalisch-Technische Bundesanstalt	Germany
Q	RC	Radioisotope centre POLATOM	Poland
R	SMU	Slovak Institute of Metrology	Slovak Republic
S	VNIIM	D.I. Mendeleyev Institute for Metrology	Russian

ANEXO 3

**TABELAS DOS DADOS CALCULADOS NA SIMULAÇÃO DA CURVA DE
EXTRAPOLAÇÃO DA EFICIÊNCIA PARA O ^{166m}Ho**

Tabela 1. Simulação da curva de extrapolação da eficiência para janela gama 2 (fotopicos de 711 a 810 keV) obtido em 1000000 de histórias.

collodiom ^a	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$	ineficiência	normalização ^b	erro(%)
0	10000760	0,00147	1,00008	0,01
0,01	10006220	0,00905	1,00062	0,02
0,02	10013010	0,01486	1,00130	0,02
0,03	10012860	0,01939	1,00129	0,03
0,04	10018600	0,02396	1,00186	0,03
0,05	10021390	0,02821	1,00214	0,03
0,05	10021330	0,02817	1,00213	0,04
0,06	10022940	0,03194	1,00229	0,04
0,07	10020290	0,03516	1,00203	0,04
0,08	10027780	0,03916	1,00278	0,04
0,09	10033320	0,04299	1,00333	0,04
0,12	10035640	0,05249	1,00356	0,05
0,13	10033250	0,05527	1,00333	0,04
0,13	10035800	0,05548	1,00358	0,05
0,14	10040550	0,05883	1,00406	0,05
0,15	10044960	0,06206	1,00450	0,05
0,16	10048210	0,06519	1,00482	0,05
0,17	10038410	0,06687	1,00384	0,05
0,18	10048720	0,07067	1,00487	0,05
0,19	10050090	0,07358	1,00501	0,05
0,2	10055300	0,07650	1,00553	0,04
0,2	10056070	0,07655	1,00561	0,06
0,21	10055570	0,07904	1,00556	0,06
0,21	10053590	0,07903	1,00536	0,06
0,23	10059480	0,08436	1,00595	0,06
0,25	10060180	0,08942	1,00602	0,04
0,25	10064240	0,08968	1,00642	0,06
0,27	10069540	0,09456	1,00695	0,06
0,29	10072080	0,09911	1,00721	0,06
0,3	10064080	0,10192	1,00641	0,04
0,31	10078100	0,10438	1,00781	0,06
0,32	10072900	0,10842	1,00729	0,07
0,34	10073750	0,11276	1,00738	0,07
0,35	10076760	0,11475	1,00768	0,04
0,36	10076650	0,11759	1,00767	0,07
0,38	10080770	0,12272	1,00808	0,07
0,4	10099990	0,12936	1,01000	0,04
0,4	10087750	0,12790	1,00878	0,07

Tabela 1. Continuação

collodiom ^a	$N_B N_C / N_C$	ineficiência	normalização ^b	erro(%)
0,42	10093270	0,13323	1,00933	0,07
0,44	10091730	0,13779	1,00917	0,07
0,45	10098890	0,14106	1,00989	0,04
0,46	10109640	0,14481	1,01096	0,08
0,48	10097580	0,14835	1,00976	0,08
0,5	10101290	0,15378	1,01013	0,08
0,52	10111820	0,15989	1,01118	0,08
0,54	10111010	0,16479	1,01110	0,08
0,55	10120530	0,16835	1,01205	0,04
0,56	10125080	0,17136	1,01251	0,08
0,58	10123030	0,17603	1,01230	0,08
0,6	10130850	0,18234	1,01309	0,04
0,6	10126260	0,18164	1,01263	0,08
0,62	10125850	0,18698	1,01259	0,08
0,64	10129090	0,19233	1,01291	0,09
0,66	10131170	0,19793	1,01312	0,09
0,68	10132950	0,20345	1,01330	0,09
0,7	10146170	0,21017	1,01462	0,04
0,7	10149260	0,21057	1,01493	0,09
0,72	10158680	0,21725	1,01587	0,09
0,74	10162360	0,22279	1,01624	0,09
0,76	10150600	0,22726	1,01506	0,09
0,78	10160690	0,23399	1,01607	0,09
0,8	10155990	0,23881	1,01560	0,04
0,8	10162240	0,23965	1,01622	0,1
0,82	10164430	0,24528	1,01644	0,1
0,84	10171960	0,25213	1,01720	0,1
0,86	10189040	0,25973	1,01890	0,1
0,88	10190700	0,26590	1,01907	0,1
0,9	10184430	0,27148	1,01844	0,04
0,9	10173930	0,26974	1,01739	0,1
0,92	10181340	0,27667	1,01813	0,1
0,94	10196050	0,28429	1,01961	0,1
0,96	10212420	0,29246	1,02124	0,1
0,98	10201470	0,29688	1,02015	0,11
1	10203170	0,30324	1,02032	0,11
1,01	10201140	0,30788	1,02011	0,11
1,03	10224880	0,31542	1,02249	0,11
1,04	10231530	0,32107	1,02315	0,11
1,06	10220900	0,32467	1,02209	0,11
1,08	10230320	0,33029	1,02303	0,11
1,09	10220460	0,33416	1,02205	0,11
1,1	10241310	0,33989	1,02413	0,04
1,11	10229350	0,34000	1,02294	0,11
1,12	10243310	0,34677	1,02433	0,11
1,13	10242280	0,35149	1,02423	0,11
1,15	10249760	0,35758	1,02498	0,11
1,16	10235060	0,36075	1,02351	0,11

Tabela 1. Continuação

collodiom ^a	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$	ineficiência	normalização ^b	erro(%)
1,18	10259860	0,36895	1,02599	0,12
1,19	10249400	0,37258	1,02494	0,12
1,21	10249840	0,37784	1,02498	0,12
1,22	10271710	0,38568	1,02717	0,12
1,24	10259890	0,38956	1,02599	0,12
1,25	10263230	0,39221	1,02632	0,12
1,27	10265900	0,39523	1,02659	0,12
1,28	10269730	0,39754	1,02697	0,12
1,3	10286550	0,40213	1,02866	0,04
1,7	10310460	0,46801	1,03105	0,04

^a espessura de Collodiom.

^b normalizado pelo número de histórias.

Tabela 2. Simulação da curva de extrapolação da eficiência para janela gama 1 (fotopico de 184 keV) obtido em 1000000 de histórias.

collodiom ^a	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$	ineficiência	normalização ^b	erro(%)
0,00	10003480	0,00174	1,00035	0,01
0,01	10016920	0,01006	1,00169	0,02
0,02	10025610	0,01617	1,00256	0,02
0,03	10037650	0,02176	1,00377	0,02
0,04	10046270	0,02689	1,00463	0,02
0,05	10054440	0,03156	1,00544	0,03
0,06	10059750	0,03569	1,00598	0,03
0,07	10062850	0,03947	1,00629	0,03
0,08	10074460	0,04409	1,00745	0,03
0,09	10079310	0,04780	1,00793	0,03
0,10	10083160	0,05136	1,00832	0,03
0,12	10100170	0,05775	1,01002	0,04
0,13	10106570	0,06287	1,01066	0,04
0,14	10106420	0,06730	1,01064	0,04
0,16	10120400	0,07280	1,01204	0,04
0,17	10125430	0,07760	1,01254	0,04
0,19	10139770	0,08300	1,01398	0,04
0,20	10143000	0,08720	1,01430	0,04
0,22	10151570	0,09186	1,01516	0,04
0,23	10159320	0,09660	1,01593	0,05
0,23	10153600	0,09480	1,01536	0,05
0,24	10161360	0,09800	1,01614	0,05
0,25	10161380	0,10050	1,01614	0,05
0,26	10174400	0,10432	1,01744	0,05
0,27	10176470	0,10705	1,01765	0,05
0,28	10179200	0,10925	1,01792	0,05
0,29	10184120	0,11246	1,01841	0,05
0,30	10181440	0,11445	1,01814	0,05
0,31	10192740	0,11814	1,01927	0,05
0,32	10200530	0,12154	1,02005	0,05

Tabela 2. Continuação.

collodiom ^a	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$	ineficiência	normalização ^b	erro(%)
0,33	10200880	0,12389	1,02009	0,05
0,34	10202740	0,12542	1,02027	0,05
0,34	10205050	0,12745	1,02051	0,05
0,35	10206110	0,12913	1,02061	0,05
0,36	10216530	0,13191	1,02165	0,05
0,36	10221640	0,13424	1,02216	0,05
0,37	10223940	0,13577	1,02239	0,05
0,38	10228870	0,13810	1,02289	0,05
0,38	10225940	0,13937	1,02259	0,05
0,39	10227380	0,14088	1,02274	0,05
0,40	10238330	0,14420	1,02383	0,06
0,40	10238410	0,14543	1,02384	0,06
0,41	10244210	0,14781	1,02442	0,06
0,42	10244240	0,14953	1,02442	0,06
0,42	10244680	0,15093	1,02447	0,06
0,43	10252470	0,15347	1,02525	0,06
0,44	10253510	0,15548	1,02535	0,06
0,44	10249380	0,15639	1,02494	0,06
0,45	10253990	0,15887	1,02540	0,06
0,46	10258740	0,16096	1,02587	0,06
0,46	10265660	0,16330	1,02657	0,06
0,47	10266840	0,16495	1,02668	0,06
0,48	10279880	0,16817	1,02799	0,06
0,48	10269810	0,16873	1,02698	0,06
0,49	10279600	0,17164	1,02796	0,06
0,50	10278660	0,17297	1,02787	0,06
0,50	10283830	0,17538	1,02838	0,06
0,51	10277100	0,17624	1,02771	0,06
0,52	10283460	0,17871	1,02835	0,06
0,52	10283040	0,18042	1,02830	0,06
0,53	10291520	0,18308	1,02915	0,06
0,55	10290180	0,18769	1,02902	0,06
0,57	10314770	0,19554	1,03148	0,06
0,59	10322310	0,20131	1,03223	0,07
0,61	10338910	0,20805	1,03389	0,07
0,63	10344860	0,21368	1,03449	0,07
0,64	10351340	0,21940	1,03513	0,07
0,66	10360760	0,22597	1,03608	0,07
0,68	10363030	0,23138	1,03630	0,07
0,70	10378700	0,23815	1,03787	0,07
0,70	10379900	0,23828	1,03799	0,07
0,73	10390850	0,24779	1,03909	0,07
0,76	10409470	0,25822	1,04095	0,07
0,79	10415620	0,26778	1,04156	0,07
0,82	10437330	0,27937	1,04373	0,08
0,85	10449510	0,28951	1,04495	0,08
0,88	10472840	0,30083	1,04728	0,08
0,91	10496450	0,31282	1,04965	0,08

Tabela 2. Continuação.

collodiom ^a	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$	ineficiência	normalização ^b	erro(%)
0,94	10511440	0,32415	1,05114	0,08
0,97	10514370	0,33362	1,05144	0,08
0,98	10538790	0,34000	1,05388	0,08
1,05	10575170	0,36781	1,05752	0,09
1,12	10625500	0,39803	1,06255	0,09
1,20	10663770	0,42825	1,06638	0,09
1,27	10706850	0,45456	1,07069	0,09
1,34	10729450	0,46967	1,07295	0,10
1,41	10736490	0,48248	1,07365	0,10
1,48	10769760	0,49887	1,07698	0,10
1,56	10788350	0,51267	1,07884	0,10
1,63	10797830	0,52586	1,07978	0,10

^a espessura de Collodiom.

^b normalizado pelo número de histórias.

ANEXO 4

**TABELAS DOS DADOS CALCULADOS NA SIMULAÇÃO DA CURVA DE
EXTRAPOLAÇÃO DA EFICIÊNCIA PARA O ⁷²Ga.**

Tabela 1. Simulação da curva de extrapolação da eficiência para janela gama 1 (fotopicos de 629 e 834 keV) obtido em 10000000 de histórias.

collodiom ^a	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$	ineficiência	normalização ^b	erro(%)
0,1	10003330	0,01608	1,00033	0,02
0,17	10005810	0,02328	1,00058	0,03
0,24	10007420	0,02907	1,00074	0,03
0,31	10003550	0,03328	1,00036	0,03
0,38	10003170	0,03765	1,00032	0,03
0,44	10009390	0,04214	1,00094	0,04
0,51	10007500	0,04577	1,00075	0,04
0,58	10010770	0,04971	1,00108	0,04
0,65	10011500	0,05309	1,00115	0,04
0,72	10010450	0,05642	1,00105	0,04
0,79	10011970	0,05972	1,00120	0,04
0,86	10010630	0,06244	1,00106	0,04
0,93	10011070	0,06560	1,00111	0,05
1	10008210	0,06814	1,00082	0,05
1,07	10010390	0,07140	1,00104	0,05
1,13	10010000	0,07401	1,00100	0,05
1,2	10020240	0,07791	1,00202	0,05
1,3	10017690	0,08120	1,00177	0,05
1,41	10021530	0,08590	1,00215	0,05
1,53	10010360	0,08887	1,00104	0,05
1,64	10018560	0,09389	1,00186	0,05
1,76	10022110	0,09807	1,00221	0,06
1,87	10013180	0,10103	1,00132	0,06
1,98	10014510	0,10492	1,00145	0,06
2,1	10024610	0,10970	1,00246	0,06
2,21	10014620	0,11227	1,00146	0,06
2,33	10025210	0,11706	1,00252	0,06
2,44	10029430	0,12105	1,00294	0,06
2,55	10021810	0,12381	1,00218	0,06
2,67	10016530	0,12676	1,00165	0,06
2,78	10029720	0,13180	1,00297	0,06
2,9	10024010	0,13433	1,00240	0,06
3,01	10021730	0,13749	1,00217	0,07
3,12	10024470	0,14120	1,00245	0,07
3,1	10016280	0,13972	1,00163	0,07
3,19	10024680	0,14306	1,00247	0,07
3,28	10034450	0,14655	1,00345	0,07

Tabela 1. Continuação.

colloidiom ^a	$N_p N_y / N_c$	ineficiência	normalização ^b	erro(%)
3,37	10018540	0,14723	1,00185	0,07
3,46	10015450	0,14966	1,00155	0,07
3,55	10018480	0,15238	1,00185	0,07
3,64	10020430	0,15494	1,00204	0,07
3,73	10032070	0,15886	1,00321	0,07
3,82	10033250	0,16142	1,00333	0,07
3,91	10027710	0,16314	1,00277	0,07
4	10021030	0,16495	1,00210	0,07
4,1	10026260	0,16821	1,00263	0,07
4,2	10023660	0,17042	1,00237	0,07
4,3	10025390	0,17362	1,00254	0,07
4,4	10031070	0,17672	1,00311	0,07
4,5	10038030	0,17998	1,00380	0,07
4,6	10024410	0,18108	1,00244	0,07
4,7	10016010	0,18288	1,00160	0,08
4,8	10025490	0,18639	1,00255	0,08
4,9	10029170	0,18923	1,00292	0,08
5	10022490	0,19093	1,00225	0,08
5,1	10024280	0,19404	1,00243	0,08
5,2	10023470	0,19632	1,00235	0,08
5,3	10033840	0,19987	1,00338	0,08
5,4	10037940	0,20285	1,00379	0,08
5,5	10037130	0,20511	1,00371	0,08
5,6	10032480	0,20720	1,00325	0,08
5,7	10029970	0,20926	1,00300	0,08
5,8	10026050	0,21167	1,00261	0,08
5,9	10040720	0,21511	1,00407	0,08
6	10039540	0,21789	1,00395	0,08
6,1	10034300	0,21969	1,00343	0,08
6,2	10034380	0,22183	1,00344	0,08
6,3	10027410	0,22367	1,00274	0,08
6,4	10024440	0,22565	1,00244	0,08
6,5	10036020	0,22933	1,00360	0,08
6,6	10040750	0,23221	1,00408	0,08
6,7	10040130	0,23459	1,00401	0,08
6,8	10035500	0,23633	1,00355	0,08
6,9	10028830	0,23766	1,00288	0,08
7	10041000	0,24227	1,00410	0,09
7,1	10044550	0,24422	1,00446	0,09
7,2	10040050	0,24629	1,00401	0,09
7,3	10034880	0,24822	1,00349	0,09
7,4	10038360	0,25064	1,00384	0,09
7,5	10019900	0,25092	1,00199	0,09
7,6	10037880	0,25570	1,00379	0,09
7,7	10048160	0,25900	1,00482	0,09
7,8	10033730	0,25952	1,00337	0,09
7,9	10026680	0,26087	1,00267	0,09
8	10027470	0,26321	1,00275	0,09

Tabela 1. Continuação.

colloidiom ^a	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$	ineficiência	normalização ^b	erro(%)
8,2	10040590	0,26988	1,00406	0,09
8,4	10043580	0,27424	1,00436	0,09
8,6	10030850	0,27715	1,00309	0,09
8,8	10035880	0,28238	1,00359	0,09
9	10034480	0,28672	1,00345	0,09
9,2	10035800	0,29113	1,00358	0,09
9,4	10033620	0,29526	1,00336	0,09
9,6	10044030	0,30082	1,00440	0,09
9,8	10047320	0,30580	1,00473	0,1
10	10028410	0,30786	1,00284	0,1
10,2	10042200	0,31431	1,00422	0,1
10,4	10035410	0,31712	1,00354	0,1
10,6	10035210	0,32176	1,00352	0,1
10,8	10054950	0,32851	1,00550	0,1
11	10042980	0,33136	1,00430	0,1
11,2	10048340	0,33653	1,00483	0,1
11,4	10049270	0,34043	1,00493	0,1
11,6	10045260	0,34473	1,00453	0,1
11,8	10038890	0,34751	1,00389	0,1
12	10044670	0,35300	1,00447	0,1
12,1	10047310	0,35558	1,00473	0,1
12,2	10043660	0,35694	1,00437	0,1
12,3	10053210	0,36057	1,00532	0,1
12,4	10061480	0,36412	1,00615	0,1
12,5	10036080	0,36224	1,00361	0,1
12,6	10044960	0,36535	1,00450	0,1
12,7	10049540	0,36831	1,00495	0,1
12,8	10039820	0,36903	1,00398	0,1
12,9	10031150	0,37015	1,00312	0,1
13	10046970	0,37426	1,00470	0,1
13,1	10038650	0,37489	1,00387	0,1
13,2	10045640	0,37842	1,00456	0,11
13,3	10036170	0,37875	1,00362	0,11
13,4	10043960	0,38247	1,00440	0,11
13,5	10041290	0,38363	1,00413	0,11
13,6	10041840	0,38623	1,00418	0,11
13,7	10056510	0,39022	1,00565	0,11
13,8	10050880	0,39110	1,00509	0,11
13,9	10064520	0,39558	1,00645	0,11
14	10051360	0,39584	1,00514	0,11
14,1	10043320	0,39663	1,00433	0,11
14,2	10035870	0,39767	1,00359	0,11
14,3	10045560	0,40119	1,00456	0,11
14,4	10042140	0,40260	1,00421	0,11
14,5	10049910	0,40605	1,00499	0,11
14,6	10058750	0,40924	1,00588	0,11
14,7	10056090	0,41040	1,00561	0,11
14,8	10048220	0,41216	1,00482	0,11

Tabela 1. Continuação.

collodiom ^a	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$	ineficiência	normalização ^b	erro(%)
14,9	10061070	0,41541	1,00611	0,11
15	10057660	0,41686	1,00577	0,11
15,1	10049570	0,41845	1,00496	0,11
15,2	10060060	0,42165	1,00601	0,11
15,3	10055710	0,42341	1,00557	0,11
15,4	10052750	0,42517	1,00528	0,11
15,5	10055910	0,42722	1,00559	0,11
15,6	10057900	0,42994	1,00579	0,11
15,7	10066410	0,43293	1,00664	0,11
15,8	10054390	0,43343	1,00544	0,11
15,9	10047350	0,43458	1,00474	0,11
16	10043940	0,43588	1,00439	0,11
16,2	10051370	0,44110	1,00514	0,11
16,4	10036690	0,44264	1,00367	0,11
16,6	10052410	0,44972	1,00524	0,11
16,8	10044740	0,45209	1,00447	0,11

Tabela 2. Simulação da curva de extrapolação da eficiência para janela gama 2 (fotopicos de 2201 e 2507 keV) obtido em 10000000 de histórias.

collodiom ^a	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$	ineficiência	normalização ^b	erro(%)
0,1	10063060	0,02226	1,00631	0,07
0,2	10062280	0,03155	1,00623	0,09
0,3	10113590	0,04418	1,01136	0,10
0,4	10116300	0,05055	1,01163	0,11
0,5	10132810	0,05796	1,01328	0,12
0,6	10178220	0,06791	1,01782	0,13
0,69	10166440	0,07144	1,01664	0,13
0,79	10192150	0,07873	1,01922	0,14
0,89	10198830	0,08400	1,01988	0,14
0,99	10223690	0,09093	1,02237	0,15
1,09	10215160	0,09414	1,02152	0,15
1,19	10226550	0,09945	1,02266	0,15
1,29	10245290	0,10534	1,02453	0,16
1,39	10242090	0,10864	1,02421	0,16
1,49	10282560	0,11695	1,02826	0,16
1,59	10296130	0,12204	1,02961	0,17
1,68	10314920	0,12768	1,03149	0,17
1,7	10301170	0,12685	1,03012	0,17
1,83	10332340	0,13460	1,03323	0,18
1,96	10353980	0,14170	1,03540	0,18
2,09	10352680	0,14600	1,03527	0,18
2,22	10343380	0,14912	1,03434	0,19
2,35	10368220	0,15632	1,03682	0,19
2,48	10362690	0,15965	1,03627	0,19

Tabela 2. Continuação.

collodiom ^a	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$	ineficiência	normalização ^b	erro(%)
2.61	10397650	0,16788	1,03977	0,19
2.74	10427790	0,17522	1,04278	0,20
2.87	10415670	0,17793	1,04157	0,20
3,1	10443690	0,18804	1,04437	0,21
3.19	10438940	0,19000	1,04389	0,21
3.28	10456950	0,19482	1,04570	0,21
3.37	10461500	0,19813	1,04615	0,21
3.46	10475460	0,20223	1,04755	0,21
3.55	10480610	0,20567	1,04806	0,21
3.64	10454960	0,20502	1,04550	0,21
3.73	10490130	0,21211	1,04901	0,22
3.82	10535130	0,21944	1,05351	0,22
3.91	10499850	0,21802	1,04999	0,22
4	10505240	0,22143	1,05052	0,22
4,1	10519970	0,22566	1,05200	0,22
4,2	10528190	0,22943	1,05282	0,23
4,3	10529320	0,23252	1,05293	0,23
4,4	10548620	0,23751	1,05486	0,23
4,5	10539350	0,23884	1,05394	0,23
4,6	10579200	0,24657	1,05792	0,23
4,7	10560580	0,24671	1,05606	0,23
4,8	10586360	0,25252	1,05864	0,24
4,9	10586090	0,25542	1,05861	0,24
5	10609580	0,26083	1,06096	0,24
5,1	10603940	0,26289	1,06039	0,24
5,2	10605930	0,26567	1,06059	0,24
5,3	10581290	0,26501	1,05813	0,24
5,4	10612900	0,27190	1,06129	0,24
5,5	10661540	0,28007	1,06615	0,25
5,6	10673060	0,28418	1,06731	0,25
5,7	10673390	0,28706	1,06734	0,25
5,8	10674380	0,28999	1,06744	0,25
5,9	10703080	0,29565	1,07031	0,25
6	10667350	0,29404	1,06674	0,25
6,1	10687440	0,29898	1,06874	0,26
6,2	10739370	0,30783	1,07394	0,26
6,3	10711770	0,30698	1,07118	0,26
6,4	10694880	0,30740	1,06949	0,26
6,5	10716690	0,31267	1,07167	0,26
6,6	10710500	0,31431	1,07105	0,26
6,7	10748900	0,32226	1,07489	0,26
6,8	10714660	0,31958	1,07147	0,26
6,9	10734060	0,32490	1,07341	0,26
7	10743540	0,32864	1,07435	0,27
7,1	10737660	0,33032	1,07377	0,27
7,2	10782440	0,33860	1,07824	0,27
7,3	10773590	0,34008	1,07736	0,27
7,4	10792020	0,34455	1,07920	0,27

Tabela 2. Continuação.

collodiom ^a	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$	ineficiência	normalização ^b	erro(%)
7,5	10795940	0,34781	1,07959	0,27
7,6	10811010	0,35167	1,08110	0,28
7,7	10859060	0,36065	1,08591	0,28
7,8	10830960	0,35945	1,08310	0,28
7,9	10859990	0,36596	1,08600	0,28

^a espessura de Collodiom.

^b normalizado pelo número de histórias.