



AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE  
DE SÃO PAULO

**DESENVOLVIMENTO DE MÉTODOS DE MEDIDA DE  
ATIVIDADE EMPREGANDO SISTEMAS DE COINCIDÊNCIA  
PARA RADIONUCLÍDEOS QUE DESINTEGRAM PELA  
DUPLA EMISSÃO  $\beta^- - \beta^+$  / CAPTURA ELETRÔNICA  
- APLICAÇÃO NA PADRONIZAÇÃO DO  $^{192}\text{Ir}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  E  $^{186}\text{Re}$**

**KÁTIA APARECIDA FONSECA HILÁRIO**

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  
2002**

**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**

**Autarquia associada à Universidade de São Paulo**

**DESENVOLVIMENTO DE MÉTODOS DE MEDIDA DE ATIVIDADE EMPREGANDO SISTEMAS DE COINCIDÊNCIA PARA RADIONUCLÍDEOS QUE DESINTEGRAM PELA DUPLA EMISSÃO  $\beta^-$  -  $\beta^+$ /CAPTURA ELETRÔNICA - APLICAÇÃO NA PADRONIZAÇÃO DO  $^{192}\text{Ir}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  E  $^{186}\text{Re}$ .**

**KÁTIA APARECIDA FONSECA HILÁRIO**



**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**

*Aos meus pais, Edson e Wanilda*

*Ao Wagner*

*“O mistério é a coisa mais nobre de que podemos ter experiência. É a emoção que se encontra no cerne da verdadeira ciência. Aquele que não sente essa emoção e que não pode mais se maravilhar nem se espantar, é como se já estivesse morto. Saber que aquilo que é impenetrável para nós verdadeiramente existe e se manifesta como a mais alta sabedoria e a mais radiosa beleza, que nossas limitadas faculdades só podem apreender em suas formas mais primitivas, esse conhecimento, esse sentimento, está no centro de toda verdadeira devoção. A experiência cósmica é, com efeito, o mais poderoso e mais nobre pivô da pesquisa científica.”*

**Albert Einstein**

## **AGRADECIMENTOS**

*À minha orientadora, Dra. Marina Fallone Koskinas, pelo apoio, estímulo, paciência e dedicação durante o desenvolvimento deste trabalho;*

*Ao Dr. Mauro da Silva Dias, pelas discussões e sugestões durante toda a realização deste trabalho;*

*Às amigas Cláudia, Denise e Aída, pela amizade, estímulo, carinho e paciência oferecidos ao longo destes anos;*

*Aos meus pais que sempre apoiaram e incentivaram com carinho meus anos de estudos;*

*Ao meu marido Wagner, pelo apoio, carinho e paciência oferecidos ao longo deste trabalho;*

*Aos colegas Vanderlei, Takeda, Wilson e Franco pela amizade durante todo este tempo;*

*Ao Maurício pelo auxílio técnico e amizade desde o momento que ingressou no LMN;*

*Aos colegas Cláudio, Fábio e Roberto pelo apoio técnico, colaboração e amizade;*

*A todos os colegas do CRPq pelo incentivo e apoio oferecido;*

*Ao pessoal de operação do reator IEA-R1, pela colaboração nas irradiações efetuadas;*

*Ao pessoal da CPG (Ilze, Vera e Ana), pela colaboração;*

*Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, na pessoa do Superintendente Dr. Cláudio Rodrigues, pela oportunidade oferecida de realização deste trabalho;*

*Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq), pelo apoio financeiro;*

*A todos àqueles que direta ou indiretamente colaboraram na execução e realização deste trabalho.*

**DESENVOLVIMENTO DE MÉTODOS DE MEDIDA DE ATIVIDADE  
EMPREGANDO SISTEMAS DE COINCIDÊNCIA PARA  
RADIONUCLÍDEOS QUE DESINTEGRAM PELA DUPLA EMISSÃO  
 $\beta^- - \beta^+$  / CAPTURA ELETRÔNICA – APLICAÇÃO NA  
PADRONIZAÇÃO DO  $^{192}\text{Ir}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  E  $^{186}\text{Re}$**

**Kátia Aparecida Fonseca Hilário**

**RESUMO**

Neste trabalho foram desenvolvidos métodos alternativos para medida de radionuclídeos com duplo decaimento,  $\beta^-$ ,  $\beta^+$ /captura eletrônica empregando o método de coincidência, aplicado a sistemas distintos. Para isto, foram utilizados dois sistemas de coincidência: um contador proporcional  $4\pi$  a gás fluente acoplado a um par de cristais cintiladores NaI(Tl) e um contador proporcional do mesmo tipo acoplado a um espectrômetro HPGe. Os radionuclídeos escolhidos para padronização, devido a seu grande interesse em medicina nuclear, calibração de detectores e estudos industriais de gamagrafia, foram o  $^{192}\text{Ir}$ , o  $^{152}\text{Eu}$  e o  $^{186}\text{Re}$ , sendo os dois primeiros, alvo de comparações internacionais patrocinadas pelo BIPM (Bureau International des Poids et Mesures), França, o qual forneceu as soluções radioativas. No caso do  $^{186}\text{Re}$ , foi determinada a probabilidade de emissão gama por decaimento utilizando um espectrômetro REGe previamente calibrado com ampolas padrão. As incertezas envolvidas foram determinadas pela metodologia de matriz de covariância.

**DEVELOPMENT OF METHODS FOR ACTIVITY  
DETERMINATION FOR RADIONUCLIDES WITH DOUBLE DECAY  
EMISSION  $\beta^- - \beta^+$  / ELECTRON CAPTURE – APPLICATION TO  
THE STANDARDIZATION OF  $^{192}\text{Ir}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  and  $^{186}\text{Re}$ .**

**Kátia Aparecida Fonseca Hilário**

**ABSTRACT**

In the present work alternative procedures have been developed for standardization of radionuclides with double decay,  $\beta^- - \beta^+$ /electron capture using the  $4\pi\beta-\gamma$  coincidence technique, applying different systems. Two  $4\pi\beta-\gamma$  coincidence systems were used: one with a  $4\pi$  gas-flow proportional counter coupled to a pair of NaI(Tl) scintillators and the other one with the same type of proportional counter coupled to HPGe detector. The radionuclides selected for this standardization, due to great interest in nuclear medicine, detector calibration and industrial radiography, were  $^{192}\text{Ir}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  and  $^{186}\text{Re}$ . The first and the second were part of international comparisons sponsored by the Bureau International des Poids et Mesures (BIPM), France, who supplied the radioactive solution. For  $^{186}\text{Re}$ , the gamma-ray emission probability per decay was measured by means REGe spectrometer system, previously calibrated with standard ampoules. All the uncertainties involved were treated rigorously, by means of covariance analysis.

## SUMÁRIO

	<b>Página</b>
<b>INTRODUÇÃO .....</b>	<b>01</b>
<b>OBJETIVOS .....</b>	<b>04</b>
<b>1.FUNDAMENTOS TEÓRICOS .....</b>	<b>05</b>
1.1.Introdução.....	05
1.1.1.Comparações Internacionais .....	07
1.1.1.1.Intercomparações e o Sistema Internacional de Referência.....	09
1.2.Processos Nucleares Básicos em Fontes Radioativas .....	10
1.2.1.Dcaimento $\beta$ .....	11
1.2.1.1.Captura Eletrônica (CE) .....	12
1.2.2.Radiação Gama.....	13
1.2.3.Rearranjo Eletrônico .....	16
1.2.3.1.Elétrons Auger .....	17
1.2.3.2.Raios-X Característicos .....	17
1.3.Método de Medida Primária da Atividade .....	18
1.3.1.Formalismo Geral do Método de Coincidência .....	19
1.3.2.Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência .....	20
1.3.3. Técnica de Extrapolação Bi-paramétrica.....	25
1.4.Medida da Probabilidade de Emissão Gama por Decaimento.....	27
1.5.Método de Análise de Covariância.....	28
<b>2.PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS NOS SISTEMAS DE COINCIDÊNCIAS .....</b>	<b>31</b>
2.1.Radionuclídeo $^{192}\text{Ir}$ .....	31
2.1.1.Revisão da Literatura.....	31
2.1.2.Padronização do $^{192}\text{Ir}$ .....	36
2.1.3.Esquema de Decaimento.....	37
2.1.4.Métodos de Padronização para o $^{192}\text{Ir}$ .....	41

2.1.4.1.Equações para o Sistema de Coincidência $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$	42
2.1.4.2.Equações para o Sistema de Coincidência $4\pi(\text{PC})\text{-Ge(Li)}$ – Método Espectroscópico .....	45
2.2. Radionuclídeo $^{152}\text{Eu}$ .....	46
2.2.1.Revisão da Literatura .....	46
2.2.2.Padronização do $^{152}\text{Eu}$ .....	50
2.2.3.Esquema de Decaimento .....	51
2.2.4.Métodos de Padronização para o $^{152}\text{Eu}$ .....	57
2.2.4.1.Equações para o Sistema de Coincidência $4\pi(\text{PC})\text{-HPGe.}$	58
2.3.Radionuclídeo $^{186}\text{Re}$ .....	61
2.3.1.Revisão da Literatura .....	61
2.3.2.Padronização do $^{186}\text{Re}$ .....	64
2.3.3.Esquema de Decaimento .....	65
2.3.4.Métodos de Padronização para o $^{186}\text{Re}$ .....	68
2.3.4.1.Equações para o Sistema de Coincidência $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$	69
2.3.4.2.Equações para o Sistema de Coincidência $4\pi(\text{PC})\text{-HPGe}$ – Método Espectroscópico .....	73
2.4.Correções Aplicadas nas Medidas do Sistema de Coincidência .....	74
2.4.1.Tempo Morto.....	74
2.4.2.Tempo de Resolução e Coincidências Acidentais.....	75
2.4.3.Decaimento.....	76
2.5.Medida das Fontes.....	77
<b>3. ARRANJO EXPERIMENTAL .....</b>	<b>78</b>
3.1.Características dos Detectores Utilizados no Sistema $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$	78
3.1.1.Contador Proporcional $4\pi(\text{PC})$ .....	78
3.1.2.Cristal Cintilador de NaI(Tl).....	80
3.2.Características dos Detectores Utilizados no Sistema $4\pi(\text{PC})\text{-HPGe e}$ $4\pi(\text{PC})\text{-Ge(Li)}$ .....	80
3.2.1.Contador Proporcional $4\pi(\text{PC})$ .....	81
3.2.2.Espectrômetro de HPGe .....	81
3.3.Sistema Eletrônico.....	82

3.3.1.Sistema Eletrônico Convencional .....	83
3.3.2.Sistema Eletrônico Utilizado no Método Espectroscópico .....	87
3.3.3.Sistema Eletrônico TAC.....	89
3.4.Medida de Tempo Morto e Tempo de Resolução.....	91
3.4.1.Determinação dos Tempos Mortos $\beta$ e $\gamma$ .....	92
3.4.2.Determinação do Tempo de Resolução.....	93
3.5.Espectrômetro REGe .....	94
3.5.1.Sistema Eletrônico Utilizado.....	95
3.6.Preparação das Amostras .....	97
3.6.1.Preparação das Fontes Utilizadas no Sistema de Coincidências	97
3.6.1.1.Preparação do $^{192}\text{Ir}$ .....	98
3.6.1.2.Preparação do $^{152}\text{Eu}$ .....	99
3.6.1.3.Produção e Preparação do $^{186}\text{Re}$ .....	100
<b>4.ESPECTROMETRIA <math>\gamma</math> COM DETECTOR SEMICONDUTOR DE GERMÂNIO(REGe).....</b>	<b>101</b>
4.1.Área sob o Pico de Absorção Total.....	102
4.2.Correções Aplicadas .....	104
4.2.1.Fator Geométrico e de Atenuação.....	104
4.2.2.Dcaimento.....	105
4.2.3.Tempo Morto e Empilhamento de Pulsos .....	105
4.2.4.Efeito Soma .....	106
4.3.Curva de Calibração em Eficiência.....	106
4.4.Medida das Amostras .....	107
<b>5.RESULTADOS OBTIDOS E ANÁLISE DOS DADOS .....</b>	<b>109</b>
5.1.Resultados da Taxa de Desintegração do $^{192}\text{Ir}$ .....	109
5.2.Resultados da Taxa de Desintegração do $^{152}\text{Eu}$ .....	119
5.3.Resultados da Taxa de Desintegração do $^{186}\text{Re}$ .....	125
5.3.1.Curva de Calibração do Espectrômetro REGe.....	130
5.3.2.Resultados da Probabilidade de Emissão Gama por Dcaimento .....	136

<b>6.CONCLUSÃO .....</b>	<b>138</b>
<b>7.REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....</b>	<b>140</b>

## **INTRODUÇÃO**

Este trabalho, realizado no Laboratório de Metrologia Nuclear do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, pertence especificamente ao campo da Metrologia de Radionuclídeos.

A metrologia seja ela convencional ou nuclear sempre esteve ligada a 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.

A metrologia nuclear desenvolve métodos de padronização de radionuclídeos utilizados nas diversas áreas de pesquisa básica e aplicada, assim como na indústria, em medicina nuclear e em proteção radiológica.

Um Laboratório de Metrologia de Radionuclídeos tem como tarefa principal manter e fornecer padrões, com limites de incertezas apropriados, para a calibração de instrumentos de medida da atividade. E, como tarefa secundária, obter a consistência de suas medidas de atividade com outros laboratórios existentes, nacionais ou internacionais, por meio de comparações internacionais diretas ou indiretas. Os laboratórios que fornecem serviços de calibração em radioatividade podem também providenciar suporte indispensável na maioria das aplicações de materiais radiativos, que incluem grandes áreas, tais como: agricultura, indústria

química, ciências ambientais, tecnologia de reatores, meteorologia, física aplicada, medicina e muitas outras.

Atualmente o estudo de métodos de padronização de radionuclídeos está voltado para os radioisótopos utilizados em medicina nuclear, pois a qualidade dos padrões utilizados influencia diretamente na qualidade dos exames efetuados e das doses aplicadas aos pacientes.

Para aplicações em medicina nuclear, os usuários clínicos necessitam principalmente de medidas de meia-vida precisas e um instrumento bem ajustado como calibrador de dose (geralmente uma câmara de ionização pressurizada). O fator de calibração do instrumento deve ser derivado de um padrão nacional. Os produtores de grandes quantidades de radionuclídeos necessitam também de um esquema de decaimento preciso para utilizar com as medidas dos raios- $\gamma$  ou no mínimo, necessitam do valor da probabilidade por decaimento do raio- $\gamma$  mais intenso bem conhecido.

A aplicação de técnicas e métodos de medidas para padronização de certos radioisótopos, cuja sistemática de medida é dificultada pela complexidade dos esquemas de desintegração tem tido grande ênfase.

Na literatura existem vários métodos aplicados na padronização de radionuclídeos com esquemas de decaimento complexos que utilizam o sistema de coincidência. No entanto, poucas são as informações acerca dos métodos de análise dos dados, de modo que, para a conclusão final de uma calibração, cada laboratório deve desenvolver sua própria metodologia.

Neste trabalho é apresentada a metodologia de análise e de medida desenvolvida no LMN (Laboratório de Metrologia Nuclear) para radionuclídeos que desintegram por emissão  $\beta^-$  -  $\beta^+$ /captura eletrônica. Para isto, foi utilizado o sistema de coincidência tradicional

$4\pi(\text{PC})\beta\text{-NaI}(\text{Tl})\gamma$  e o sistema  $4\pi(\text{PC})\beta\text{-}\gamma\text{HPGe}$  cujas medidas combinadas permitiram a determinação da atividade. A técnica de extrapolação bi-paramétrica da eficiência também foi utilizada e desenvolvida neste trabalho.

Os radionuclídeos escolhidos para padronização (devido seus esquemas de decaimento e interesse nas áreas de medicina nuclear e pesquisa nuclear básica - física aplicada) foram o  $^{192}\text{Ir}$ , o  $^{152}\text{Eu}$  e o  $^{186}\text{Re}$ . O  $^{192}\text{Ir}$  foi o radionuclídeo escolhido para participar de uma comparação internacional em pequena escala (SIR), organizada pelo ETL - Japão, em 1998, devido sua grande importância na área médica. E o  $^{152}\text{Eu}$ , foi o radionuclídeo escolhido para participar da comparação internacional organizada pelo BIPM (Bureau International des Poids et Mesures), em 2000.

O conhecimento da intensidade gama por decaimento de radionuclídeos, também é um fator importante e de grande interesse não só para a compreensão da estrutura nuclear em geral, como também para casos específicos de sua aplicação, tais como: calibração de espectrômetros, câmaras de ionização, etc. Esta foi determinada para o caso do  $^{186}\text{Re}$ , para que os resultados obtidos em sua padronização pudessem ser comparados com outros autores.

## OBJETIVOS

O objetivo do presente trabalho é estabelecer metodologias de medida da atividade de radionuclídeos que desintegram pela dupla emissão de  $\beta^-$  -  $\beta^+$ /captura eletrônica, utilizando sistemas de coincidência.

A relevância do tema justifica-se pela necessidade crescente da medida de padrões com boa exatidão, especialmente no caso de radionuclídeos de uso em medicina nuclear, estando a qualidade dos padrões empregados diretamente relacionada à qualidade das medidas de atividade dos radionuclídeos aplicados.

Os aspectos de originalidade deste trabalho estão associados ao desenvolvimento do método de análise dos dados obtidos experimentalmente e na utilização de dois sistemas de medida. Para o desenvolvimento deste trabalho foram selecionados os radionuclídeos:  $^{192}\text{Ir}$ ,  $^{186}\text{Re}$  e  $^{152}\text{Eu}$ . Os dois primeiros são nuclídeos de grande interesse em física médica e o último é muito utilizado na calibração de espectrômetros gama.

## **1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS**

### **1.1. INTRODUÇÃO**

A Metrologia Nuclear é o ramo da ciência que se ocupa de medidas primárias e pode ser dividida em: Metrologia de Nêutrons, cuja finalidade principal é a medida de densidades e espectro de nêutrons produzidos em reatores e Metrologia de Radionuclídeos, que tem como escopo principal a medida primária da atividade de fontes radioativas sólidas, líquidas ou gasosas.

A Metrologia de Radionuclídeos originou-se ao mesmo tempo em que ocorreu a descoberta da radioatividade, pois em qualquer experimento, uma avaliação das quantidades em estudo se faz necessária.

Mas o desenvolvimento de métodos de medida primária com boa exatidão ocorreu nas décadas de 60 e 70 quando o progresso na fabricação de detectores, e o desenvolvimento na área de eletrônica permitiram o uso de sistemas de medidas mais confiáveis e reprodutivos.

Também foi nesta época que Baerg, Champion e outros [Baerg,1966; Baerg,1967; Champion,1959; Taylor,1967] desenvolveram os métodos de coincidência, assim como os métodos de preparação de fontes [Champion,1975], possibilitando melhorar a qualidade dos padrões radioativos produzidos.

O método de coincidência foi de tal maneira revolucionário na área de metrologia nuclear que até hoje é utilizado, tendo incorporado os avanços na área eletrônica e computacional, mas mantendo o seu princípio básico.

Em São Paulo, o Laboratório de Metrologia Nuclear foi criado em 1964, por iniciativa do Prof. Marcello Damy de Souza Santos com a finalidade principal de pesquisar e desenvolver métodos de determinação da atividade de radionuclídeos com boa exatidão. Desde essa época, o LMN tem desenvolvido métodos e sistemas de padronização de radionuclídeos, tais como, a medida do coeficiente de conversão interna do  $^{203}\text{Tl}$  [Moura,1969], o desenvolvimento de um sistema de coincidência que empregava detectores do tipo barreira de superfície [Koskinas,1988], a medida da probabilidade de emissão gama por decaimento do  $^{126}\text{I}$  [Fonseca,1997] e do  $^{42}\text{K}$  [Moreira,2000], assim como a padronização de vários outros radionuclídeos [Attie,1998;Fonseca,2001;Lavras,2001].

A confiabilidade e a rastreabilidade dessas padronizações tem sido verificada por meio de comparações internacionais patrocinadas pelo BIPM (Bureau International des Poids et Measures - França). Dentre as comparações internacionais de padronização de radionuclídeos já realizadas, as que tiveram a participação do LMN podem ser destacadas:  $^{134}\text{Cs}$  em 1978,  $^{133}\text{Ba}$  em 1984,  $^{109}\text{Cd}$  em 1986,  $^{125}\text{I}$  em 1989, o  $^{75}\text{Se}$  em 1992 e o  $^{204}\text{Tl}$  em 1997.

A partir da criação do LNMRI (Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes) do IRD (Instituto de Radioproteção e Dosimetria) sediado no Rio de Janeiro, o LMN tem participado em colaboração com este, das comparações internacionais e do SIR (Sistema Internacional de Referência). Isto porque apenas um laboratório de cada país pode participar destas comparações.

No período em que este trabalho foi desenvolvido, o LMN participou em colaboração com o LNMRI; mas com resultados independentes utilizando técnicas diferentes de medida; da comparação internacional experimental, organizada pelo ETL (Electrotechnical Laboratory – Japão) do  $^{192}\text{Ir}$  em 1997/1998, onde os resultados foram enviados ao SIR. E em 1999/2000, da comparação internacional do  $^{152}\text{Eu}$ , organizada pelo BIPM. Estes radionuclídeos já estavam previstos no plano de trabalho desta tese de doutorado para serem padronizados e as comparações internacionais surgiram em um bom momento, pois deste modo pode-se comparar os resultados obtidos neste trabalho com os de outros laboratórios.

### **1.1.1. COMPARAÇÕES INTERNACIONAIS**

As comparações internacionais tem sido organizadas desde 1960 pelo BIPM (Bureau International des Poids et Measures) com o apoio do CCRI (Comité Consultatif des Rayonnements Ionisants, Seção II, Measure des Radionucléides). A primeira comparação foi com  $^{32}\text{P}$  em 1961, seguido pelo  $^{131}\text{I}$ ,  $^{198}\text{Au}$  e  $^{60}\text{Co}$ , em 1961 e 1962, e muitos outros [Schrader, 1997].

Quando uma comparação internacional de medida da atividade é organizada para um dado radionuclídeo, uma solução bruta é cuidadosamente selecionada e examinada para sua conformidade (isto é, concentração da atividade, estabilidade química e impurezas radionuclídicas) pelo BIPM e outros laboratórios participantes. A solução radioativa é então distribuída aos participantes em ampolas seladas do BIPM/NIST (NIST - National Institute of Standards and Technology - U.S.A.) em geometria

padrão com uma massa de aproximadamente 3,6g por amostra. Nos anos presentes, geralmente tem sido organizada uma comparação internacional experimental antes da principal, para descobrir e solucionar quaisquer problemas nas medidas que possam vir a surgir.

Primeiramente, uma medida preliminar da atividade é feita em uma câmara de ionização para a ampola original. Então a padronização é executada por um ou vários métodos diretos, utilizando técnicas recomendadas para preparação e medida das fontes. Um questionário é circulado à todos os participantes da comparação, onde detalhes da técnica utilizada, parâmetros experimentais, possíveis fatores de correção, componentes de incertezas e o valor da concentração da atividade final na data de referência são registrados pelo participante. O formulário preenchido é devolvido ao organizador (BIPM) e os resultados são processados por métodos estatísticos, ilustrados em diagramas, analisados e publicados em relatórios que são distribuídos aos participantes.

O nível de concordância em uma comparação internacional é tipicamente de 2% ( $1\sigma$ ) para um único participante, com desvios máximos de aproximadamente 5% para casos particulares. Na maioria das comparações realizadas desde 1960 o número de participantes, principalmente de laboratórios padrão nacionais, tem sido em média cerca de 20.

Os resultados consistentes em comparações internacionais são a evidência da qualidade do trabalho desenvolvido pelo laboratório nacional participante comparado com os laboratórios internacionais.

### **1.1.1.1. INTERCOMPARAÇÕES E O SISTEMA INTERNACIONAL DE REFERÊNCIA**

O Sistema Internacional de Referência, “Système International de Référence” (SIR), foi criado, em 1976, para complementar e ampliar as comparações internacionais de medida de atividade organizadas pelo BIPM. O crescimento da importância de medidas da atividade precisas nos anos sessenta levou a criação de uma nova seção no BIPM em 1961, a qual tinha, dentre outras obrigações, instruir na execução de medidas de radionuclídeos e intercomparações. Para isso, uma câmara de ionização para medida da atividade foi instalada no BIPM em 1972.

A incumbência do SIR é manter uma grande uniformidade mundial em medidas da atividade, aperfeiçoando as precisões de tais medidas e executar um controle de qualidade em padrões nacionais de atividade. Deste modo é assegurada a investigação de padrões internacionais. Desde sua criação, o SIR tem fornecido serviços valiosos aos laboratórios padrão nacionais que participam deste trabalho, submetendo soluções padrão para comparação.

Para participar do SIR, o laboratório nacional envia uma ampola com a solução de interesse padronizada e esta é medida na câmara de ionização do SIR que fornece um valor para atividade equivalente ( $A_e$ ) do radionuclídeo, relativo a uma fonte de referência específica de Rádio-226 [Schrader, 1997]. O valor medido da  $A_e$ , juntamente com suas incertezas e identificação da amostra, são reunidos e distribuídos anualmente aos participantes. O grande número de radionuclídeos comparados até agora, (cerca de 60), mostram a utilidade das medidas de atividade realizadas a nível internacional.

## **1.2. PROCESSOS NUCLEARES BÁSICOS EM FONTES RADIOATIVAS**

As fontes radioativas são utilizadas, de maneira conveniente, para testar e calibrar detectores e são ferramentas essenciais tanto em laboratórios de física nuclear quanto em laboratórios de física de altas energias.

Um nuclídeo radioativo tende a seu estado fundamental pela desintegração radioativa que ocorre por diferentes processos nucleares e atômicos. Por meio desses processos são emitidos vários tipos de radiações com diferentes características.

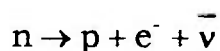
A radiação emitida pode ser eletromagnética ou corpuscular. As radiações eletromagnéticas consistem de raios-X e raios- $\gamma$  (onde a única diferença entre eles é sua origem – Raios-X são originados nas camadas eletrônicas e os Raios- $\gamma$  no núcleo) enquanto as emissões corpusculares incluem partículas -  $\alpha$ , -  $\beta$  (elétrons e pósitrons), elétrons de conversão interna, elétrons Auger, nêutrons, prótons e fragmentos de fissão, entre outros. A origem destas radiações pode ser tanto do núcleo quanto das camadas eletrônicas que o circunda.

Cada tipo de radiação (-  $\alpha$ , -  $\beta$ , -  $\gamma$ , etc.) é caracterizada por um espectro de energia o qual é indicativo do processo nuclear fundamental. A mesma fonte radioativa pode emitir vários tipos diferentes de radiação. Isto pode acontecer pelo fato que os isótopos nucleares em questão sofrem vários modos diferentes de decaimento.

A seguir será apresentado um breve resumo dos principais processos de desintegração radioativa, que foram estudados neste trabalho.

### 1.2.1. DECAIMENTO $\beta$

\**Decaimento  $\beta^-$*  : Neste processo, um nêutron é convertido em um próton, e um elétron negativo  $\beta^-$  e um antineutrino (que tem massa de repouso aproximadamente nula e uma probabilidade extremamente pequena de interação com a matéria) são emitidos do núcleo como resultado do processo [Leo,1994]:

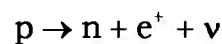


O decaimento aumenta a carga nuclear em uma unidade. A energia liberada na transição  $\beta^-$  é dividida entre as duas partículas ( $\beta^-$  e antineutrino) de modo estatístico, levando a um espectro contínuo de energia que se estende de zero até um valor máximo permitido. Para a maioria das fontes beta, este valor máximo alcança de poucos décimos de keV a poucos MeV.

Algumas fontes  $\beta$  podem também ter mais do que um ramo de decaimento, isto é, podem decair para diferentes estados excitados dos núcleos filhos. Cada ramo constitui um decaimento  $\beta$  separado, com uma energia máxima correspondente à energia total do decaimento menos a energia do estado excitado do núcleo filho e compete com outros ramos. O

espectro  $\beta$  total de tal fonte será então uma superposição de todos os ramos ponderados por suas respectivas probabilidades de decaimento.

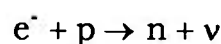
\**Decaimento  $\beta^+$* : Similarmente ao processo anterior, um próton é convertido em um nêutron, e um elétron positivo  $\beta^+$  (pósitron) e um neutrino são emitidos do núcleo como resultado do processo [Leo,1994]:



Este decaimento diminui a carga nuclear de uma unidade. O decaimento  $\beta^+$  compete com processo de captura eletrônica, mas requer uma energia de  $2m_0c^2$  (ou  $2 \times 0,510998902(21)\text{MeV}$  [CODATA,1998]). Semelhantemente ao processo  $\beta^-$ , as partículas  $\beta^+$  emitidas na transição para um nível particular do núcleo filho tem uma distribuição de energia contínua, de zero a energia do decaimento.

### 1.2.1.1. CAPTURA ELETRÔNICA (CE)

Neste processo, um elétron orbital é capturado pelo núcleo levando a conversão de um próton em um nêutron e à emissão de um neutrino, o qual carrega a energia da transição [Leo,1994]:



Este decaimento diminui a carga nuclear de uma unidade. Devido ao fato que somente o neutrino é emitido, a captura eletrônica seria uma reação

quase impossível de se observar, dada à dificuldade de detecção de tal partícula. Entretanto, este processo deixa um “buraco” na camada atômica que é preenchido por outro elétron atômico (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). No processo de desexcitação, raios-X característicos ou elétrons Auger são emitidos.

### **1.2.2. RADIAÇÃO GAMA**

Tal como a estrutura de camadas eletrônicas do átomo, o núcleo também é caracterizado por níveis de energia discreta. As transições entre estes níveis podem ser feitas pela emissão de radiação eletromagnética com energia igual à diferença de energias entre os níveis participantes da transição. As energias destes fótons, que variam de poucas centenas de keV até poucos MeV, caracterizam a alta energia de ligação do núcleo. Estes fótons de alta energia são denominados raios- $\gamma$  e, como ocorre nos átomos, apresentam linhas espectrais características da emissão do núcleo.

No processo de desexcitação nuclear, a emissão gama pode ser relativamente inibida, e a alternativa da conversão interna pode tornar-se significativa. O que ocorre então é a transferência da energia excedente para um elétron da camada atômica denominado elétron de conversão.

A intensidade da transição  $\gamma$  é dada por [Lagoutine,1984]:

$$T_{\gamma} = I_{\gamma} + I_{ec} \quad (1.1)$$

onde  $I_{\gamma}$  e  $I_{ec}$  são as intensidades da emissão  $\gamma$  e da emissão do elétron de conversão, respectivamente.

\* *Emissão  $\gamma$*  : Pela lei de conservação de energia, tem-se que a energia do raio- $\gamma$  emitido é [Lagoutine, 1984]:

$$E_{\gamma} = (E_i - E_f) - E_r \quad (1.2)$$

onde  $E_i - E_f$  é a diferença de energia entre os níveis iniciais e finais da transição  $\gamma$ , e  $E_r$  é a energia de recuo do estado final do núcleo, dado por [Lagoutine, 1984]:

$$E_r = \frac{(E_{\gamma})^2}{2 M_N c^2} \quad (1.3)$$

onde:

$M_N$  é a massa do núcleo de recuo  
 $c$  é a velocidade da luz.

A energia de recuo é desprezível, exceto para altas energias  $\gamma$  e baixos números atômicos.

\* *Conversão Interna*: Neste processo a energia de excitação nuclear  $E_{ex}$  é transferida diretamente para um dos elétrons orbitais do átomo, o qual, em consequência é ejetado deste. Este elétron aparece então com uma energia dada por [Lagoutine, 1984]:

$$E_{ecX} = E_{ex} - E_X \quad (1.4)$$

onde  $E_X$  é a energia de ligação do elétron na camada X ( $X = K, L, M, \dots$ ).

Ao contrário do decaimento  $\beta$ , os elétrons de conversão interna são monoenergéticos tendo aproximadamente a mesma energia dos raios- $\gamma$  com os quais competem, isto é, poucas dezenas de keV a poucos MeV.

Para uma dada transição, a razão da probabilidade para emissão do elétron de conversão da camada K e emissão do raio- $\gamma$  é chamada de coeficiente de conversão interna e é definido por [Lagoutine, 1984]:

$$\alpha_K = \frac{I_{ecK}}{I_\gamma} \quad (1.5)$$

O coeficiente de conversão interna total é igual a soma dos coeficientes das várias camadas ou subcamadas atômicas, ou seja,

$$\alpha_T = \alpha_K + \alpha_L + \alpha_M + \dots = \frac{I_{ec}}{I_\gamma} \quad (1.6)$$

onde  $I_{ec}$  é a intensidade total de emissão dos elétrons de conversão para a transição em questão.

Com isso, tem-se as seguintes relações [Lagoutine, 1984]:

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

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

Encontra-se com freqüência na literatura os valores dos coeficientes de conversão interna relativos, representados simbolicamente por K/L/M que são definidos por [Lagoutine, 1984]:

$$K/L = \frac{I_{eck}}{I_{ecl}} = \frac{\alpha_K}{\alpha_L} \quad (1.9), K/LM = \frac{I_{eck}}{I_{ecl} + I_{ecm}} = \frac{\alpha_K}{\alpha_L + \alpha_M}, \dots \quad (1.10)$$

As fontes de conversão interna são uma das poucas fontes nucleares de elétrons monoenergéticos e são, deste modo, muito utilizadas com a finalidade de calibração de detectores.

### 1.2.3. REARRANJO ELETRÔNICO

Os processos de captura eletrônica e conversão interna levam o átomo a um estado excitado que provocam vacâncias na nuvem eletrônica, com isso, a tendência natural é haver um rearranjo dos elétrons nas camadas com a intenção de preencher essas vacâncias. Este preenchimento é acompanhado pela emissão de raios-X ou de elétrons Auger, criando novas vacâncias nas camadas menos ligadas. A vacância inicial é transferida por cascata para as camadas periféricas. A energia liberada corresponde à energia de ligação do elétron na camada na qual a vacância inicial foi produzida.

### **1.2.3.1. ELÉTRONS AUGER**

A energia de excitação do átomo pode ser transferida diretamente para um dos elétrons mais externos, causando sua ejeção do átomo. Este elétron é o chamado elétron Auger e tem uma energia dada pela diferença entre a energia de excitação atômica de origem e a energia de ligação da camada da qual o elétron foi ejetado [Lagoutine, 1984].

Os elétrons Auger produzem um espectro de energia discreto, com diferentes grupos correspondentes aos diferentes estados iniciais e finais. Sua energia é relativamente baixa comparada com a das partículas  $\beta$  ou dos elétrons de conversão, particularmente porque a emissão dos elétrons Auger são favoráveis somente à elementos de  $Z$  baixo ( $< 45$ ), por apresentarem baixas energias de ligação dos elétrons [Knoll, 1989]. Deste modo, estes elétrons são muito suscetíveis à auto-absorção e com isso se tornam difíceis de detectar.

### **1.2.3.2. RAIOS-X CARACTERÍSTICOS**

Se os elétrons orbitais em um átomo são arrancados de sua configuração normal por algum processo de excitação, o átomo pode existir em um estado excitado por um curto período de tempo. Há uma tendência natural para os elétrons se rearranjarem de maneira que o átomo retorne ao seu estado de menor energia ou fundamental em um tempo de

nanossegundos ou menor. A energia liberada na transição do estado excitado para o fundamental é emitida na forma de um fóton de raio-X característico, cuja energia é dada pela diferença de energias entre os estados inicial e final.

### **1.3. MÉTODO DE MEDIDA PRIMÁRIA DA ATIVIDADE**

Enquanto a medida da atividade relativa, hoje em dia, não apresenta maiores problemas, a medida direta ou “primária”, altamente precisa da atividade é muito complexa e necessita de equipamentos sofisticados e pessoal especializado e experiente.

Os métodos de medida direta ou “primária” são aqueles onde o resultado final depende apenas da própria medida, sem a necessidade do conhecimento de nenhum padrão absoluto, a não ser o tempo.

As técnicas disponíveis para a medida primária da atividade podem ser divididas basicamente em duas amplas categorias:

- os métodos diretos, onde as radiações são detectadas sob condições bem definidas, tais como geometria, eficiência, espalhamento etc.
- os métodos de coincidência, onde pela medida adequada das taxas de contagens, a taxa de desintegração pode ser determinada sem o conhecimento prévio dos parâmetros do detector (ângulo sólido, eficiência etc.).

O método de coincidência [Baerg, 1966, Baerg, 1967, Campion, 1959] é o mais utilizado na padronização de radionuclídeos pois não requer informações adicionais, isto é, não é necessário o conhecimento prévio dos parâmetros do esquema de desintegração, e permite medidas com boa exatidão. No entanto, deve ser ressaltado que a escolha do método de medida depende principalmente do esquema de desintegração do radionuclídeo a ser padronizado.

### **1.3.1. FORMALISMO GERAL DO MÉTODO DE COINCIDÊNCIA**

O método de coincidência é aplicável, principalmente, a radionuclídeos que desintegram pela emissão de duas ou mais radiações  $\alpha$ - $\gamma$ ,  $\beta$ - $\gamma$ , X- $\gamma$ , e X emitidas simultaneamente, ou que podem ser consideradas simultâneas, se o período de transição ao nível fundamental, for desprezível comparado com os tempos de resolução eletrônicos.

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

Considerando-se uma fonte puntiforme de um emissor genérico, com esquema de decaimento simples, onde a desintegração se dá pela emissão de duas partículas simultâneas, 1 e 2, pode-se escrever as equações para este método como:

$$N_1 = N_0 \epsilon_1 \quad (1.11)$$

$$N_2 = N_0 \epsilon_2 \quad (1.12)$$

$$N_c = N_0 \epsilon_1 \epsilon_2 \quad (1.13)$$

Sendo  $N_1$ ,  $N_2$  e  $N_c$  as taxas de contagens, corrigidas para radiação de fundo, tempo morto e decaimento, das vias 1, 2 e coincidência, respectivamente e  $\epsilon_1$  e  $\epsilon_2$  são as eficiências do detector 1 e 2.

Multiplicando-se as equações (1.11) e (1.12) e dividindo pela (1.13), tem-se:

$$\frac{N_1 N_2}{N_c} = N_0 \quad (1.14)$$

De onde se obtém a taxa de desintegração ( $N_0$ ) em função apenas das contagens observadas.

### **1.3.2. TÉCNICA DE EXTRAPOLAÇÃO LINEAR DA EFICIÊNCIA**

As considerações apresentadas no item anterior correspondem às condições ideais e raramente alcançadas. Na prática, os nuclídeos apresentam esquemas de desintegração complexos, de modo que uma série de correções deve ser aplicada, como por exemplo, a sensibilidade dos detectores a outras radiações que não sejam desejadas, uso de fontes não pontiformes, tempos de resposta diferentes para cada detector. Portanto, para um caso prático em que o radionuclídeo decai por  $\beta^-$ - $\gamma$  e apresenta um

esquema de desintegração complexo, com  $n$  ramos beta, as equações (1.11), (1.12) e (1.13) podem ser reescritas como:

$$N_{\beta} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[ \epsilon_{\beta r} + (1 - \epsilon_{\beta r}) \left( \frac{\alpha_r \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta r}}{1 + \alpha_r} \right) \right] \quad (1.15)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \epsilon'_{\gamma r} \quad (1.16)$$

$$N_c = N_0 \sum_{r=1}^n a_r [\epsilon_{\beta r} \epsilon'_{\gamma r} + (1 - \epsilon_{\beta r}) \epsilon_{c r}] \quad (1.17)$$

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

onde:

- $a_r$      abundância do  $r$ -ésimo grupo beta,
- $\epsilon_{\beta r}$      eficiência para o  $r$ -ésimo grupo beta,
- $\epsilon_{\gamma r}$      eficiência para os gamas correspondentes à janela selecionada para o  $r$ -ésimo grupo beta,
- $\alpha_r$      coeficiente de conversão interna total para o  $r$ -ésimo grupo beta.
- $\epsilon_{c r}$      eficiência para contagens de coincidência gama-gama,
- $\epsilon_{ec}$      eficiência do detector beta para elétrons de conversão,
- $\epsilon_{\beta r}$      eficiência do detector beta para a radiação gama.

Com isso, a equação (1.14) passa a ser representada por:

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \frac{\sum_{r=1}^n a_r \left[ \epsilon_{\beta_r} + (1 - \epsilon_{\beta_r}) \left( \frac{\alpha_r \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta_r}}{1 + \alpha_r} \right) \right] \left[ \sum_{r=1}^n a_r \epsilon_{\gamma_r}' \right]}{\sum_{r=1}^n a_r \left[ \epsilon_{\beta_r} \epsilon_{\gamma_r}' + (1 - \epsilon_{\beta_r}) \epsilon_{c_r} \right]} \quad (1.18)$$

Analisando a equação (1.18) conclui-se que para a determinação de  $N_0$  é necessário o conhecimento dos parâmetros do esquema de desintegração e as probabilidades de detecção. Para solucionar este problema e manter a principal característica do método que consiste na sua independência do conhecimento das eficiências de detecção e dos parâmetros do esquema de desintegração, foi desenvolvida por Baerg e Campion a "Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência". Esta técnica já foi apresentada, discutida e comentada exaustivamente por vários autores [Baerg,1966, Campion,1959, Houthermans,1962, Moura,1969, Baerg,1973, Koskinas,1988].

Segundo esta técnica a determinação de  $N_0$  (atividade) só será possível se pudermos estabelecer uma relação funcional entre  $N_{\beta}$  e o parâmetro de eficiência  $N_c/N_{\gamma}$  tal que  $N_{\beta} \rightarrow N_0$  quando  $N_c/N_{\gamma} \rightarrow 1$ .

Esta condição ocorre quando a  $\epsilon_{\beta_r}$  (eficiência dos vários ramos beta) puder ser representada por uma função de uma única eficiência  $\epsilon_{\beta_s}$ , tal que

$\epsilon_{\beta_r} = f_r(\epsilon_{\beta_s})$  e que esta relação se conserve para o caso em que a eficiência tenha valor um e seja tal que:

$$f_r \rightarrow 1 \text{ quando } \epsilon_{\beta_s} \rightarrow 1.$$

Isto implica que os valores  $\epsilon_{ec}$ ,  $\epsilon_{\beta_r}$  e  $\epsilon_{\gamma}$  sejam constantes ou nulos.

Das equações (1.16) e (1.17) obtém-se que:

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = \frac{\sum_{r=1}^n a_r \epsilon_{\gamma_r}' \left[ \epsilon_{\beta_r} + (1 - \epsilon_{\beta_r}) \epsilon_{c_r} / \epsilon_{\gamma_r}' \right]}{\left[ \sum_{r=1}^n a_r \epsilon_{\gamma_r}' \right]} \quad (1.19)$$

onde  $\frac{a_r \epsilon_{\gamma_r}'}{\sum_{r=1}^n a_r \epsilon_{\gamma_r}'} = k_r$

sendo  $k_r$  constante para uma dada eficiência beta ( $r$ -ésimo ramo beta) e  $\sum k_r = 1$ .

Assim:

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = 1 - \sum k_r' [1 - f_r(\epsilon_{\beta_s})] \quad (1.20)$$

com  $k_r' = k_r(1 - \epsilon_{c_r} / \epsilon_{\gamma_r}')$  e  $N_c / N_\gamma \rightarrow 1$  quando  $\epsilon_{\beta_s} \rightarrow 1$ .

Portanto  $N_\beta$  é simplesmente uma função  $F$  do parâmetro de eficiência  $N_c / N_\gamma$  tal que

$$N_\beta = N_0 F \left( \frac{N_c}{N_\gamma} \right) \quad (1.21)$$

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

Esta é a fórmula de coincidência generalizada [Baerg, 1966].

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

A fórmula de coincidência generalizada pode ser escrita de forma mais conveniente para uma solução gráfica ou analítica [Baerg,1973, Houthermans,1962]. Usando-se a razão  $N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$  como variável dependente e o parâmetro de ineficiência  $[1-(N_c/N_{\gamma})] / (N_c/N_{\gamma})$  como variável independente, pode-se obter uma função de eficiência, G, cuja variação é mais lenta do que a da função F referida na equação (1.21).

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

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} = N_0 G \left[ \frac{1 - (N_c/N_{\gamma})}{(N_c/N_{\gamma})} \right] \quad (1.22)$$

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

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

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left[ 1 + K_{\beta} \left( \frac{1 - (N_c/N_{\gamma})}{(N_c/N_{\gamma})} \right) \right] \quad (1.23)$$

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  $[1-(N_c/N_\gamma)] / (N_c/N_\gamma)$ , obtém-se um polinômio (geralmente uma reta) cujo coeficiente angular fornecerá o valor de  $N_0K_e$  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,  $K_e$ , 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, discriminação eletrônica, 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  $N_\beta N_\gamma / N_c$  versus  $(1 - N_c / N_\gamma) / (N_c / N_\gamma)$ , de modo a determinar-se a função  $G$  que relaciona  $N_\beta N_\gamma / N_c$  com  $N_0$ .

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

### **1.3.3. TÉCNICA DE EXTRAPOLAÇÃO BI-PARAMÉTRICA**

Na técnica de extrapolação da eficiência, a taxa de contagem da via  $\beta$  é freqüentemente expressa como uma função da eficiência observada para a detecção destas partículas, e a taxa de desintegração absoluta é determinada pela extrapolação da eficiência  $\beta$  a 100%. No entanto, no caso de

radionuclídeos com dupla emissão, quando esta técnica é aplicada, obtém-se somente uma parte da atividade, referente somente a um ramo do decaimento (ramo  $\beta$ , por exemplo). Na medida de um nuclídeo genérico qualquer (X); que desintegra com probabilidade **a** por  $\beta^-$  e com probabilidade **b** por captura eletrônica, se a eficiência de detecção do ramo  $\beta^-$  tende a 1 (100%), obtém-se apenas o valor de  **$N_{0a}$**  e não o valor da atividade total  **$N_0$** . Se somente o ramo de captura eletrônica for estudado, obtém-se apenas o valor de  **$N_{0b}$** , de modo que para a determinação de  **$N_0$**  (taxa de desintegração ou atividade da fonte) torna-se necessário à utilização de dois sistemas de detecção, de modo que a extrapolação da eficiência ocorra para os dois ramos de decaimento. Um método alternativo para os casos onde a utilização de um segundo sistema de coincidência é impossibilitada, é a técnica de extrapolação bi-paramétrica da eficiência, onde a extrapolação da eficiência ocorre para os dois ramos de decaimento simultaneamente.

O método de extrapolação bi-paramétrica (ou bi-dimensional) já foi aplicado na padronização de radionuclídeos que decaem pelo processo de captura eletrônica, como o  $^{57}\text{Co}$  por Smith e Stuart [Smith et al.,1975], o  $^{133}\text{Ba}$  por Miyahara e Mori [Miyahara et al.,1992] e o  $^{201}\text{Tl}$  por Funck [Funck,1987], e pelo processo de decaimento  $\beta^-$  para o  $^{134}\text{Cs}$  [Smith et al.,1975]. Para estes radionuclídeos, por não apresentarem dupla emissão, a extrapolação bi-paramétrica é um procedimento eficaz, mas não essencial, pois vários outros autores padronizaram alguns destes radionuclídeos empregando a extrapolação linear da eficiência com apenas um parâmetro e obtiveram bons resultados [Ratel,1992; Rytz,1982].

No caso de radionuclídeos que decaem por emissão  $\beta^- - \beta^+$ /captura eletrônica, alguns autores [Miyahara,1990;Woods,2000] utilizam a extrapolação bi-paramétrica, no entanto cada autor utiliza parâmetros de

análise específicos. A extrapolação bi-paramétrica proposta neste trabalho será apresentada no item 2.2.

#### **1.4. MEDIDA DA PROBABILIDADE DE EMISSÃO GAMA POR DECAIMENTO**

A probabilidade de emissão gama por decaimento (ou intensidade gama absoluta) pode ser determinada a partir de um espectro da radiação gama detectada, onde o pico de absorção total fornece informações essenciais do espectro por caracterizar o raio gama emitido. Sua abscissa representa a energia dos fótons e sua área é proporcional à taxa de emissão fotônica.

Para a determinação da probabilidade de emissão gama por decaimento existe dois métodos distintos: - um que leva em consideração o esquema de desintegração, com todas as probabilidades das transições dos níveis excitados  $\beta$  e  $\gamma$  e outro considerando as medidas em um detector calibrado por fontes padrão e a atividade da fonte é obtida por medidas feitas em sistemas primários.

Neste trabalho utilizou-se o segundo método, onde em uma análise quantitativa da radiação gama, os parâmetros necessários que devem ser considerados são: a eficiência do pico de absorção total e a atividade do emissor gama. Com isso a probabilidade de emissão gama por decaimento pode ser determinada por meio da razão [Morel, 1975]:

$$I_{\gamma}(E) = \frac{S(E)}{A \epsilon_{\gamma}(E)} \quad (1.24)$$

onde:

- S área sob o pico de absorção total para a energia gama considerada, corrigida para decaimento, tempo morto, atenuação e geometria,
- A atividade da fonte obtida pelo método de medida primária ( $N_0$ ),
- $\epsilon_{\gamma}$  eficiência de detecção determinada por meio da curva de calibração em eficiência para o espectrômetro utilizado .

## 1.5. MÉTODO DE ANÁLISE DE COVARIÂNCIA

A análise de incertezas associadas às medidas de padrões tem um papel importante, pois a utilização destes, requer uma medida precisa com uma incerteza associada menor possível pois seu valor influi diretamente no resultado final. Por este motivo, um cuidado especial no tratamento das incertezas experimentais é fundamental.

Um importante passo a ser considerado em qualquer experimento hoje em dia, é o desenvolvimento de uma matriz de covariância para o ajuste dos parâmetros experimentais que são deduzidos em medidas no laboratório. A metodologia de matriz de covariância é uma forma bem completa de cálculo e apresentação das incertezas em dados experimentais, pois além da incerteza

total, esta fornece informações sobre a existência de um nível de correlação entre as incertezas de todos os parâmetros envolvidos no cálculo.

Essas informações contidas nos erros parciais envolvidos na medida e suas correlações fornecem a base de construção da matriz de covariância, a qual representa completamente as incertezas nas medidas.

O método de derivação de uma matriz de covariância ( $\bar{V}_x$ ) para quaisquer dados experimentais tem sido discutido em detalhes por vários autores [Geraldo,1989, Geraldo,1990, Mannhart, 1981, Smith,1981].

Em linhas gerais, supondo a existência de L fontes distintas de erros que determinam a incerteza total de um grupo de n dados  $\bar{X} = (x_1, x_2, \dots, x_n)$ . Seja  $E_{il}$  a incerteza particular em  $x_i$  correspondente ao atributo l e  $\bar{C}_l$  a matriz de correlação correspondente a essas incertezas parciais onde  $C_{ijl}$  é um elemento típico, sendo a mesma definição válida para todos os componentes de  $\bar{X}$ . O coeficiente  $C_{lij}$  determina o grau de correlação entre as incertezas  $E_{xi}$  e  $E_{xj}$  devidos ao efeito l e este é geralmente definido como micro-correlação. Os possíveis valores para os elementos  $C_{lij}$  são limitados pelo intervalo  $[-1, 1]$ , podendo ter diferentes significados, de acordo com o valor assumido para  $C_{lij}$ :  $C_{lij} = 0$ , nenhuma correlação;  $C_{lij} = +1$ , correlação completa;  $C_{lij} = -1$ , anticorrelação completa e, para os casos intermediários de correlações parciais ou anticorrelações parciais dependendo se  $0 < C_{lij} < +1$  ou  $-1 < C_{lij} < 0$ , respectivamente.

A matriz de correlação total que representa esse grupo de dados é formada pelos elementos  $V_{ij}$  calculada pela expressão [Geraldo,1989]:

$$V_{xij} = \sum_{l=1}^L E_{il} E_{jl} C_{ijl} \quad (1.25)$$

A informação final para o vetor incerteza (erro)  $\bar{E}_x$  e para a matriz de correlação total  $\bar{C}_x$  pode ser obtida pela seguinte relação:

$$E_{xi} = (V_{xii})^{1/2} \text{ e } C_{xij} = V_{xij} / (E_{xi} E_{xj}) \quad (1.26)$$

Um ponto a ser lembrado é que  $\bar{V}_x$  e  $\bar{C}_x$  são simétricos, isto é:  $V_{xij} = V_{xji}$  e  $C_{xij} = C_{xji}$ .

## **2. PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS NOS SISTEMAS DE COINCIDÊNCIAS**

Serão apresentados a seguir as considerações teóricas e o formalismo do método de coincidência desenvolvido especificamente para cada radionuclídeo padronizado neste trabalho,  $^{192}\text{Ir}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  e  $^{186}\text{Re}$ , considerando-se seus esquemas de decaimento e os sistemas utilizados.

Os trabalhos encontrados na literatura, na área de metrologia nuclear apresentam diversos métodos de medidas da atividade. Cada radionuclídeo exige uma padronização específica, que leva em conta seu esquema de desintegração.

Um resumo dos métodos utilizados, resultados obtidos e tratamento das incertezas associadas, encontrados nos trabalhos publicados por outros autores na literatura, para cada radionuclídeo estudado neste trabalho, também será apresentado.

### **2.1. RADIONUCLÍDEO $^{192}\text{Ir}$**

#### **2.1.1. REVISÃO DA LITERATURA**

Em 1992, Reher (CBNM - Central Bureau for Nuclear Measurements - Bélgica), Woods (NPL - National Physical Laboratory - Inglaterra) *et al.*, [Reher,1992], participaram de uma intercomparação patrocinada pelo

EUROMET (projeto n° 219) em que duas soluções de  $^{192}\text{Ir}$  foram padronizadas utilizando três técnicas diferentes:

1. contagem coincidente  $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma\text{NaI}(\text{Tl})$  (NPL e CBNM)
2. espectrometria com um detector  $4\pi\text{CsI}(\text{Tl})$  (CBNM)
3. contagem integral  $4\pi-\gamma$  com um detector  $\text{NaI}(\text{Tl})$  tipo poço (CBNM).

No sistema de coincidência convencional, eles ajustaram uma função linear, desde que a hipótese de interdependência das ineficiências seja válida:  $(1 - \epsilon_{\text{EC}}) = k(1 - \epsilon_{\beta})$ . Esta exigência somente pode ser cumprida para um pequeno intervalo de  $\epsilon_{\text{EC}}$  ou  $\epsilon_{\beta}$ .

(CBNM) - Duas janelas de discriminação gama integral foram utilizadas: janela  $\gamma_1$  em 240 keV (para cortar o raio- $\gamma$  de 205 keV proveniente do ramo de captura eletrônica) e janela  $\gamma_2$  em 400 keV. Eles perceberam que, quando o nível de discriminação gama era aumentado, obtinham valores mais altos de  $N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$  e uma inclinação mais acentuada para as curvas de extrapolação linear da eficiência.

(NPL) - (Caso 1) Também utilizou duas janelas de discriminação gama: janela  $\gamma_1$  ao redor do pico de 300 keV e janela  $\gamma_2$  em 470 keV. Os dados ajustados sugeriram uma elevação na curva de extrapolação para as eficiências mais altas.

(Caso 2) Duas janelas de discriminação gama foram ajustadas: janela  $\gamma_1$  no duplete 201 + 205 keV e janela  $\gamma_2$  em 300 keV.

Os resultados obtidos por ambos laboratórios indicaram que investigações teóricas e experimentais adicionais serão necessárias para uma melhor compreensão dos problemas das medidas de coincidência do  $^{192}\text{Ir}$ .

Em 1994, Miyahara, Matumoto, Mori e Takeuchi[Miyahara,1994], determinaram as probabilidades de emissão da radiação  $\gamma$  para o  $^{192}\text{Ir}$ , utilizando um sistema de coincidência  $4\pi\beta(\text{PPC})-\gamma\text{HPGe}$ . A taxa de desintegração foi determinada utilizando discriminação eletrônica, e as janelas gama selecionadas foram: 296, 308, 316 e 468 keV, pois possuem altas probabilidades de emissão dos raios- $\gamma$  e pequenos desvios padrões. Entretanto, os elétrons de baixa energia, emitidos no decaimento por captura eletrônica, resultam em uma pequena região de extrapolação aceitável. Com isso, somente os valores que apresentam altas eficiências de detecção puderam ser utilizados na determinação da taxa de desintegração com precisão.

Nenhum comentário é feito sobre correções ou medidas do ramo de desintegração por captura eletrônica, com isso conclui-se que suas medidas correspondem apenas à contribuição do ramo  $\beta$ .

Em 1996, Grigorescu *et al.*, [Grigorescu,1996], mediram alguns radionuclídeos que decaem pela dupla emissão  $\beta^- - \beta^+$ /captura eletrônica utilizando o método de coincidência  $4\pi(\text{PC})-\gamma$ . Um dos radionuclídeos estudados foi o  $^{192}\text{Ir}$ , utilizando uma janela de discriminação gama de 250-670 keV, e concluíram que a curva de extrapolação linear da eficiência era uma razão não-linear, e para limites mais altos aumentava a curvatura e a inclinação  $(1 - K)$ . Compararam os resultados obtidos com os do Reher[Reher,1992] e não conseguiram verificar a condição  $(1 - \epsilon_{\text{EC}}) = k(1 - \epsilon_{\beta})$ .

Em 1998, Hino e Ohgaki (ETL - Electrotechnical Laboratory - Japão)[Hino,1998] publicaram os resultados obtidos em uma comparação experimental, organizada pelo BIPM, em 1996 para o  $^{192}\text{Ir}$ . A atividade absoluta foi medida pelo método de coincidência  $4\pi\beta(\text{PPC})-\gamma\text{Ge}$ . Várias outras técnicas foram também utilizadas para confirmar os resultados:

1. Método de coincidência  $4\pi\beta(\text{PPC})-\gamma\text{NaI(Tl)}$ . Onde mediram várias janelas gama para obter a curva de extrapolação.
2. Método de coincidência  $4\pi\beta(\text{PPC})-\gamma\text{Ge}$ . Onde mediram várias linhas gama provenientes dos dois ramos de desintegração  $\beta$  e C.E. (captura eletrônica). Os resultados obtidos pelos dois sistemas foram comparados e algumas discrepâncias entre as janelas selecionadas foram obtidas.
3. Método de coincidência espectroscópico  $4\pi\beta-\gamma$ . Com este método obtiveram uma estimativa direta das eficiências  $\beta$  para cada ramo  $\beta$ :

$$\epsilon_{\beta i} = A_{Ci}/A_{Si} = 1 - A_{ai}/A_{Si}$$

e a atividade pela equação:

$$n_o = n_{\beta} / \sum P_i \epsilon_{\beta i}$$

onde:  $\epsilon_{\beta i}$  é a eficiência  $\beta$  para o  $i$ -ésimo ramo com probabilidade  $P_i$  e  $A_a$ ,  $A_c$  e  $A_s$  são as áreas sob os picos do espectro de anti-coincidência, coincidência e direto, respectivamente. Fez várias medidas, variando a pressão do gás, o tipo de gás utilizado e os absorvedores.

4. Método de contagem  $4\pi-\gamma$ . Utilizaram um detector  $\text{NaI(Tl)}$  largo tipo poço ( $\phi = 140$  mm, altura = 140 mm,  $\phi_{\text{interno}} = 30$  mm e profundidade = 65 mm).

Os resultados apresentados são uma comparação dos vários métodos utilizados e obtiveram concordância razoável. A obtenção da curva de extrapolação pelo método convencional  $4\pi\beta-\gamma\text{NaI(Tl)}$  foi muito complicada, e os resultados tiveram uma dispersão de cerca de  $\pm 0,7\%$ . O valor médio da atividade obtido pelas medidas foi um pouco menor que para os outros métodos.

Os resultados da comparação experimental, apresentados pelo BIPM [Ratel,1998], mostraram uma dispersão um pouco alargada em três grupos de resultados. Os resultados obtidos pelo ETL se apresentaram no grupo de valores mais altos. O laboratório não sabe esclarecer porque tais diferenças existem e sugerem que uma comparação experimental adicional poderia ser planejada.

Em 1998, Iwahara, Delgado e Silva (LNMRI – Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes – IRD – RJ/Brasil)[Iwahara,1998], publicaram um trabalho apresentado em Congresso Internacional (IRPA/1998), com os resultados obtidos em uma comparação internacional em pequena escala, organizada pelo ETL (Japão) em 1997, onde estes resultados foram enviados ao SIR (Sistema Internacional de Referência). Utilizaram o método de coincidência  $4\pi(\text{PC})\beta\text{-}\gamma\text{NaI}(\text{TI})$ , e métodos indiretos para checar os resultados tais como: um espectrômetro HPGe e uma câmara de ionização  $4\pi\text{-}\gamma$ . Obtiveram uma pequena região de linearidade para a eficiência  $\beta$  e a detecção do pico de 205 keV, proveniente do processo de captura eletrônica, foi evitada. Três janelas de discriminação gama (260, 420 e 540 keV) foram feitas para obter a curva de extrapolação linear da eficiência.

As medidas do espectrômetro HPGe e da câmara de ionização apresentaram resultados um pouco maiores daqueles obtidos pelo método de coincidência, e o motivo pode ser o esquema de decaimento complexo com muitos raios-X característicos abaixo de 100 keV onde a eficiência neste alcance de energia é determinada como um valor médio.

Nenhuma correção referente à contribuição do ramo de captura eletrônica foi citada.

Como pôde ser observado nos artigos estudados, não houve concordância entre os vários métodos empregados, apesar de alguns autores apresentarem resultados com pequenas incertezas. O estudo do

decaimento do  $^{192}\text{Ir}$  é muito complexo e apresenta muitos problemas em sua padronização, tanto que este radionuclídeo foi alvo de duas comparações internacionais experimentais e de uma comparação internacional em pequena escala patrocinada pelo SIR. Ainda aguarda-se a Comparação Internacional principal deste radionuclídeo.

### **2.1.2. PADRONIZAÇÃO DO $^{192}\text{Ir}$**

O  $^{192}\text{Ir}$  é utilizado em gamagrafia industrial para análise estrutural de materiais e na área de medicina nuclear em braquiterapia, onde fontes são preparadas com finos fios de irídio e aplicadas no tratamento de câncer, como por exemplo, o câncer de mama e de cervical [Schaeken,1992;Woods,1992]. Para uso em clínicas de medicina nuclear (ou hospitais) o conhecimento com boa exatidão da taxa de kerma no ar ou da atividade destas fontes é de grande interesse, pois proporciona um máximo de benefício do tratamento.

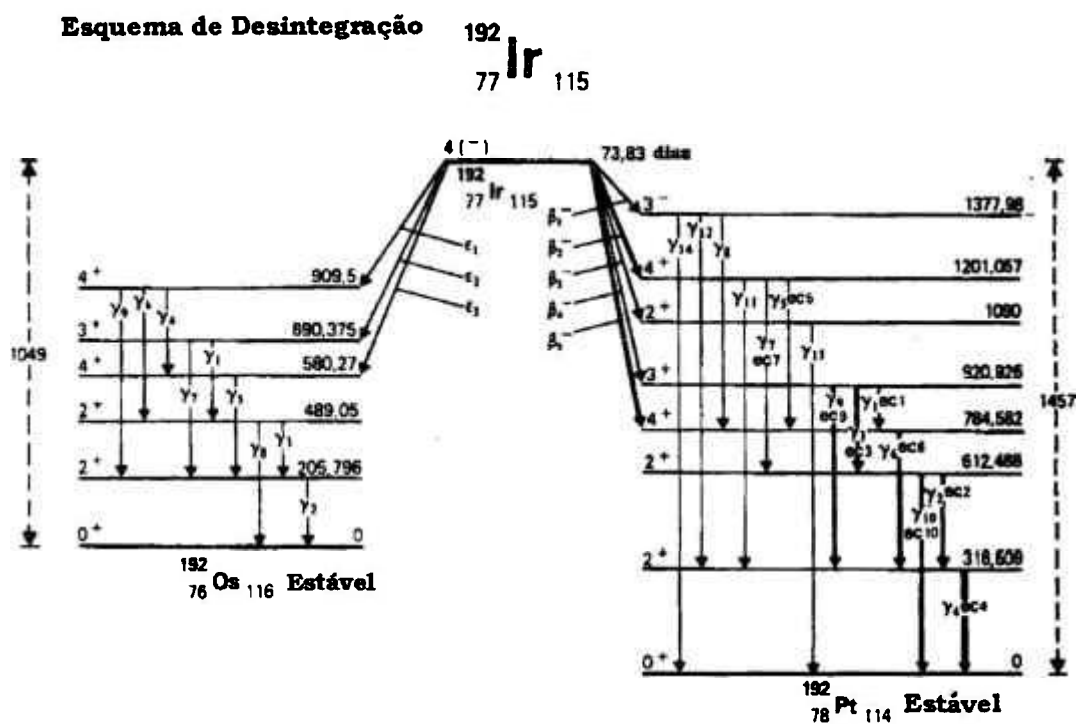
Esta necessidade despertou o interesse da comunidade metrológica, para o estudo da padronização deste radionuclídeo [Reher et al.,1992; Grigorescu et al.,1996], tendo sido objeto de uma comparação internacional experimental (SIR – Internacional Reference System) organizada pelo Bureau International des Poids et Mesures(BIPM, França), em 1996, reunindo 10 laboratórios. As discrepâncias totais encontradas foram da ordem de 2,5% considerada excessiva pelo BIPM [BIPM,1998].

Em vista deste resultado o Electrotechnical Laboratory (ETL, Japão) promoveu uma outra comparação internacional em menor escala (com a participação de 6 laboratórios). O LMN (Laboratório de Metrologia Nuclear, IPEN/SP) recebeu por intermédio do LNMRI (Laboratório Nacional de

Metrologia das Radiações Ionizantes, IRD/RJ) uma amostra desta solução em estudo, o que permitiu a comparação dos nossos resultados com aqueles apresentados pelo BIPM e LNMRI.

### **2.1.3. ESQUEMA DE DECAIMENTO**

O  $^{192}\text{Ir}$  desintegra com uma meia-vida de  $(73,831 \pm 0,008)\text{d}$ , com  $(95,24 \pm 0,04)\%$  de probabilidade por emissão  $\beta^-$  populando os níveis excitados do  $^{192}\text{Pt}$  e com  $(4,76 \pm 0,04)\%$  de probabilidade por processo de captura eletrônica populando os níveis excitados do  $^{192}\text{Os}$  [Firestone,1996]. O esquema de decaimento é mostrado na Figura 2.1.



**Figura 2.1:** Esquema de desintegração do  $^{192}\text{Ir}$  (energias em keV) [Lagoutine et al., 1984].

Nas tabelas 2.1 e 2.2 são apresentadas as energias e as probabilidades de emissão mais intensas dos vários tipos de radiações emitidas.

**Tabela 2.1** [Lagoutine,1984] : Tipos de radiação, energia e intensidade para os processos de decaimento por  $\beta^-$  ( $^{192}\text{Pt}$ ) e CE ( $^{192}\text{Os}$ ).

<b>TIPO DE RADIAÇÃO</b>	<b>ENERGIA (keV)</b>	<b>INTENSIDADE ABSOLUTA (%)</b>
<i>Elétrons Auger</i>		
$e_{AL}$	4,8 – 13,8	11,4(6)
$e_{AK}$ (Os)	47,72 – 78,39	0,17(8)
$e_{AK}$ (Pt)	50,38 – 78,39	0,36(14)
<i>Conversão Interna (&gt;1%)</i>		
$e_{c2K}$ (Pt)	217,563(1)	1,92 (9)
$e_{c3K}$ (Pt)	230,0621(1)	1,88(13)
$e_{c4K}$ (Pt)	238,113(1)	4,50(15)
$e_{c4LM}$ (Pt)	302,62 – 316,50	2,41(5)
$e_{c6K}$ (Pt)	389,677(1)	1,02(3)
<i>Raio - X</i>		
$X_{L\text{ Total}}$	7,82 – 13,82	5,4(6)
$X_{K\text{ Total}}$	61,487 – 78,341	13,6(3)
$\beta^-$		
$\beta^-_1$ máx	79(4)	0,094(4)
$\beta^-_2$ máx	256(4)	
méd	71,2(12)	5,55(4)
$\beta^-_3$ máx	367(4)	0,0022(4)
$\beta^-_4$ máx	536(4)	
méd	161,6(12)	41,3(4)
$\beta^-_5$ máx	672(4)	
méd	209,0(13)	48,0(4)
<i>CE</i>		
$\epsilon_1$	139,5(50)	0,09(1)
$\epsilon_2$	359(5)	3,87(4)
$\epsilon_3$	469(5)	0,73(2)

**Tabela 2.2** [Lagoutine,1984]: Emissão da radiação  $\gamma$  para os processos de decaimento por  $\beta^-$  ( $^{192}\text{Pt}$ ) e CE ( $^{192}\text{Os}$ ), sua energia, intensidade e coeficiente de conversão interna total.

RADIAÇÃO $\gamma$	ENERGIA (keV)	INTENSIDADE ABSOLUTA (%)	$\alpha$
<i><math>\gamma</math> (Pt)</i>			
$\gamma_1$	136,3434(5)	0,18(1)	1,75(13)
$\gamma_2$	295,95821(8)	28,7(1)	0,099(6)
$\gamma_3$	308,45685(8)	29,8(1)	0,090(5)
$\gamma_4$	316,50800(8)	83,0(3)	0,083(3)
$\gamma_5$	416,4719(12)	0,664(7)	0,039(1)
$\gamma_6$	468,0715(12)	47,8(1)	0,0289(9)
$\gamma_7$	588,5851(16)	4,48(2)	0,0160(5)
$\gamma_8$	593,38(5)	0,042(2)	
$\gamma_9$	604,4146(16)	8,09(3)	0,027(3)
$\gamma_{10}$	612,4657(16)	5,28(3)	0,0147(4)
$\gamma_{11}$	884,5423(20)	0,29(1)	0,0069(2)
$\gamma_{12}$	1061,48(40)	0,053(2)	
$\gamma_{13}$	1089,9(8)	0,0012(4)	0,0050(2)
$\gamma_{14}$	1377,98 (5)	0,0011 (2)	
<i><math>\gamma</math> (Os)</i>			
$\gamma_1$	201,311(7)	0,46(1)	0,35(4)
$\gamma_2$	205,79550(5)	3,32(3)	0,297(8)
$\gamma_3$	283,255(20)	0,267(6)	
$\gamma_4$	329,1(2)	0,016(2)	
$\gamma_5$	374,485(7)	0,72(1)	0,048(1)
$\gamma_6$	420,50(6)	0,067(9)	
$\gamma_7$	484,5779(13)	3,17(2)	0,024(2)
$\gamma_8$	489,056(30)	0,44(1)	0,0240(7)
$\gamma_9$	703,7(4)	0,006(2)	

#### 2.1.4. MÉTODOS DE PADRONIZAÇÃO PARA O $^{192}\text{Ir}$

A complexidade do esquema de decaimento, a princípio, tornaria necessário o uso de dois sistemas de coincidência distintos, por exemplo: um  $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$  para a medida do ramo  $\beta^-$  e outro  $\text{NaI(Tl)-NaI(Tl)}$  (utilizado pelo laboratório LMN na padronização do  $^{126}\text{I}$  [Fonseca,1997]) para a medida do ramo de captura eletrônica. Entretanto, os altos valores para os coeficientes de conversão interna (variam de 0,0050 a 1,75 [Lagoutine,1984]) e a baixa probabilidade de emissão dos raios- $\gamma$  (variam de 0,006(2)% a 3,32(3)% [Lagoutine,1984]) do ramo de CE, tornaram a utilização de um segundo sistema muito dificultada. Além do mais, os raios-X provenientes da CE e da conversão interna não podiam ser separados. Para corrigir a contribuição do ramo de CE, que é pequena (4,76% [Firestone,1996]) e de difícil obtenção devido a baixa estatística, foi aplicado à atividade medida um fator de correção determinado a partir dos dados da literatura.

Para a padronização do  $^{192}\text{Ir}$ , ou seja, a determinação da taxa de desintegração, as medidas foram realizadas utilizando-se um sistema de coincidência convencional  $4\pi\beta(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}\gamma$  (que será apresentado no item 3.1), para a medida do ramo que se desintegra pela emissão de  $\beta^-$  e o sistema de coincidência  $4\pi\beta(\text{PC})\text{-Ge(Li)}\gamma$  (que será apresentado no item 3.2), para a medida da contribuição dos eventos de captura eletrônica no contador proporcional.

### 2.1.4.1. EQUAÇÕES PARA O SISTEMA DE COINCIDÊNCIA 4π(PC)-NaI(Tl)

O sistema de coincidência 4π(PC)-NaI(Tl) utilizado na medida da taxa de desintegração do  $^{192}\text{Ir}$  é constituído de um contador proporcional com geometria 4π a gás fluente para detecção das partículas  $\beta^-$  e dois cristais cintiladores de NaI(Tl) para a detecção da radiação gama. Estes detectores serão descritos no item 3.1 e o sistema eletrônico utilizado no item 3.3.

De acordo com o exposto no item 1.3 e analisando o esquema de decaimento do  $^{192}\text{Ir}$  (Figura 2.1), verificou-se que as janelas gama mais convenientes (por serem as mais intensas ou terem um coeficiente de conversão interna pequeno) a serem selecionadas para a medida em coincidência com o ramo  $\beta^-$  poderiam ser:

$$\text{Janela } \gamma_1 = 295,96 \text{ keV}(\gamma_2) + 308,46 \text{ keV}(\gamma_3) + 316,51 \text{ keV}(\gamma_4) \text{ ou}$$

$$\text{Janela } \gamma_2 = 588,59 \text{ keV}(\gamma_7) + 593,40 \text{ keV}(\gamma_8) + 604,42 \text{ keV}(\gamma_9) + \\ 612,47 \text{ keV}(\gamma_{10}).$$

A expressão da taxa de contagem, para a via de detecção do sistema de coincidência 4πβ(PC)-γNaI(Tl), do ramo  $\beta^-$ ; negligenciando o ramo  $\beta^+$  por ter uma probabilidade de desintegração menor que  $1,5 \times 10^{-5} \%$ ; é dada por:

$$N_{\beta} = N_0 a \left[ \epsilon_{\beta} + (1 - \epsilon_{\beta}) I_{\text{Pt}} \left( \frac{\alpha \epsilon_{\text{ec}} + \epsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_{\text{Pt}} \right] + \\ N_0 b \left[ \epsilon_{(X, A)} + (1 - \epsilon_{(X, A)}) I_{\text{Os}} \left( \frac{\alpha \epsilon_{\text{ec}} + \epsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_{\text{Os}} \right] \quad (2.1)$$

A taxa de contagem da via gama, quando é selecionada a radiação- $\gamma$  coincidente com o ramo  $\beta^-$  (a), é dada por:

$$N_{\gamma} = N_0 a I \epsilon'_{\gamma} \quad (2.2)$$

com  $\epsilon'_{\gamma} = \frac{\epsilon_{\gamma}}{1 + \alpha}$ ,

E a taxa de contagem da via de coincidências é dada por:

$$N_c = N_0 a I [\epsilon_{\beta} \epsilon'_{\gamma}] \quad (2.3)$$

onde:

$N_0$	é a taxa de desintegração total da fonte,
$a$	abundância do ramo beta,
$\epsilon_{\beta}$	eficiência para o ramo beta,
$I_{Pt}$ e $I_{Os}$	probabilidades das transições dos raios- $\gamma$ selecionados, referentes aos níveis excitados da $^{192}Pt$ e do $^{192}Os$ , respectivamente,
$I$	probabilidade da transição do raio- $\gamma$ selecionado,
$\alpha$	coeficiente de conversão interna total,
$\epsilon_{ec}$	eficiência do detector beta para elétrons de conversão,
$\epsilon_{\beta\gamma}$	eficiência do detector beta para a radiação gama,
$b$	probabilidade de desintegração por CE para o ramo de captura eletrônica,
$\epsilon_{X,A}$	eficiência do detector $\beta$ para raios-X ou elétrons Auger,
$\epsilon_{\gamma}$	eficiência do detector NaI(Tl) para a radiação gama.

Dividindo-se a equação (2.3) pela (2.2) obtém-se  $\epsilon_{\beta} = N_c/N_{\gamma}$  e fazendo-se alguns rearranjos matemáticos considerando-se:

$K_{Pt} = I_{Pt} \left( \frac{\alpha \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_{Pt}$  e  $K_{Os} = I_{Os} \left( \frac{\alpha \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_{Os}$ , onde os índices Pt e Os se referem aos estados excitados da Platina e do Ósmio, respectivamente, a taxa de contagem da via beta pode ser reescrita como:

$$N_{\beta} = N_0 a \left\{ \epsilon_{\beta} + (1 - \epsilon_{\beta}) K_{Pt} + \frac{b}{a} [\epsilon_{X,A} + (1 - \epsilon_{X,A}) K_{Os}] \right\} \quad (2.4)$$

Dividindo-se a equação (2.4) por  $N_C / N_{\gamma}$ , e considerando-se :

$$\epsilon_{X,A} + (1 - \epsilon_{X,A}) K_{Os} = f_X \quad (2.5),$$

obtem-se:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_C} = N_0 \left\{ a + \left( \frac{1 - \epsilon_{\beta}}{\epsilon_{\beta}} \right) (a K_{Pt} + b f_X) + b f_X \right\} \quad (2.6)$$

Fazendo-se  $B = a K_{Pt} + b f_X$ , pode-se escrever:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_C} = N_0 \left\{ a + \left( \frac{1 - \epsilon_{\beta}}{\epsilon_{\beta}} \right) B + b f_X \right\} \quad (2.7)$$

As taxas de contagens  $N_{\beta}$  e  $N_{\gamma}$  foram corrigidas para radiação de fundo, tempo morto e decaimento radioativo. A taxa de coincidência  $N_C$  foi corrigida para tempo morto e coincidências acidentais usando o formalismo Cox-Isham [Cox and Isham, 1977].

Devido ao esquema de decaimento complexo e o grande número de variáveis desconhecidas utilizou-se a técnica de extrapolação linear da eficiência, onde se variou o parâmetro de eficiência beta e extrapolou-se o valor de  $N_{\beta} N_{\gamma} / N_C$  para uma eficiência beta unitária (com  $N_C / N_{\gamma} = 1$ ), para se determinar a taxa de desintegração  $N_0$ .

Com isso, os resultados dos ajustes lineares de mínimos quadrados, um para cada intervalo gama selecionado, forneceram os valores das atividades:

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} = A + \left( \frac{1 - \epsilon_{\beta}}{\epsilon_{\beta}} \right) B \quad (2.8)$$

onde:

$$A = N_o (a + b.f_x) \quad (2.9)$$

Os valores de a e b foram obtidos da literatura [Firestone,1996].

#### **2.1.4.2. EQUAÇÕES PARA O SISTEMA DE COINCIDÊNCIA 4π(PC)-Ge(Li) – MÉTODO ESPECTROSCÓPICO**

O sistema de coincidência 4π(PC)-Ge(Li); constituído de um detector proporcional em geometria 4π, à gás fluente, acoplado a um Ge(Li) 10% (estes detectores serão descritos no item 3.2 e o sistema eletrônico utilizado no item 3.3); foi utilizado para a determinação do fator de correção  $f_x$ , fator este que leva em conta a sensibilidade do contador proporcional para os raios-X e elétrons Auger, apresentado na equação 2.5.

O método empregado para esta medida foi o método espectroscópico [Baba,1982].

Neste método a razão das áreas sob os fotopicos  $\gamma$  (provenientes do ramo de captura eletrônica) do espectro direto e de coincidência,

denominadas  $A_D$  e  $A_C$ , respectivamente, corresponde ao fator  $f_x$ , e é dada por:

$$A_C/A_D = f_x \quad (2.10)$$

O intervalo de discriminação gama selecionado continha os raios- $\gamma$  provenientes do ramo de captura eletrônica:

$$\text{Janela } \gamma = 484,58 \text{ keV} + 489,06 \text{ keV}$$

Com a determinação do fator  $f_x$  e do parâmetro  $A$  obtido pela curva de extrapolação determina-se o valor da atividade  $N_0$ . Este procedimento foi feito para os dois intervalos de energia gama selecionados (Janela  $\gamma_1$  e Janela  $\gamma_2$ ) e seus resultados foram comparados.

## 2.2. RADIONUCLÍDEO $^{152}\text{Eu}$

### 2.2.1. REVISÃO DA LITERATURA

Em 1982, Baba (S.), Ichikawa, Sekine, Ishikawa e Baba (H.), [Baba,1982], utilizaram o método espectroscópico anti-coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ , para medida primária da atividade do  $^{152}\text{Eu}$ . Este sistema é constituído de um contador  $4\pi\beta$  e um espectrômetro Ge(Li) para determinar a intensidade dos raios- $\gamma$  relevantes em um espectro coincidente ou anti-coincidente janelado para os pulsos de saída do contador  $\beta$ . Após vários tipos de medidas primárias de uma fonte de  $^{60}\text{Co}$ , para testar o método espectroscópico, aplicaram para fontes de  $^{152}\text{Eu}$  e os resultados obtidos

foram comparados com a intensidade da fonte obtida com uma fonte padrão de  $^{152}\text{Eu}$  fornecida pelo LMRI (Laboratoire Primaire de Métrologie des Rayonnements Ionisants, Saclay). Os picos de raios- $\gamma$  selecionados para a medida foram: 344, 779, 964, 1112 e 1408 keV. A taxa de desintegração  $N_0$  foi determinada pela relação:

$$N_0 = N_\beta / \sum f_i \epsilon_{\beta i}$$

Onde  $f_i$  é a probabilidade de desintegração do  $i$ -ésimo raio- $\beta$  e  $\epsilon_{\beta i}$  a eficiência de contagem. A espectrometria de raios- $\gamma$  revelou a presença da impureza de  $^{154}\text{Eu}$  e sua contribuição era de 0,73% da atividade da solução de  $^{152}\text{Eu}$ . Eles não construíram a curva de extrapolação da eficiência, e sim curvas de  $\epsilon_\beta$  versus  $E_\beta$  (MeV) para o método espectroscópico. Obtiveram bons resultados comparados com a referência do LMRI.

Em 1990, Miyahara, Nozue, Kitaori e Watanabe, [Miyahara,1990], utilizaram o sistema coincidente  $4\pi\beta(\text{PPC})-\gamma\text{HPGe}$  na padronização do  $^{152}\text{Eu}$ , com um sistema de aquisição de dados de “tempo-vivo” bi-dimensional e adotaram o método de extrapolação de eficiência bi-paramétrica. Os mesmos dados foram também analisados pela extrapolação de eficiência convencional e o método espectroscópico  $4\pi\beta-\gamma$ .

A função de eficiência, do sistema  $4\pi\beta(\text{PPC})-\gamma\text{HPGe}$ , foi obtida por discriminação computadorizada utilizando os espectros  $\beta$  e de raios- $\gamma$ , o espectro  $\beta$  coincidente com qualquer pulso  $\gamma$ , e o espectro  $\beta$  coincidente com o raio- $\gamma$  selecionado. A taxa de desintegração foi calculada do espectro  $\gamma$  simples e do espectro  $\gamma$  coincidente com os pulsos  $\beta$ .

Sistema Convencional: Os raios- $\gamma$  selecionados foram: 779, 1086 e o 964 keV. O ajuste linear da função de eficiência, obtido para a janela- $\gamma$  de 779 keV, é consideravelmente menor que o intervalo da extrapolação, resultando em uma grande incerteza na taxa de desintegração.

Sistema Bi-paramétrico: Os raios- $\gamma$  selecionados foram: 245 e 344keV, e 1086 e 1408 keV. A taxa de desintegração  $N_0$  foi determinada pela extrapolação linear simultânea da função de eficiência quando  $(1 - \epsilon_\beta)/\epsilon_\beta$  e  $(1 - \epsilon_2)/\epsilon_\beta$  tendem a zero. Onde  $\epsilon_2$  é a eficiência do detector beta para os eventos de captura eletrônica e para os elétrons de conversão interna, quando o discriminador gama é ajustado para admitir os raios- $\gamma$  seguidos pela transição 122 keV.

Com isso, as curvas de extrapolação bi-paramétrica apresentadas pelos autores são funções do tipo:

Para o ramo  $\beta^-$ ,  $\{N_\beta/\epsilon_\beta + N_0D (1 - \epsilon_2/\epsilon_\beta)\}$  (kBq) versus  $(1 - \epsilon_\beta)/\epsilon_\beta$  e

Para o ramo CE,  $\{N_\beta/\epsilon_C + N_0D (1 - \epsilon_2/\epsilon_C)\}$  (kBq) versus  $(1 - \epsilon_C)/\epsilon_C$ .

A técnica de extrapolação da eficiência convencional resultou em grandes incertezas, quando as janelas gama selecionadas eram provenientes do ramo de decaimento  $\beta^-$ , por causa do pequeno intervalo do ajuste.

Eles compararam seus resultados com os obtidos pelo método espectroscópico e por análise espectrométrica e concluíram que estavam em boa concordância.

Em 2001, Park, Lee e Hwang, [Park, 2001], utilizaram a técnica de contagens coincidentes digital (DDC) na padronização do  $^{152}\text{Eu}$  e compararam seus resultados com os obtidos pela técnica de contagem coincidente convencional. O princípio básico do método DDC é a medida de sinais digitais de pulsos lineares provenientes de ADC's comerciais e simultaneamente, a entrada, no tempo do cronômetro, é fechada para pulsos com tempo de resolução da ordem de 100 ns, com isso os dados de altura de pulso e tempo de entrada são seqüencialmente armazenados em uma memória randômica do sistema.

Três funções de eficiências foram obtidas para as janelas dos fotopicos de 344 keV e 1408 keV, e (900 – 1490 keV) pela técnica DDC. Os detectores utilizados foram um contador proporcional pressurizado (PPC) para medida das partículas  $\beta$  e dois cristais cintiladores NaI(Tl) para os raios- $\gamma$ . As curvas de extrapolação obtidas para as três janelas gama selecionadas são dadas por:  $N_{\beta}/(\epsilon_{\beta}.m)$  versus  $X = (1 - \epsilon_{\beta})/\epsilon_{\beta}$ . A impureza de  $^{154}\text{Eu}$  foi detectada pela análise dos espectros de raios- $\gamma$  e sua contribuição era de 0,70% da atividade do  $^{152}\text{Eu}$ .

Os resultados da atividade do  $^{152}\text{Eu}$  obtidos para ambos os métodos (DDC e convencional) mostraram uma boa concordância dentro de 0,23% e as incertezas padrões combinadas que contribuíram na determinação da atividade foram de 0,19% para o método DDC e 0,21% para o método de coincidência convencional.

Como pôde ser observado, cada autor utilizou uma técnica de medida diferente, e apesar dos problemas enfrentados devido ao esquema de decaimento complexo, obtiveram resultados bons dentro do esperado. Mas, nenhum autor utilizou a mesma técnica que foi desenvolvida neste trabalho, onde a extrapolação da eficiência foi simultânea para as duas eficiências de detecção, das partículas  $\beta^-$  e eventos da captura eletrônica. Mesmo no trabalho do Miyahara *et al.*, [Miyahara, 1990], que utilizaram extrapolação bi-paramétrica, as curvas são apresentadas separadamente, uma para cada ramo de decaimento, e a atividade é uma função da eficiência da transição de 122 keV e de outros parâmetros.

### 2.2.2. PADRONIZAÇÃO DO $^{152}\text{Eu}$

O  $^{152}\text{Eu}$  é um dos mais importantes radionuclídeos utilizados na calibração da eficiência de espectrômetros gama que empregam detectores semi-condutores de germânio, por ser um multiemissor gama. Este radionuclídeo emite quase uma centena de fótons, sendo que os dez mais intensos estão no intervalo de 100 keV a 1400 keV. Suas propriedades de decaimento, isto é, sua meia-vida longa (13 anos) e a emissão de muitos raios- $\gamma$  com energias e intensidades apropriadas, tornaram o uso deste radionuclídeo muito adequado como fonte padrão.

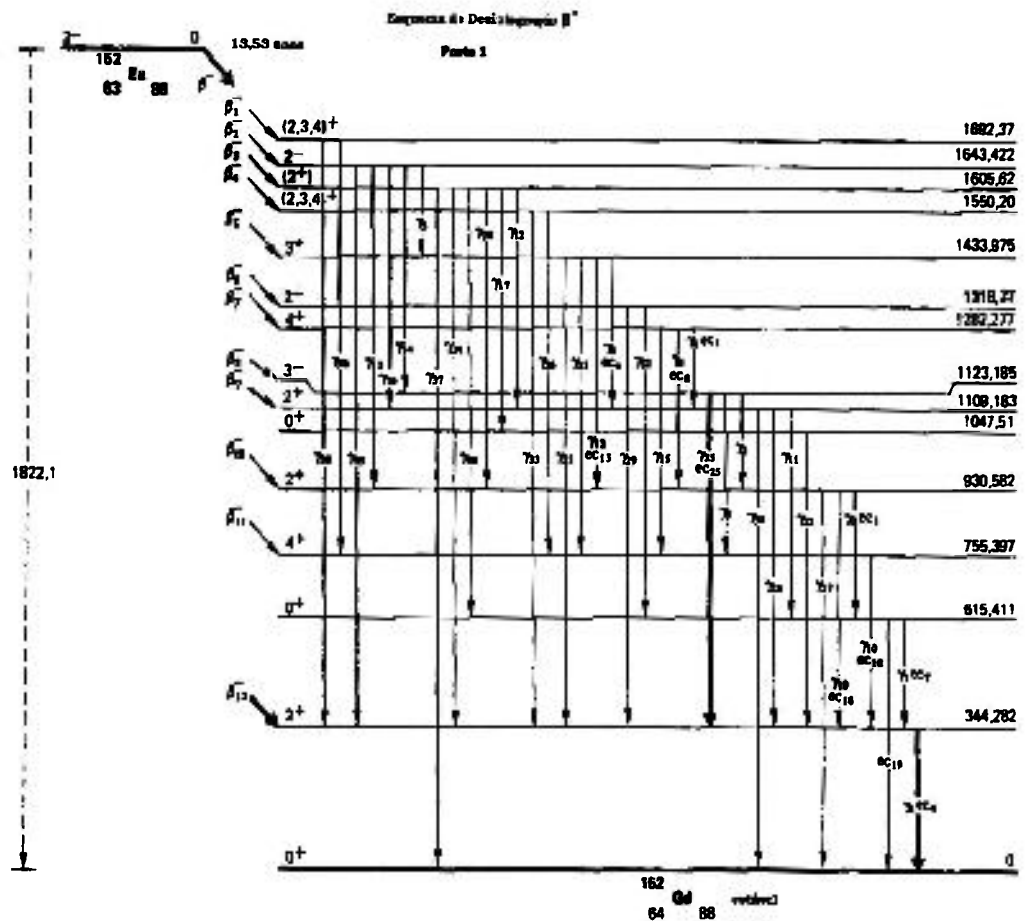
No entanto, a determinação da atividade absoluta do  $^{152}\text{Eu}$  é acompanhada de grandes dificuldades por causa de seu complexo esquema de decaimento [Baba,1982;Miyahara,1990]. As técnicas usuais de medida de coincidência apresentam alguns problemas ocasionados pelo duplo decaimento  $\beta^-$  e captura eletrônica. Neste trabalho é apresentada a metodologia de padronização deste radionuclídeo desenvolvida no LMN.

Por causa das dificuldades na sua padronização, o  $^{152}\text{Eu}$  foi selecionado pelo CCRI (Comitê Consultative des Rayonnements Ionisants) para uma comparação internacional. O LMN (Laboratório de Metrologia Nuclear) participou desta comparação em colaboração com o LNMRI (Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes) do Rio de Janeiro. Os resultados independentes utilizando técnicas diferentes de medida foram obtidos por cada laboratório e inclusos na comparação. Estes resultados são apresentados neste trabalho e comparados com os apresentados pelo BIPM (Bureau International des Poids et Mesures) a ser publicado.

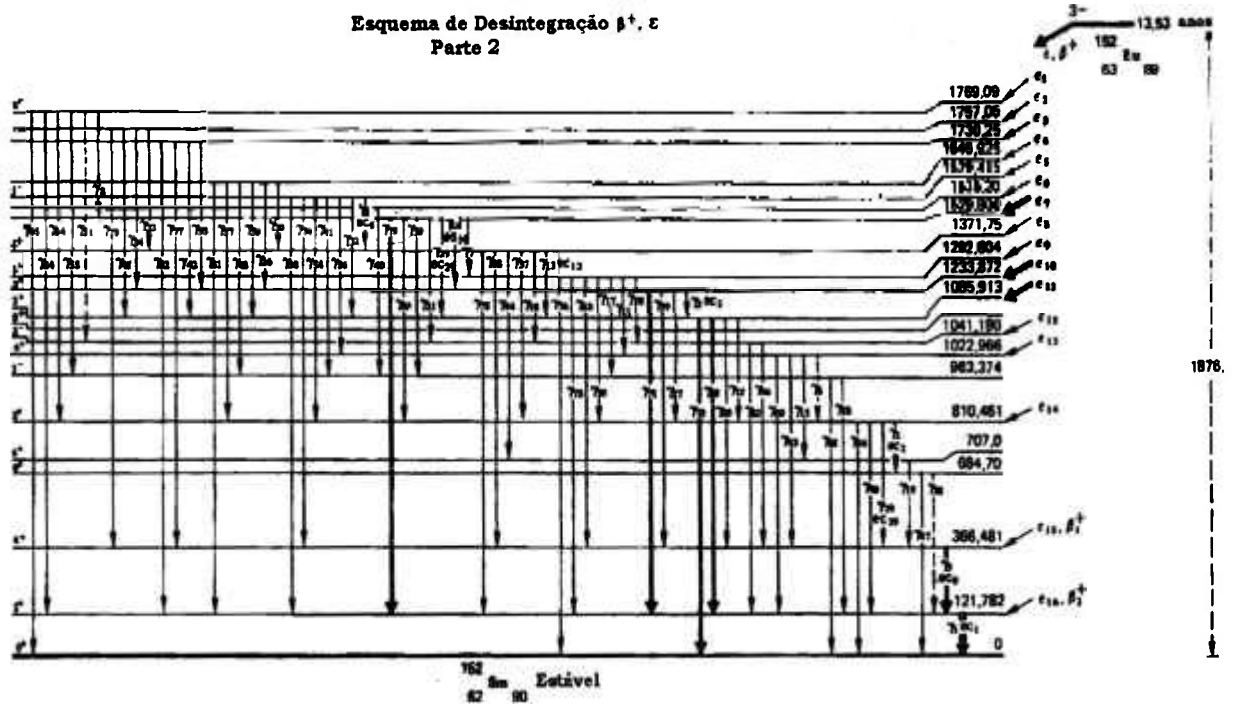
### 2.2.3. ESQUEMA DE DECAIMENTO

O  $^{152}\text{Eu}$  desintegra com uma meia-vida de  $(13,53 \pm 0,01)$  anos [Bé,1999], com  $(27,92 \pm 0,19)\%$  de probabilidade por emissão  $\beta^-$  populando os níveis excitados do  $^{152}\text{Gd}$  e com  $(72,08 \pm 0,19)\%$  de probabilidade por processo de captura eletrônica e  $\beta^+$  populando os níveis excitados do  $^{152}\text{Sm}$  [Firestone,1996]. O esquema de decaimento é mostrado nas Figuras 2.2.1 e 2.2.2.

Nas tabelas 2.3 e 2.4 são apresentadas as energias e as probabilidades de emissão mais intensas dos vários tipos de radiações emitidas [Lagoutine,1984].



**Figura 2.2.1:** Esquema de desintegração por emissão  $\beta^-$  do  $^{152}\text{Eu}$  (energias em keV) [Lagoutine, 1984].



**Figura 2.2.2:** Esquema de desintegração por emissão Captura Eletrônica e  $\beta^+$  do  $^{152}\text{Eu}$  (energias em keV) [Lagoutine, 1984].

**Tabela 2.3** [Lagoutine,1984]: Tipos de radiação, energia e intensidade para os processos de decaimento por  $\beta^-$  ( $^{152}\text{Gd}$ ) e CE ( $^{152}\text{Sm}$ ).

TIPO DE RADIÇÃO	ENERGIA (keV)	INTENSIDADE ABSOLUTA (%)
<i>Elétrons Auger</i>		
$e_{AL}$	3,2 – 8,3	75(9)
$e_{AK}$ (Gd,Sm)	33,1 – 50,2	6(2)
<i>Conversão Interna (&gt;0,1%)</i>		
$e_{c1K}$ (Sm)	74,950(1)	19,2 (2)
$e_{c1L}$ (Sm)	114,05 – 115,06	10,7(1)
$e_{c9K}$ (Sm)	197,865(1)	0,610(4)
$e_{c9L}$ (Sm)	236,96 – 237,98	0,152(1)
$e_{c7K}$ (Gd)	294,042(2)	0,824(9)
$e_{c7L}$ (Gd)	335,90–337,046	0,137(1)
$e_{c18K}$ (Gd)	536,055(6)	0,100(10)
<i>Raio - X</i>		
$X_L$	4,99 – 18,35	15,6(10)
$X_{K\alpha}$ (Sm)	39,52 – 40,11	59,0(16)
$X_{K\alpha}$ (Gd)	42,30 – 42,99	0,659(15)
$X_{K\beta}$ (Sm)	45,4 – 46,6	14,8(4)
$X_{K\beta}$ (Gd)	48,7 – 50,0	0,170(6)
$\beta^-$		
$\beta^-_1$ máx	129,7(18)	
méd	34,2(6)	0,020(1)
$\beta^-_2$ máx	178,7(18)	
méd	48,2(6)	1,826(11)
$\beta^-_3$ máx	216,5(18)	
méd	59,3(6)	0,098(2)
$\beta^-_4$ máx	271,9(18)	
méd	76,2(6)	0,0395(20)
$\beta^-_5$ máx	388,1(18)	
méd	113,1(6)	2,436(15)
$\beta^-_6$ máx	503,7(18)	
méd	152,4(6)	0,0175(10)

Tabela 2.3 – Continuação

TIPO DE RADIÇÃO	ENERGIA (keV)	INTENSIDADE ABSOLUTA (%)
$\beta^-_7$ máx	539,8(18)	
méd	165,0(7)	0,023(2)
$\beta^-_8$ máx	698,9(18)	
méd	222,7(7)	13,78(8)
$\beta^-_9$ máx	712,9(18)	
méd	227,9(7)	0,26(2)
$\beta^-_{10}$ máx	891,5(18)	
méd	296,0(7)	0,324(12)
$\beta^-_{11}$ máx	1066,7(18)	
méd	365,7(7)	0,96(3)
$\beta^-_{12}$ máx	1477,8(18)	
méd	536,6(8)	8,0(3)
$\beta^+_{1}$ máx	487,6(9)	0,0027(2)
$\beta^+_{2}$ máx	732,3(9)	
méd	339,0(5)	0,025(9)
<i>CE</i>		
$\epsilon_1$	107,0(9)	0,0655(25)
$\epsilon_2$	119,0(9)	0,034(2)
$\epsilon_3$	145,8(9)	0,0396(14)
$\epsilon_4$	226,2(9)	0,893(15)
$\epsilon_5$	296,6(9)	2,068(15)
$\epsilon_6$	340,9(9)	0,0048(8)
$\epsilon_7$	346,3(9)	24,70(15)
$\epsilon_8$	504,3(9)	0,91(1)
$\epsilon_9$	583,3(9)	0,642(12)
$\epsilon_{10}$	642,2(9)	17,26(10)
$\epsilon_{11}$	790,2(9)	21,4(1)
$\epsilon_{12}$	834,9(9)	0,04(2)
$\epsilon_{13}$	853,1(9)	0,24(2)
$\epsilon_{14}$	1065,6(9)	1,30(2)
$\epsilon_{15}$	1509,6(9)	0,95(8)
$\epsilon_{16}$	1754,3(9)	1,65(60)

**Tabela 2.4** [Lagoutine,1984]: Emissão da radiação  $\gamma$  para os processos de decaimento por  $\beta^-$  ( $^{152}\text{Gd}$ ) e CE ( $^{152}\text{Sm}$ ), sua energia, intensidade e coeficiente de conversão interna total, para os raios- $\gamma$  mais intensos ( $>0,1\%$ ).

<b>RADIAÇÃO <math>\gamma</math></b>	<b>ENERGIA (keV)</b>	<b>INTENSIDADE ABSOLUTA (%)</b>	<b><math>\alpha</math></b>
$\gamma$ ( <i>Sm</i> )			
$\gamma_1$	121,7842(4)	28,40(15)	1,165(10)
$\gamma_9$	244,6989(10)	7,54(5)	0,108(1)
$\gamma_{14}$	295,939(8)	0,443(6)	0,034(20)
$\gamma_{17}$	329,433(17)	0,148(5)	0,0117(1)
$\gamma_{26}$	416,052(6)	0,110(2)	
$\gamma_{29}$	443,983(7)	0,32(1)	0,178(2)
	443,983(7)	2,78(2)	0,00571(6)
$\gamma_{31}$	488,66(4)	0,412(13)	0,0140(1)
$\gamma_{38}$	564,021(8)	0,491(15)	0,00332(3)
$\gamma_{39}$	566,421(8)	0,129(2)	0,013(3)
$\gamma_{43}$	656,484(12)	0,148(10)	0,057(4)
$\gamma_{46}$	674,678(8)	0,172(10)	0,00226(2)
$\gamma_{49}$	688,678(6)	0,846(10)	0,040(1)
$\gamma_{50}$	719,353(6)	0,328(21)	0,00520(5)
$\gamma_{56}$	810,459(7)	0,316(4)	
$\gamma_{58}$	841,592(8)	0,166(8)	
$\gamma_{59}$	867,388(8)	4,23(3)	0,00346(3)
$\gamma_{62}$	919,401(8)	0,435(6)	0,00122(1)
$\gamma_{63}$	926,324(15)	0,268(8)	0,0029(1)
$\gamma_{65}$	964,131(9)	14,60(8)	0,0027(1)
$\gamma_{68}$	1005,279(17)	0,640(6)	0,0026(1)
$\gamma_{69}$	1084(1)	0,243(8)	
$\gamma_{70}$	1085,914(13)	10,09(4)	0,00211(2)
$\gamma_{71}$	1112,116(17)	13,56(6)	0,0020(1)
$\gamma_{74}$	1212,950(12)	1,423(10)	0,00073
$\gamma_{75}$	1249,946(13)	0,182(5)	
$\gamma_{79}$	1408,011(15)	20,80(12)	0,00056
$\gamma_{80}$	1457,628(15)	0,493(6)	0,00053
$\gamma_{81}$	1528,115(20)	0,280(3)	

**Tabela 2.4** - continuação

<b>RADIAÇÃO <math>\gamma</math></b>	<b>ENERGIA (keV)</b>	<b>INTENSIDADE ABSOLUTA (%)</b>	<b><math>\alpha</math></b>
<i><math>\gamma</math> (Gd)</i>			
$\gamma_7$	344,281(2)	26,52(18)	0,0400(4)
$\gamma_9$	367,788(4)	0,842(17)	0,0099(4)
$\gamma_{10}$	411,115(5)	2,246(16)	0,0240(2)
$\gamma_{13}$	503,387(5)	0,156(6)	0,016(2)
$\gamma_{18}$	586,294(6)	0,458(7)	0,023(2)
$\gamma_{21}$	678,578(3)	0,462(6)	0,00655(7)
$\gamma_{24}$	764,905(9)	0,185(12)	
$\gamma_{25}$	778,903(6)	12,94(7)	0,00185(2)
$\gamma_{31}$	1089,700(15)	1,737(8)	
$\gamma_{32}$	1109,180(12)	0,195(20)	
$\gamma_{35}$	1299,124(12)	1,630(10)	

#### 2.2.4. MÉTODOS DE PADRONIZAÇÃO PARA O $^{152}\text{Eu}$

Para a padronização do  $^{152}\text{Eu}$ , ou seja, a determinação da taxa de desintegração, as medidas foram realizadas utilizando-se um sistema de coincidência  $4\pi\beta(\text{PC})\text{-HPGe}\gamma$  (que será descrito no item 3.2), para a medida dos dois ramos de desintegração  $\beta^-$  e captura eletrônica.

### 2.2.4.1. EQUAÇÕES PARA O SISTEMA DE COINCIDÊNCIA 4π(PC)-HPGe

Analisando o esquema de decaimento do  $^{152}\text{Eu}$  (Figuras 2.2.1 e 2.2.2), verificou-se os intervalos de energia das radiações gama mais convenientes a serem selecionados. Duas janelas de discriminação gama foram escolhidas que compreendem as radiações  $\gamma$  provenientes dos ramos de captura eletrônica e  $\beta^-$ , com as energias  $\gamma$  de 1408,01 keV e 344,28keV, respectivamente.

O contador proporcional 4π foi utilizado para medida da emissão  $\beta^-$  e raios-X e elétrons Auger, e um espectrômetro semiconductor de germânio (HPGe) para detecção dos raios- $\gamma$  associados à emissão  $\beta^-$  e os raios- $\gamma$  associados ao processo de decaimento por captura eletrônica.

As expressões das taxas de contagem para as vias de detecção do sistema de coincidência 4πβ-γ são dadas por:

$$N_{\beta} = N_0 a \left[ \epsilon_{\beta} + (1 - \epsilon_{\beta}) I_{\text{Gd}(1)} \left( \frac{\alpha \epsilon_{\text{ec}} + \epsilon_{\beta}}{1 + \alpha} \right)_{\text{Gd}(1)} \right] + N_0 b \left[ \epsilon_{(X, A)} + (1 - \epsilon_{(X, A)}) I_{\text{Sm}(2)} \left( \frac{\alpha \epsilon_{\text{ec}} + \epsilon_{\beta}}{1 + \alpha} \right)_{\text{Sm}(2)} \right] \quad (2.11)$$

$$N_{\gamma_1} = N_0 a I \frac{\epsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \quad (2.12)$$

$$N_{C_1} = N_0 a I \left( \epsilon_{\beta} \frac{\epsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \right) \quad (2.13)$$

para o ramo beta e

$$N_{\gamma 2} = N_0 b I \frac{\epsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \quad (2.14)$$

$$N_{c2} = N_0 b I \left[ (\epsilon_{(X,A)} + \epsilon_{ec}) \frac{\epsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \right] \quad (2.15)$$

para o ramo de captura eletrônica.

Onde:

- N<sub>0</sub>** a taxa de desintegração da fonte,
- a** a probabilidade de desintegração pelo ramo beta,
- $\epsilon_{\beta}$  a eficiência do ramo beta,
- I<sub>Gd</sub>** e **I<sub>Sm</sub>** probabilidades das transições dos raios- $\gamma$  selecionados, referentes aos níveis excitados do <sup>152</sup>Gd e do <sup>152</sup>Sm, respectivamente,
- I** probabilidade da transição do raio- $\gamma$  selecionado,
- $\alpha$  o coeficiente de conversão interna total,
- $\epsilon_{X,A}$  a eficiência do detector beta para raios-X e elétrons Auger,
- $\epsilon_{\beta\gamma}$  a eficiência do detector beta para a radiação gama,
- b** a probabilidade de desintegração pelo ramo de captura eletrônica,
- $\epsilon_{ec}$  a eficiência do detector beta para elétrons de conversão,
- $\epsilon_{\gamma}$  a eficiência do detector de HPGe para os gamas selecionados,

**N <sub>$\beta$</sub>**  e **N <sub>$\gamma$ <sub>i</sub></sub>** (*i* = 1, 2) são as taxas de contagem observadas nos detectores empregados, corrigidas para radiação de fundo, tempo morto e decaimento do modo usual,

**N<sub>ci</sub>** (*i* = 1, 2) é a taxa de coincidências observadas, corrigida para tempo morto e coincidências acidentais.

Combinando-se as equações de  $N_{\gamma i}$  e  $N_{C i}$  para cada ramo obtém-se as expressões para as eficiências  $\varepsilon_{\beta}$  e  $\varepsilon_{X,A} + \varepsilon_{ec}$ .

Com alguns artifícios matemáticos: dividindo-se a equação 2.11 pelas eficiências  $\varepsilon_{\beta}$  e  $\varepsilon_{X,A} + \varepsilon_{ec}$  (que será denominada somente de  $\varepsilon_X$ ), somando-se e subtraindo-se ( $\pm$ )  $N_{0a}$  e ( $\pm$ )  $N_{0b}$ , a taxa de contagem da via beta é dada por:

$$\frac{N_{\beta}}{\varepsilon_{\beta} \cdot \varepsilon_X} = N_0 \left( \frac{1 - \varepsilon_X}{\varepsilon_X} \right) \left\{ b + a \left[ \frac{I_a}{\varepsilon_{\beta}} \left( \frac{\alpha_a \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta \gamma}}{1 + \alpha_a} \right)_{Sm} \right] \right\} + N_0 \left( \frac{1 - \varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}} \right) \left\{ a + b \left[ \frac{I_b}{\varepsilon_X} \left( \frac{\alpha_b \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta \gamma}}{1 + \alpha_b} \right)_{Gd} \right] \right\} + N_0(a + b) \quad (2.16)$$

Quando  $\varepsilon_{\beta} \rightarrow 1$  e  $\varepsilon_X \rightarrow 1$  tem-se:

$$\frac{N_{\beta}}{\varepsilon_{\beta} \cdot \varepsilon_X} = N_0(a + b) \quad (2.17)$$

A atividade foi determinada pela extrapolação simultânea dos parâmetros de ineficiência  $(1 - N_{C i} / N_{\gamma i}) / (N_{C i} / N_{\gamma i})$  para zero. Esse método de extrapolação utilizado é denominado de extrapolação bi-dimensional ou bi-paramétrica (descrito no item 1.3.3).

Na extrapolação bi-paramétrica os termos independentes considerados foram:

$$x_1 = \frac{1 - \frac{N_{C1}}{N_{\gamma1}}}{\frac{N_{C1}}{N_{\gamma1}}} \quad \text{e} \quad x_2 = \frac{1 - \frac{N_{C2}}{N_{\gamma2}}}{\frac{N_{C2}}{N_{\gamma2}}} \quad (2.18)$$

Onde:

$$\epsilon_{\beta} = \frac{N_{c1}}{N_{\gamma1}} \text{ e } \epsilon_{x} = \frac{N_{c2}}{N_{\gamma2}} \quad (2.19)$$

E o termo dependente:

$$y = \frac{N_{\beta}}{\epsilon_{\beta}\epsilon_x} \quad (2.20)$$

A curva ajustada foi:  $y = A + B x_1 + C x_2$

## 2.3. RADIONUCLÍDEO $^{186}\text{Re}$

### 2.3.1. REVISÃO DA LITERATURA

Em 1991, Coursey *et al.*, [Coursey,1991], padronizaram o radionuclídeo  $^{186}\text{Re}$  no CIEMAT (Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas – Espanha) em colaboração com o NIST (National Institute of Standards and Technology – U.S.A.) utilizando o método de eficiência  $4\pi\beta$  com cintilador líquido traçado com trítio. Soluções padrão do nuclídeo foram utilizadas para preparar as fontes de calibração para medidas no espectrômetro semiconductor Ge das probabilidades por decaimento de raios-X e radiação  $\gamma$ .

As incertezas combinadas obtidas no método foram da ordem de  $\pm 1,61\%$  e as fontes preparadas da solução de  $^{186}\text{Re}$  utilizada tem sido aplicadas para calibrar a câmara de ionização pressurizada do NIST. Os valores para a razão de captura para as diferentes camadas, os coeficientes de conversão, razões de raios-X K, e produção de

fluorescência da Table de Radionucléides (1975) foram usados para calcular as probabilidades para os ramos de decaimento.

Os valores obtidos para a probabilidade de emissão por decaimento diferem significativamente daqueles comparados com os “evaluations” de Firestone [Firestone,1988] em alguns casos. E o mais importante, é que a probabilidade para a linha de 137 keV é cerca de 15% mais alta.

Em 1994, Schönfeld, Janssen, Schötzig, Günther e Schrader, [Schönfeld,1994], mediram a atividade específica de uma solução de  $^{186}\text{Re}$  utilizando a técnica de contagem em coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  e um cintilador líquido. Quando um cristal de NaI(Tl) é utilizado como detector da radiação  $\gamma$  no sistema de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ , o fotopico do raio- $\gamma$  principal de 137 keV proveniente do ramo de decaimento  $\beta^-$  não pode ser separado do pico de 122,6 keV proveniente do ramo de captura eletrônica. A probabilidade de detecção determinada das taxas de contagens em coincidência e do raio- $\gamma$  é então um valor médio das probabilidades de detecção das partículas  $\beta^-$  e do ramo de CE. Enquanto a  $\epsilon_\beta$  (eficiência beta) é muito próxima de um valor unitário, a  $\epsilon_{\text{CE}}$  (eficiência para os eventos de captura eletrônica) pode ser um pouco menor, mesmo para fontes finas bem preparadas. A taxa de desintegração é calculada da equação:

$$N_0 = f_d n_\beta n_\gamma / n_C$$

Onde  $f_d$  é um fator derivado dos dados do esquema de decaimento e das probabilidades de detecção.

A discriminação da radiação  $\gamma$  selecionada foi: 100 a 160 keV. Valores da literatura dos parâmetros  $a$ ,  $b$  e  $\alpha$  foram utilizados no cálculo de  $\epsilon_{\text{CE}}$ . Os resultados obtidos para as probabilidades de emissão dos

raios- $\gamma$  que acompanham o decaimento do  $^{186}\text{Re}$  apresentaram incertezas relativas da ordem de 1% para as principais transições.

Em 2000, Miyahara *et al.*, [Miyahara,2000], mediram as probabilidades de emissão da radiação  $\gamma$  do  $^{186}\text{Re}$ . Para isso, desenvolveram aparatos para a medida da taxa de desintegração e do espectro de raio- $\gamma$ , por meio de coincidências  $4\pi\beta$ - $\gamma$  obtidas por um sistema de aquisição de dados de “tempo-vivo” bi-dimensional. O sistema de coincidência utilizado foi o  $4\pi\beta(\text{PPC})$ - $\gamma\text{HPGe}$ .

As eficiências dos raios- $\gamma$  foram calibradas pelas medidas das áreas dos picos do espectro- $\gamma$  e da taxa de desintegração de fontes padrão de  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  e  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ . Estas são fontes padrão fornecidas pela IAEA (International Agency Energy Atomic), exceto a  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ .

As análises foram feitas pelo ajuste das janelas  $\gamma$  selecionadas nos fotopicos de 122,6 e 137,2 keV, enquanto a taxa de desintegração foi determinada somente para a energia de 137,2 keV devido as grandes incertezas obtidas na medida dos raios- $\gamma$  de 122,6 keV. Com isso, construíram a curva de extrapolação da taxa de desintegração aparente (Bq) em função de  $(1 - \epsilon_{\beta})/\epsilon_{\beta}$ . Obtiveram incertezas menores que 0,2% para a taxa de desintegração. Os resultados para a probabilidade de emissão gama estavam em boa concordância quando comparados com os outros autores.

Não foi citado no artigo, se a contribuição do ramo de captura eletrônica foi corrigida.

Em 2000, Woods *et al.*, [Woods,2000], padronizaram uma solução de  $^{186}\text{Re}$  para determinar as probabilidades de emissão dos raios- $\gamma$  e providenciar fatores de calibração para uma câmara de ionização de re-entrância de alta pressão bem como para o calibrador de radionuclídeos

padrão secundário do NPL. O sistema de coincidência utilizado foi um  $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma\text{Ge}$ , e duas janelas  $\gamma$  foram selecionadas: 122,6 keV e 137,2 keV. Duas curvas de extrapolação bi-paramétrica foram obtidas:

$$(N_{\beta} \text{ versus } 1 - \epsilon_{\beta}) \text{ e } (N_{\beta} \text{ versus } 1 - \epsilon_{\text{CE}})$$

As medidas de ampolas utilizando um detector de Ge intrínseco forneceram as probabilidades de emissão  $\gamma$ , as quais foram comparadas com outros autores e os resultados apresentaram boa concordância.

Como pôde ser observado, cada autor padronizou o radionuclídeo  $^{186}\text{Re}$ , utilizando uma técnica diferente. Mas nenhum utilizou dois sistemas de coincidência para a medida da taxa de desintegração, onde um sistema é utilizado para corrigir a contribuição do ramo de decaimento por captura eletrônica, como foi feito neste trabalho.

### **2.3.2. PADRONIZAÇÃO DO $^{186}\text{Re}$**

O  $^{186}\text{Re}$  é um radionuclídeo que pode ser empregado em medicina nuclear como radiofármaco terapêutico no tratamento de carcinomas de pulmão e cólon, tumores de cabeça e garganta, etc [Coursey et al.,1991]. Com isso, aumenta a necessidade de padronização deste radionuclídeo com boa exatidão, incluindo o conhecimento dos dados do esquema de decaimento, para o fornecimento de fontes calibradas permitindo boa precisão nos cálculos de dose interna absorvida pelo paciente submetido a tratamentos com este radionuclídeo.

Neste trabalho foi desenvolvido um método de medida para a padronização do  $^{186}\text{Re}$  utilizando-se os sistemas de coincidências  $4\pi\beta(\text{PC})-$

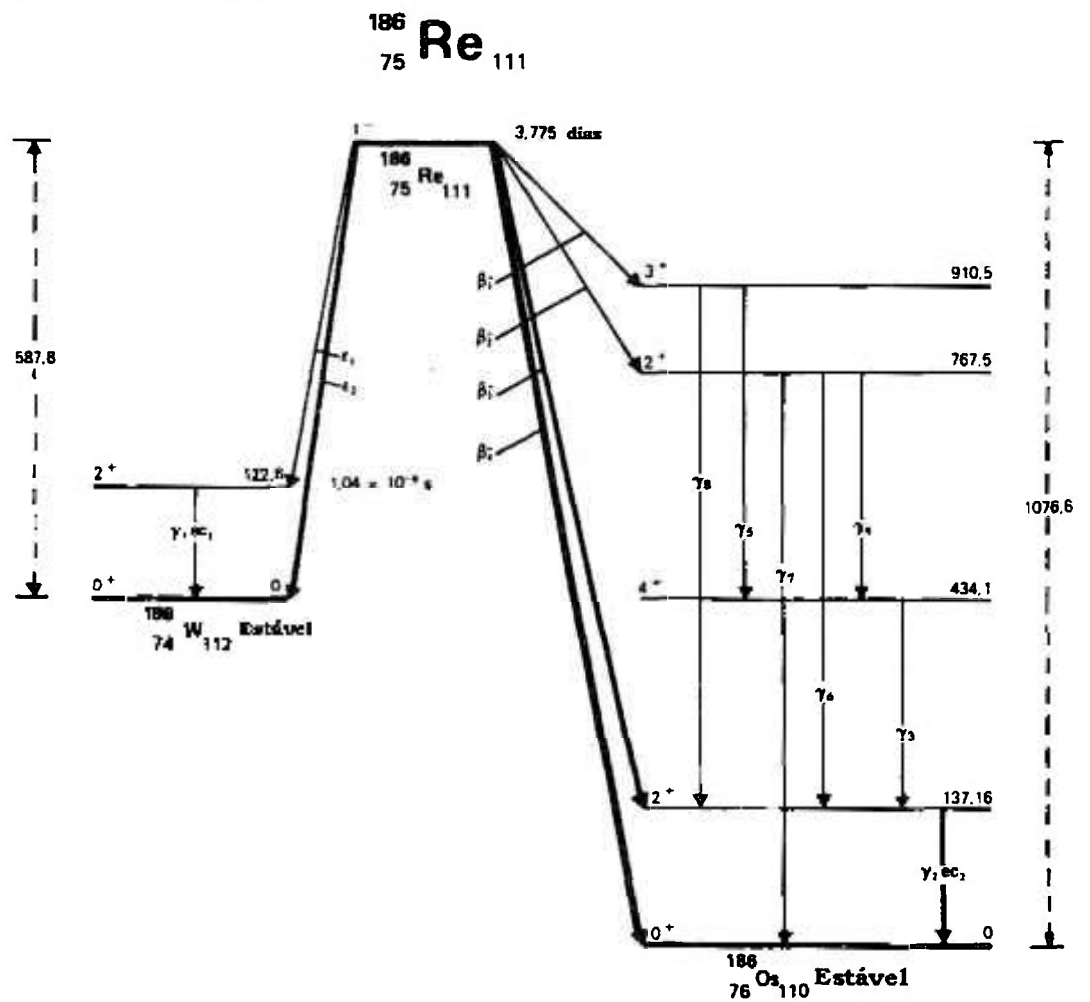
NaI(Tl) $\gamma$  e  $4\pi\beta$ (PC)-HPGe $\gamma$ . A partir da atividade absoluta resultante desta padronização, determinou-se a probabilidade de emissão gama por decaimento dos fótons mais intensos e comparou-se os resultados obtidos com os dados da literatura.

### **2.3.3. ESQUEMA DE DECAIMENTO**

O  $^{186}\text{Re}$  desintegra com uma meia-vida de  $(90,64\pm 0,09)\text{h}$ , com  $(93,1\pm 0,2)\%$  de probabilidade por emissão  $\beta^-$  populando os níveis excitados do  $^{186}\text{Os}$  e com  $(6,9\pm 0,2)\%$  de probabilidade por processo de captura eletrônica populando os níveis excitados do  $^{186}\text{W}$  [Firestone,1996]. O esquema de decaimento é mostrado na Figura 2.3.

Nas tabelas 2.5 e 2.6 são apresentadas as energias e as probabilidades de emissão mais intensas dos vários tipos de radiações emitidas [Lagoutine,1984].

## Esquema de Desintegração



**Figura 2.3:** Esquema de desintegração do  $^{186}\text{Re}$  (energias em keV) [Lagoutine, 1984].

**Tabela 2.5** [Lagoutine,1984]: Tipos de radiação, energia e intensidade (>0,1%), para os processos de decaimento por  $\beta^-$  ( $^{186}\text{Os}$ ) e CE ( $^{186}\text{W}$ ).

TIPO DE RADIAÇÃO	ENERGIA (keV)	INTENSIDADE ABSOLUTA (%)
<i>Elétrons Auger</i>		
$e_{AL}$	4,6 - 12,9	12(3)
$e_{AK}(W)$	45,11 - 69,59	~ 0,25
$e_{AK}(Os)$	47,72 - 73,87	~ 0,2
<i>Conversão Interna</i>		
$e_{c1K}$	53,1(2)	0,34(5)
$e_{c2K}$	63,28(2)	4,1(5)
$e_{c1L}$	110,5 - 112,4	0,55(8)
$e_{c1M}$	119,8 - 120,8	0,14(2)
$e_{c2L}$	124,18 - 126,28	6,1(8)
$e_{c2M}$	134,10 - 135,19	1,5(2)
$e_{c2NO}$	136,5 - 137,1	~ 0,4
<i>Raio - X</i>		
$X_L$	7,4 - 12,9	5,2(16)
$X_{K\alpha2}(W)$	57,9817	1,8(4)
$X_{K\alpha1}(W)$	59,31824	3,2(7)
$X_{K\alpha2}(Os)$	61,4867	1,13(17)
$X_{K\alpha1}(Os)$	63,0005	2,0(3)
$X_{K\beta}(W)$	66,9514 - 69,479	1,27(20)
$X_{K\beta}(Os)$	71,077 - 73,808	0,80(9)
$\beta^-_1$ máx	167(4)	
méd	49,5(15)	~ $2 \times 10^{-5}$
$\beta^-_2$ máx	309(4)	
méd	86,8(15)	0,05(1)
$\beta^-_3$ máx	940(4)	
méd	303(2)	21,5(22)
$\beta^-_4$ máx	1077(4)	
méd	354(2)	71(3)
CE $\epsilon_1$	472(8)	1,6(3)
$\epsilon_2$	594(8)	6,0(7)

**Tabela 2.6** [Lagoutine,1984]: Emissão da radiação  $\gamma$  para os processos de decaimento por  $\beta^-$  ( $^{186}\text{Os}$ ) e CE ( $^{186}\text{W}$ ), sua energia, intensidade e coeficiente de conversão interna total.

RADIAÇÃO $\gamma$	ENERGIA (keV)	INTENSIDADE ABSOLUTA (%)	$\alpha$
$\gamma$ (W)			
$\gamma_1$	122,6(2)	0,60(8)	1,78(10)
$\gamma$ (Os)			
$\gamma_2$	137,15(2)	9,5(12)	1,26(5)
$\gamma_3$	296,9(1)	$\sim 5 \times 10^{-5}$	
$\gamma_4$	333,4(1)	$\sim 6 \times 10^{-5}$	
$\gamma_5$	476,4(1)	$< 10^{-5}$	
$\gamma_6$	630,3(1)	0,026(5)	
$\gamma_7$	767,5(1)	0,029(6)	
$\gamma_8$	773,3(1)	$\sim 2 \times 10^{-5}$	

#### 2.3.4. MÉTODOS DE PADRONIZAÇÃO PARA O $^{186}\text{Re}$

Para a padronização do  $^{186}\text{Re}$ , ou seja, a determinação da taxa de desintegração, as medidas foram realizadas utilizando-se um sistema de coincidência convencional  $4\pi\beta(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}\gamma$  (que será apresentado no item 3.1), para a medida do ramo que se desintegra pela emissão de  $\beta^-$  e o sistema de coincidência  $4\pi\beta(\text{PC})\text{-HPGe}\gamma$  (que será apresentado no item 3.2), para a medida da contribuição dos eventos de captura eletrônica no contador proporcional.

### 2.3.4.1. EQUAÇÕES PARA O SISTEMA DE COINCIDÊNCIA 4π(PC)-NaI(Tl)

Analisando o esquema de decaimento do  $^{186}\text{Re}$  (Figura 2.3), verificou-se os intervalos de energia correspondentes aos picos de absorção total das radiações gama mais convenientes a serem selecionados. Como as radiações  $\gamma$  dos dois ramos de decaimento apresentam energias próximas, foi escolhido um intervalo de energia  $\gamma$  que compreende as radiações  $\gamma$  provenientes dos ramos de captura eletrônica e  $\beta^-$ , com as energias  $\gamma$  de 122 keV e 137 keV.

O contador proporcional 4π foi utilizado para medida da radiação  $\beta^-$ , raios-X e elétrons Auger e o cintilador NaI(Tl) para detecção dos raios- $\gamma$  emitidos simultaneamente. Devido ao fato do cintilador NaI(Tl) não ter boa resolução, não se consegue separar os picos de energia muito próximas, por este motivo o intervalo de discriminação gama ajustado continha os dois fotopicos  $\gamma$ .

As expressões das taxas de contagem para as vias de detecção do sistema de coincidência 4π $\beta$ - $\gamma$  são dadas por:

$$N_{\beta} = N_0 a \left[ \epsilon_{\beta} + (1 - \epsilon_{\beta}) I_{Os(2)} \left( \frac{\alpha \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_{Os(2)} \right] + N_0 b \left[ \epsilon_{(X, A)} + (1 - \epsilon_{(X, A)}) I_{W(1)} \left( \frac{\alpha \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_{W(1)} \right] \quad (2.21)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \left[ a I_{\gamma_2} \frac{\epsilon_{\gamma_2}}{1 + \alpha_2} + b I_{\gamma_1} \frac{\epsilon_{\gamma_1}}{1 + \alpha_1} \right] \quad (2.22)$$

Como as energias gama são próximas pode-se considerar que as duas eficiências sejam iguais  $\epsilon_{\gamma 1} \cong \epsilon_{\gamma 2}$ , com isso, a equação 2.21 pode ser reescrita como:

$$N_{\gamma} = N_0 \epsilon_{\gamma} \left[ a \frac{I_{\gamma 2}}{1 + \alpha_2} + b \frac{I_{\gamma 1}}{1 + \alpha_1} \right] \quad (2.23)$$

$$N_c = N_0 \epsilon_{\gamma} \left[ a \epsilon_{\beta} \frac{I_{\gamma 2}}{1 + \alpha_1} + b \epsilon_{(X, A)} \frac{I_{\gamma 1}}{1 + \alpha_1} \right] \quad (2.24)$$

onde:

- $N_0$  é a taxa de desintegração total da fonte,
- $a$  abundância do ramo beta,
- $\epsilon_{\beta}$  eficiência para o ramo beta,
- $I_{Os(2)}$  e  $I_{W(1)}$  probabilidades das transições dos raios- $\gamma$  selecionados, referentes aos níveis excitados do  $^{186}Os$  e do  $^{186}W$ , respectivamente,
- $\alpha$  coeficiente de conversão interna total,
- $\epsilon_{ec}$  eficiência do detector beta para elétrons de conversão,
- $\epsilon_{\beta, \gamma}$  eficiência do detector beta para a radiação gama,
- $b$  probabilidade de desintegração por EC para o ramo de captura eletrônica,
- $\epsilon_{X,A}$  eficiência do detector  $\beta$  para raios-X ou elétrons Auger,
- $\epsilon_{\gamma}$  eficiência do detector NaI(Tl) para a radiação gama.

Dividindo-se a equação (2.24) pela (2.23) obtém-se  $\epsilon_{\beta} = N_c/N_{\gamma}$  em função de alguns parâmetros:

$$\frac{N_c}{N_{\gamma}} = \epsilon_{\beta} \left[ \frac{a \frac{I_{\gamma 2}}{1 + \alpha_2} + b \frac{\epsilon_{(X, A)} I_{\gamma 1}}{\epsilon_{\beta} (1 + \alpha_1)}}{a \frac{I_{\gamma 2}}{1 + \alpha_2} + b \frac{I_{\gamma 1}}{1 + \alpha_1}} \right] \quad (2.25)$$

Fazendo-se alguns rearranjos matemáticos considerando-se:  
 $K_{Os} = I_{Os} \left( \frac{\alpha \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_{Os}$  e  $K_W = I_W \left( \frac{\alpha \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_W$ , onde os índices Os e W se referem aos estados excitados do Ósmio e do Tungstênio, respectivamente, a taxa de contagem da via beta pode ser escrita como:

$$N_{\beta} = N_0 \epsilon_{\beta} \left\{ a \left[ 1 + \frac{(1 - \epsilon_{\beta})}{\epsilon_{\beta}} K_{Os} \right] + b \left[ \frac{\epsilon_{X,A}}{\epsilon_{\beta}} + \frac{(1 - \epsilon_{X,A})}{\epsilon_{\beta}} K_W \right] \right\} \quad (2.26)$$

Dividindo-se a equação (2.26) pela (2.25), tem-se a equação (2.27):

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left\{ a \left[ 1 + \frac{(1 - \epsilon_{\beta})}{\epsilon_{\beta}} K_{Os} \right] + b \left[ \frac{\epsilon_{X,A}}{\epsilon_{\beta}} + \frac{(1 - \epsilon_{X,A})}{\epsilon_{\beta}} K_W \right] \right\} \left[ \frac{a \left( \frac{I_{\gamma 2}}{1 + \alpha_2} \right) + b \left( \frac{I_{\gamma 1}}{1 + \alpha_1} \right)}{a \left( \frac{I_{\gamma 2}}{1 + \alpha_2} \right) + b \left( \frac{\epsilon_{X,A}}{\epsilon_{\beta}} \right) \left( \frac{I_{\gamma 1}}{1 + \alpha_1} \right)} \right]$$

Fazendo-se  $B = a K_{Os} + b f_X$ , e considerando-se:

$$\epsilon_{X,A} + (1 - \epsilon_{X,A}) K_W = f_X \quad (2.28),$$

obtem-se a equação (2.29) somando-se e subtraindo-se ( $\pm$ )  $N_0 b f_X$ :

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left\{ a + \left( \frac{1 - \epsilon_{\beta}}{\epsilon_{\beta}} \right) B + b f_X \right\} \left[ \frac{a \left( \frac{I_{\gamma 2}}{1 + \alpha_2} \right) + b \left( \frac{I_{\gamma 1}}{1 + \alpha_1} \right)}{a \left( \frac{I_{\gamma 2}}{1 + \alpha_2} \right) + b \left( \frac{\epsilon_{X,A}}{\epsilon_{\beta}} \right) \left( \frac{I_{\gamma 1}}{1 + \alpha_1} \right)} \right]$$

Quando  $\epsilon_{\beta} \rightarrow 1$ , tem-se:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 [a + b f_X] \left[ \frac{\left( \frac{I_{\gamma 2}}{1 + \alpha_2} \right) + \frac{b}{a} \left( \frac{I_{\gamma 1}}{1 + \alpha_1} \right)}{\left( \frac{I_{\gamma 2}}{1 + \alpha_2} \right) + \frac{b}{a} \left( \frac{I_{\gamma 1}}{1 + \alpha_1} \right) \epsilon_{X,A}} \right] \quad (2.30)$$

Onde:

$$\left[ \frac{\left( \frac{I_{\gamma 2}}{1 + \alpha_2} \right) + \frac{b}{a} \left( \frac{I_{\gamma 1}}{1 + \alpha_1} \right)}{\left( \frac{I_{\gamma 2}}{1 + \alpha_2} \right) + \frac{b}{a} \left( \frac{I_{\gamma 1}}{1 + \alpha_1} \right) \epsilon_{x, \lambda}} \right] \cong 1 \quad (2.31)$$

Devido ao esquema de decaimento complexo e o grande número de variáveis desconhecidas utilizou-se a técnica de extrapolação linear da eficiência, onde se variou o parâmetro de eficiência beta e extrapolou-se o valor de  $N_{\beta} N_{\gamma} / N_c$  para uma eficiência beta unitária (com  $N_c/N_{\gamma} = 1$ ), para se determinar a taxa de desintegração  $N_0$ .

Com isso, o resultado do ajuste linear de mínimos quadrados, forneceu o valor da atividade:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = A + \left( \frac{1 - \epsilon_{\beta}}{\epsilon_{\beta}} \right) B \quad (2.32)$$

onde:

$$A = N_0 (a + b.f_x) \quad (2.33)$$

Os valores de a e b foram obtidos da literatura [Firestone,1996; Baglin,1997].

### **2.3.4.2. EQUAÇÕES PARA O SISTEMA DE COINCIDÊNCIA 4 $\pi$ (PC)-HPGe – MÉTODO ESPECTROSCÓPICO**

Semelhantemente ao procedimento utilizado na padronização do  $^{192}\text{Ir}$  (item 2.1.2.2) mediu-se o fator de correção  $f_x$ , no sistema de coincidência 4 $\pi$ (PC)-HPGe, onde a única diferença foi a troca do detector de Ge(Li) pelo HPGe (que serão descritos no capítulo 3).

Medidas diretas e em coincidência foram feitas em um analisador multicanal. A energia gama selecionada foi de 122,61 keV.

No método espectroscópico [Baba,1982] a razão das áreas sob os fotopicos  $\gamma$  (provenientes do ramo de captura eletrônica) do espectro direto e de coincidência, denominadas  $A_D$  e  $A_C$ , respectivamente, corresponde ao fator  $f_x$ , e é dada por:

$$A_C/A_D = f_x \quad (2.34)$$

Com a determinação do fator  $f_x$  e do parâmetro  $A$  obtido pela curva de extrapolação determina-se o valor da atividade  $N_0$ .

## 2.4. CORREÇÕES APLICADAS NAS MEDIDAS DO SISTEMA DE COINCIDÊNCIA

As taxas de contagens observadas devem ser corrigidas para perdas devidas ao tempo morto dos detectores e do sistema eletrônico, coincidências espúrias<sup>1</sup>, tempo de resolução, radiação de fundo e decaimento. No caso das correções para coincidências espúrias e tempo de resolução foi aplicada a fórmula matemática exata desenvolvida por Cox-Isham [Cox-Isham,1977].

Todas as correções foram determinadas diretamente pelo programa DILUIP7 desenvolvido no LMN [Dias,2000] e que determina a atividade da fonte.

### 2.4.1. TEMPO MORTO

Para qualquer sistema constituído de um detector com seu equipamento eletrônico associado existe um intervalo de tempo mínimo,  $\tau$ , para o qual dois eventos consecutivos devem ser separados para que ambos sejam registrados. Portanto, os eventos que chegarem ao detector durante este período não serão contados, acarretando um erro na taxa de contagem observada, e a fração destes eventos perdidos aumenta com o aumento da taxa de contagem da fonte.

---

<sup>1</sup> Estas correções são feitas para o sistema eletrônico convencional, pois no sistema TAC, a correção para tempo morto é feita pela razão dos tempos de medida "live" (vivo) e real fornecidos pelo multicanal, as coincidências espúrias são corrigidas pelo programa CONTAC9 [Dias,2001] onde um dos dados de entrada do programa é uma região do espectro fora dos picos de interesse.

O tempo morto do sistema de coincidência utilizado neste trabalho foi fixado eletronicamente no sistema convencional e seu valor determinado experimentalmente como será descrito no item 3.4.

A correção aplicada às taxas de contagens observadas em cada via de detecção é dada por:

$$N = \frac{n}{(1 - n\tau)} \quad (2.35)$$

onde:

- N taxa de contagem corrigida para o tempo morto (taxa real)
- n taxa de contagem medida
- $\tau$  tempo morto fixado eletronicamente.

Para obter-se as taxas de contagens verdadeiras, a taxa de contagem da radiação de fundo  $n_{BG}$  foi subtraída das taxas de contagens observadas após a correção para tempo morto, em cada via de detecção:

$$N = \frac{n}{(1 - n\tau)} - n_{BG} \quad (2.36)$$

#### **2.4.2. TEMPO DE RESOLUÇÃO E COINCIDÊNCIAS ACIDENTAIS**

A taxa de coincidência é obtida pela detecção de duas radiações consideradas simultâneas, em relação ao tempo de resolução fixado eletronicamente (que será apresentado no item 3.4). Portanto, são considerados coincidentes dois pulsos que chegam na via de coincidência

dentro de um intervalo igual ao dobro do tempo de resolução fixado. Mas como o tempo de resolução possui valor finito (no sistema eletrônico) é possível obter-se um pulso coincidente ocasionado por dois eventos não relacionados. Estes são denominados pulsos de coincidências espúrias ou acidentais.

Para o presente trabalho foi adotada a formulação desenvolvida por Cox-Isham [Cox-Isham,1977] e adequada à um modelo prático por Smith [Smith,1978 e 1987]. Esta formulação matemática [Koskinas,1988] é exata, para tempos mortos iguais nas duas vias de detecção (beta e gama), como no caso do presente trabalho.

### 2.4.3. DECAIMENTO

A correção para decaimento radioativo das amostras é aplicada diretamente na taxa de desintegração  $N_0$  (para cada sistema de coincidência).

Esta correção leva em conta o decaimento durante a medida, sendo dada por:

$$N_R = N_m \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}} e^{\lambda(t_m - t)} \quad (2.37)$$

onde:

$N_R$  taxa de desintegração  $N_0$  no instante de referência  $t_R$

$N_m$  taxa de desintegração  $N_0$  durante a medida  $t_m$

$\lambda$  constante de desintegração do radionuclídeo

t	tempo de medida
$t_R$	instante de referência (ou data de referência)
$t_m$	instante inicial da medida.

A correção para decaimento dada pela expressão (2.37) foi aplicada à fórmula (2.36) para determinação da taxa de desintegração na data de referência estabelecida.

## 2.5. MEDIDA DAS FONTES

As fontes foram medidas nos sistemas de coincidências durante um tempo pré-determinado, definido pela taxa de desintegração inicial e limitado pelo número de dígitos dos contadores (para o caso do  $^{192}\text{Ir}$  e  $^{152}\text{Eu}$ ), o objetivo era obter uma boa estatística de contagens, sendo que cada série consistia geralmente de, no mínimo, dez medidas individuais de 200s. Para o  $^{186}\text{Re}$  este tempo foi de 4000 s, medido no multicanal pelo sistema TAC. Esses sistemas de coincidências e arranjos eletrônicos serão apresentados com detalhes no capítulo 3.

A variação no parâmetro de ineficiência do detector  $N_C/N_\gamma$  foi feita repetindo-se as séries de medidas acrescentando absorvedores externos, que são colocados sobre a fonte radioativa de modo a diminuir a eficiência pela absorção dos betas de menor energia e dos raios-X e elétrons Auger. Estes absorvedores eram filmes de Collodion metalizados com ouro (com aproximadamente  $40\mu\text{g}/\text{cm}^2$  de espessura) e/ou folhas de Alumínio (onde folhas de alumínio foram coladas em arandelas de aço inox, iguais às que servem de suporte aos filmes) de espessuras variadas. A quantidade e espessura dos absorvedores utilizados dependem diretamente da energia dos elétrons emitidos.

### **3. ARRANJO EXPERIMENTAL**

#### **3.1. CARACTERÍSTICAS DOS DETECTORES UTILIZADOS NO SISTEMA $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$**

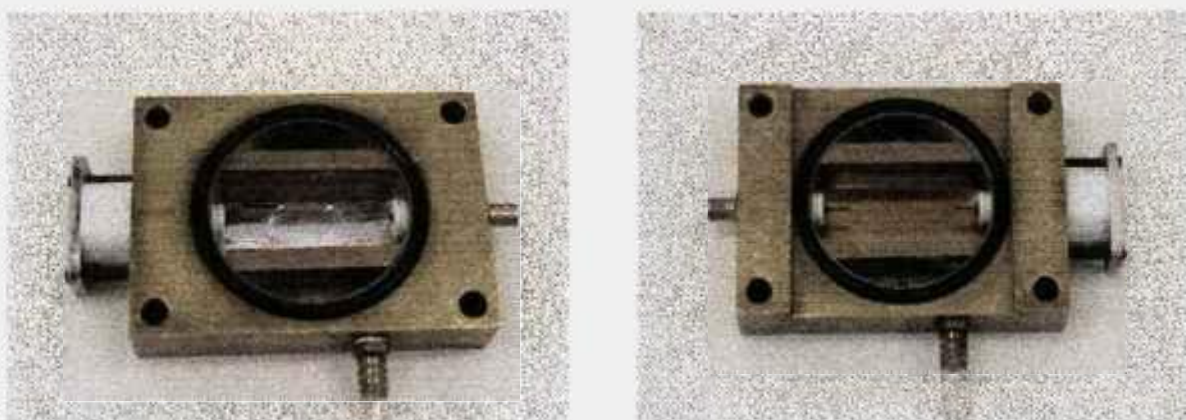
O sistema de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  utilizado neste trabalho, para a padronização do  $^{192}\text{Ir}$  e do  $^{186}\text{Re}$ , é constituído por um contador proporcional a gás fluente, com geometria  $4\pi$  para a detecção das radiações  $\beta$  ( $\beta^-$  e  $\beta^+$ ), elétrons de conversão, raios-X e elétrons Auger, acoplado a dois cristais cintiladores de NaI(Tl) para a detecção da radiação  $\gamma$ . Os eventos coincidentes são registrados quando detectados simultaneamente nos dois detectores.

##### **3.1.1. CONTADOR PROPORCIONAL $4\pi(\text{PC})$**

O contador proporcional apresenta baixo ruído, baixa sensibilidade para radiação  $\gamma$  ( $< 1\%$ ), tempo de recuperação de  $\approx 100$  ns, e alta eficiência na detecção de partículas  $\beta$ , da ordem de 95%.

O detector proporcional do LMN (Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN), apresentado na Figura 3.1, é composto por duas partes simétricas de latão, entre as quais é encaixada uma placa deslizante (“lingüeta”) com dois orifícios para o posicionamento das fontes no interior do detector sem a necessidade de abri-lo. A vedação é garantida por um sistema de anéis de borracha dispostos em cada uma das metades. Seu

volume interno é delimitado por definidores de latão, que o tornam aproximadamente cilíndrico, tendo 3,0cm de diâmetro e 7,5 cm de comprimento. Em cada metade do detector estende-se, paralelamente ao eixo do cilindro, o ânodo, formado por um fio de aço inoxidável, com diâmetro de 25  $\mu\text{m}$ , preso pelas extremidades a isoladores de teflon.



**Figura 3.1:** Contador proporcional do LMN, com suas duas metades separadas para ilustrar o interior do detector.

O interior do contador é preenchido com gás de alta pureza constituído de 90% de argônio e 10% de metano (mistura P10), operado à pressão de 0,1 MPa (pressão atmosférica). Devido ao fato dos raios betas, em geral, depositarem somente uma fração de sua energia no volume sensível do detector proporcional este é considerado um contador de eventos.

A tensão de operação do detector foi de 2050 V, as medidas foram feitas no modo integral, discriminando-se apenas o ruído eletrônico ( $\sim 2$  keV).

### **3.1.2. CRISTAL CINTILADOR DE NaI(Tl)**

Dois cristais cintiladores de NaI (Iodeto de Sódio) ativado com Tálcio, com dimensões de 76 mm x 76 mm, foram posicionados em contato direto com as faces superior e inferior do contador proporcional (~ 0,3 cm de espessura).

A tensão de operação foi de 1100 V, e a medida foi feita apenas nos fotopicos de absorção total dos raios- $\gamma$  em estudo.

Todo o sistema foi posicionado em uma blindagem de chumbo (de 5 cm de espessura) para minimizar a radiação de fundo, principalmente para os cristais de NaI(Tl).

### **3.2. CARACTERÍSTICAS DOS DETECTORES UTILIZADOS NO SISTEMA $4\pi$ (PC)-HPGe e $4\pi$ (PC)-Ge(Li)**

O sistema de coincidência  $4\pi$ (PC) – HPGe hiper-puro (utilizado na padronização do  $^{152}\text{Eu}$  e do  $^{186}\text{Re}$ ) é constituído de um detector proporcional com geometria  $4\pi$  à gás fluente utilizado para detecção beta, raios X ou elétrons de conversão acoplado a um espectrômetro de HPGe utilizado para a detecção gama emitida simultaneamente.

Este sistema foi montado primeiramente utilizando-se um espectrômetro de Ge(Li) para a padronização do  $^{192}\text{Ir}$ . Este é um detector semicondutor de germânio dopado com lítio, da marca Ortec, Modelo 8001

- 1022V, coaxial, com volume sensível de 49 cm<sup>3</sup>, tensão de polarização de 4000 V e eficiência relativa ~ 10%. Logo após as medidas deste radionuclídeo, este detector foi substituído pelo HPGe (hiper puro), pois este é mais novo, com maior eficiência e melhor resolução.

### **3.2.1. CONTADOR PROPORCIONAL 4 $\pi$ (PC)**

Este contador possui as mesmas características e tensão de operação apresentadas para o detector descrito no item 3.1.1. A única diferença entre eles é que além de poder ser operado à pressão atmosférica, este contador também pode ser pressurizado, bastando para isso acoplar um sistema de alta pressão.

### **3.2.2. ESPECTRÔMETRO DE HPGe**

Em contato direto com a parede inferior do contador proporcional, de 0,3 cm de espessura, encontra-se o espectrômetro de HPGe hiperpuro. Este é um detector semicondutor de germânio hiperpuro, da marca Intertechnique, tipo EGC 20, coaxial, com volume sensível de 99,7 cm<sup>3</sup>, área sensível de 20,6 cm<sup>2</sup>, diâmetro de 51,2 mm e comprimento de 50,2 mm. Sua eficiência relativa é da ordem de 20% e resolução para a energia de 1,33 MeV é 1,90 keV. Junto ao cristal está posicionado o pré-amplificador e o filtro de alta tensão. Para manter a temperatura necessária para o bom funcionamento do detector, essa peça está

montada sobre um “dewar” contendo nitrogênio líquido, sendo o contato feito por um pequeno cano conhecido como dedo-frio.

A tensão de operação foi de 3000 V (negativo).

### **3.3. SISTEMA ELETRÔNICO**

Ao longo deste trabalho foram utilizados vários tipos diferentes de sistemas eletrônicos. Primeiramente, para a padronização do  $^{192}\text{Ir}$ , além do sistema convencional (figura 3.2) utilizou-se outro sistema para o método espectroscópico (figura 3.4), na padronização do  $^{152}\text{Eu}$  o sistema convencional utilizado (figura 3.3) é similar ao utilizado para o  $^{192}\text{Ir}$ , a diferença é o detector utilizado. Nestes sistemas são utilizados contadores e cronômetro para registro dos dados e do tempo de medida. Após diversos problemas com os módulos eletrônicos e falta de contadores registradores para serem utilizados pelos dois sistemas de coincidência, foi desenvolvido no LMN (Laboratório de Metrologia Nuclear) um novo método eletrônico, batizado pelo nome de TAC, que faz uso de um “Time to Amplitude Converter” associado com um Analisador Multicanal para registro dos dados observados. Este sistema (figura 3.5) foi utilizado para a padronização do  $^{51}\text{Cr}$  [Lavras,2001] e os resultados obtidos foram comparados com medidas realizadas no sistema convencional, as medidas foram concordantes dentro das incertezas experimentais associadas, validando assim o sistema eletrônico TAC.

Com isso, este novo método passou a ser utilizado neste trabalho, na padronização do  $^{186}\text{Re}$ .

### 3.3.1. SISTEMA ELETRÔNICO CONVENCIONAL

Os sistemas eletrônicos utilizados estão representados nas figuras 3.2 e 3.3. Este sistema é constituído de três vias distintas:

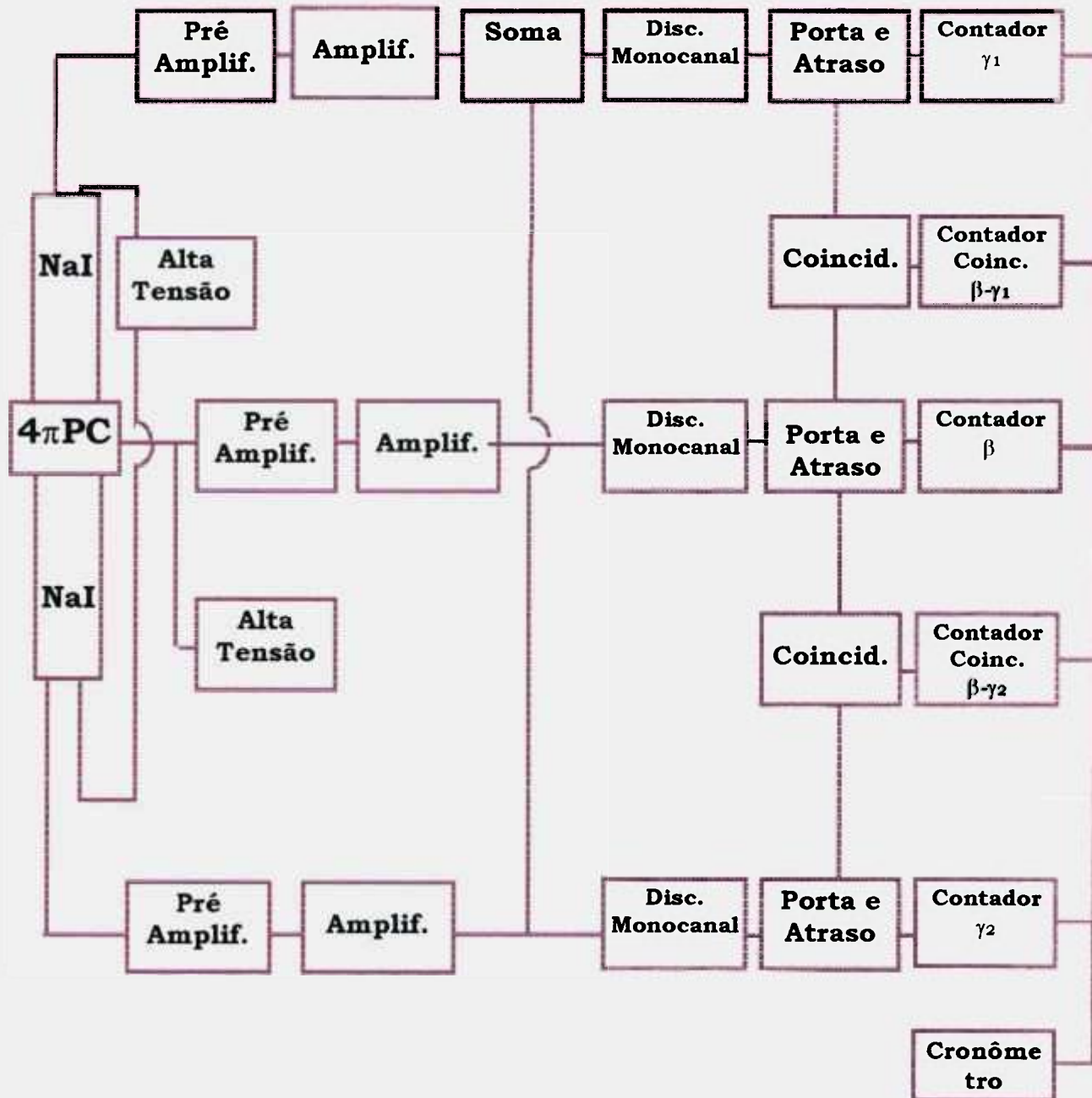
Via Beta - Na via beta os pulsos provenientes do detector  $4\pi$  (PC), após serem amplificados, passam por um discriminador (analisador de altura de pulso monocanal) para serem selecionados os intervalos de energia de interesse. Para o caso da radiação  $\beta$ , as medidas são feitas no modo integral, discriminando-se somente o ruído eletrônico ( $\sim 2$  keV). Os pulsos selecionados são enviados a um analisador de porta e atraso que permite fixar eletronicamente o tempo morto e o tempo de resolução do sistema. Após esse processo, os pulsos são enviados simultaneamente a um contador e à via de coincidência.

Via Gama - De modo análogo ao da via beta, os pulsos provenientes dos dois cristais cintiladores são somados após sua amplificação (para o caso da figura 3.2) e os pulsos provenientes do semicondutor HPGe (para o caso da figura 3.3) após serem amplificados, são selecionados os intervalos de energia de interesse, referente aos picos de absorção total, por meio de dois analisadores de altura de pulso monocanais (Single Channel Analyser-Timing, ou SCA-Timing).

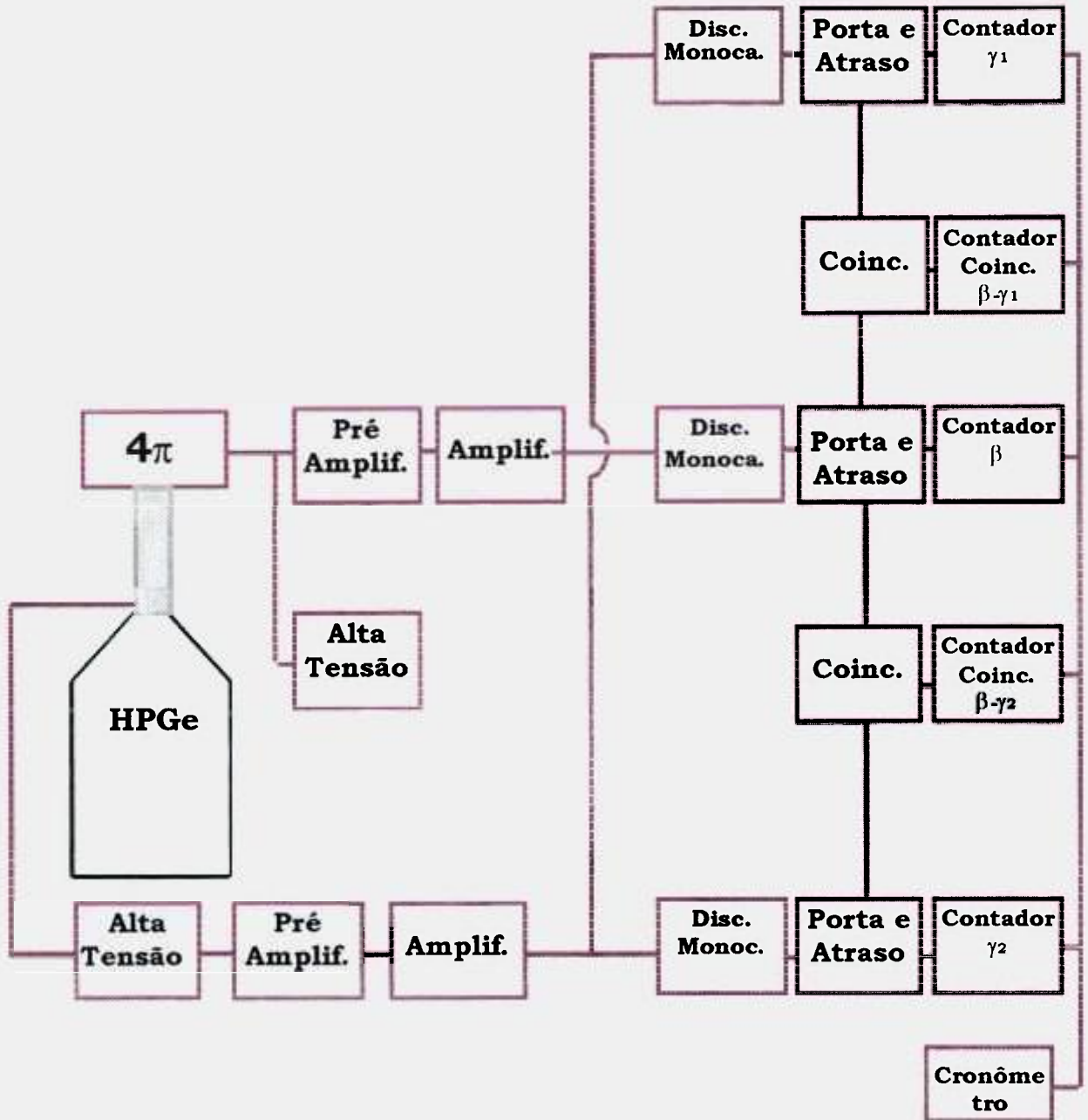
O tempo morto e tempo de resolução foram fixados eletronicamente por um módulo eletrônico semelhante ao da via beta. Desta maneira, os pulsos são enviados simultaneamente aos contadores gama e às vias de coincidência (uma para cada energia gama).

Via de Coincidência - A via de coincidência é constituída de um módulo eletrônico (Universal Coincidence) que registra os eventos provenientes das duas vias  $\beta$  e  $\gamma$  originados na mesma desintegração, sendo estabelecido um intervalo de tempo (tempo de resolução), onde os sinais são considerados coincidentes, e um contador para o registro desses eventos.

Este dispositivo de coincidência funciona como uma porta "E", registrando as coincidências apenas quando os pulsos provenientes das duas vias de detecção atingem a unidade no tempo pré-estabelecido, conhecido como tempo de resolução " $\tau_R$ ".



**Figura 3.2.:** Diagrama do arranjo eletrônico convencional utilizado na padronização do  $^{192}\text{Ir}$ .



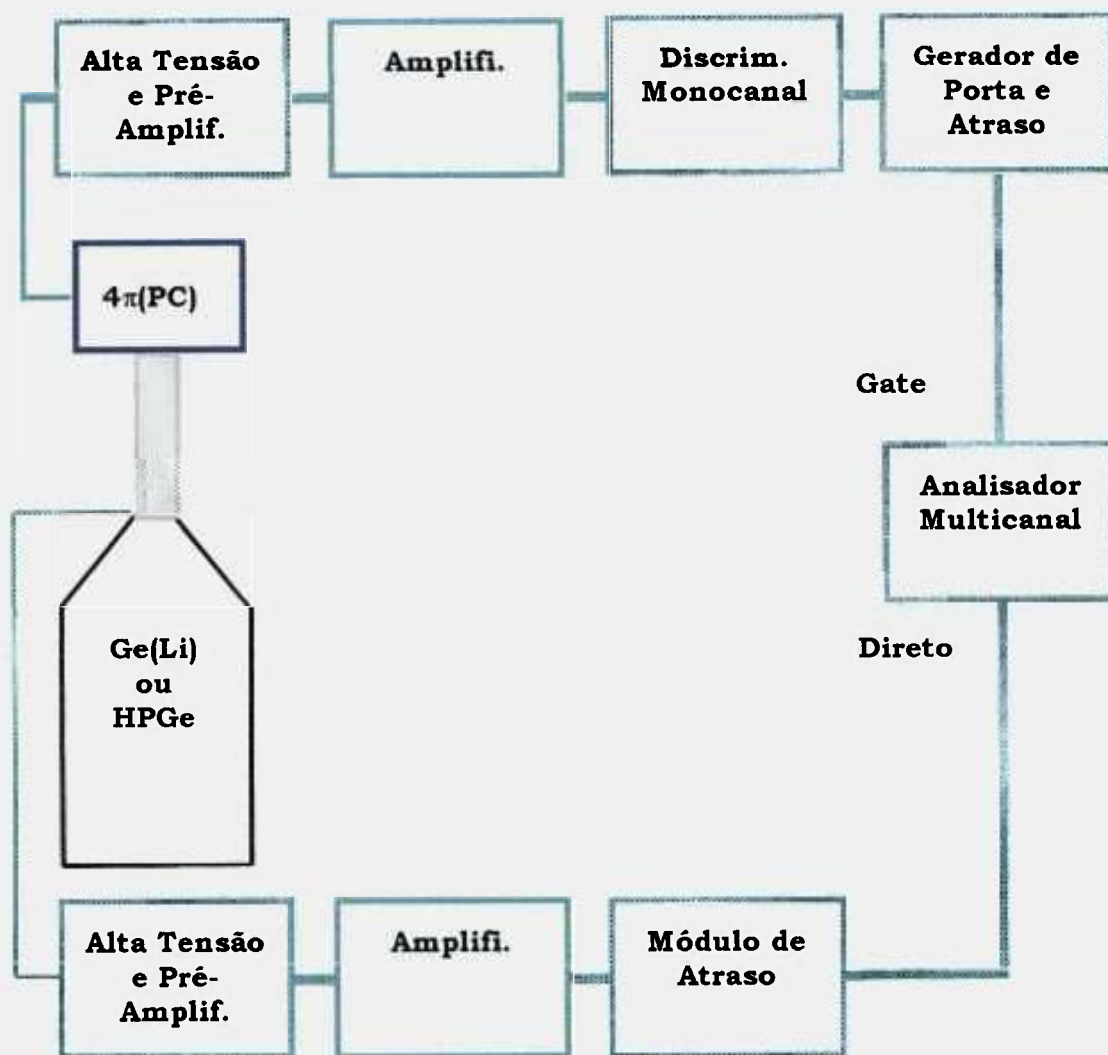
**Figura 3.3.:** Diagrama do arranjo eletrônico convencional utilizado na padronização do  $^{152}\text{Eu}$ .

As radiações simultâneas provenientes da desintegração radioativa estudada foram detectadas e processadas por detectores diferentes e passam por vários módulos eletrônicos, podendo ocasionar defasagem no tempo de chegada ao módulo de coincidência dos pulsos. Para corrigir este efeito, utilizou-se uma linha de atraso incorporada ao analisador monocanal, que coloca os pulsos das vias  $\beta$  e  $\gamma$  em fase, de modo que atinjam o módulo de coincidência ao mesmo tempo [Williams,1965;Moreira,2000].

Os contadores das cinco vias de detecção  $\beta$ ,  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  e coincidências 1 e 2 estavam ligados a um cronômetro digital.

### **3.3.2. SISTEMA ELETRÔNICO UTILIZADO NO MÉTODO ESPECTROSCÓPICO**

Neste sistema (figura 3.4) os pulsos provenientes do detector proporcional  $4\pi$  - via raios-X, após serem amplificados e discriminados são enviados a uma porta (gate) do analisador multicanal. Os pulsos provenientes do semicondutor Ge(Li) (utilizado na padronização do  $^{192}\text{Ir}$ ) ou HPGe (utilizado na padronização do  $^{186}\text{Re}$ ) - via  $\gamma$ , após serem amplificados, passam por um módulo de atraso e são enviados diretamente para o analisador multicanal. Com isso, pode-se obter as medidas dos espectros  $\gamma$  direto e em coincidência.



**Figura 3.4.:** Diagrama do arranjo eletrônico utilizado na padronização do  $^{192}\text{Ir}$  e do  $^{186}\text{Re}$ .

### 3.3.3. SISTEMA ELETRÔNICO TAC

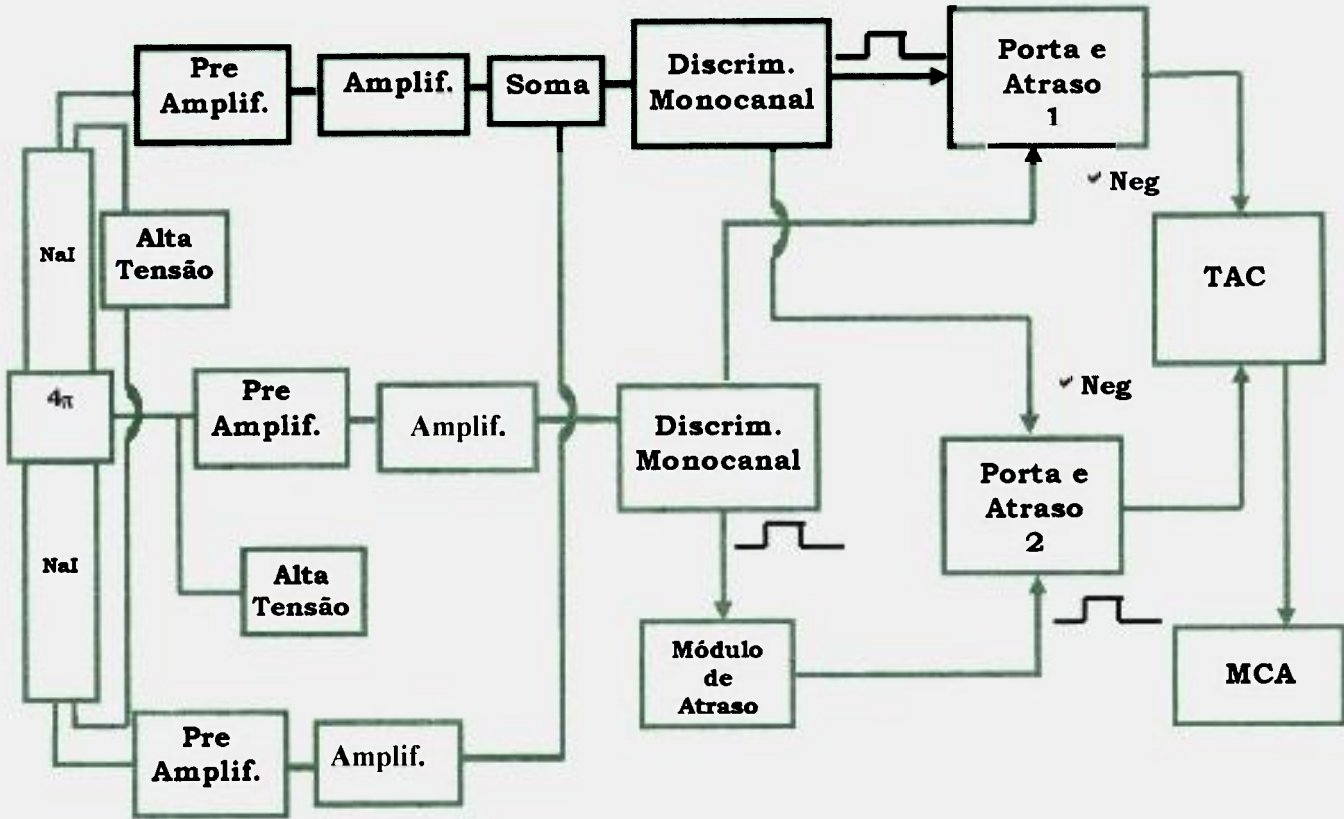
O sistema eletrônico TAC cujo diagrama é apresentado na figura 3.5, foi desenvolvido no LMN para este tipo de medida em coincidência, que pode utilizar uma ou mais janelas de discriminação gama. Este sistema faz uso de um conversor de tempo para amplitude de pulso (TAC) associado ao analisador multicanal (MCA), onde os pulsos provenientes do contador proporcional  $4\pi$ , após serem amplificados, passam por um discriminador (analisador de altura de pulso monocanal (SCA)), operado em modo integral.

Os pulsos selecionados são enviados simultaneamente a dois geradores de porta e atraso (Gate and Delay) 1 e 2.

De modo análogo ao da via beta, os pulsos provenientes dos cristais cintiladores NaI(Tl), após serem amplificados, passam pelo discriminador (SCA) para serem selecionados os intervalos de energia de interesse. Os pulsos selecionados são enviados simultaneamente aos mesmos geradores de porta e atraso 1 e 2).

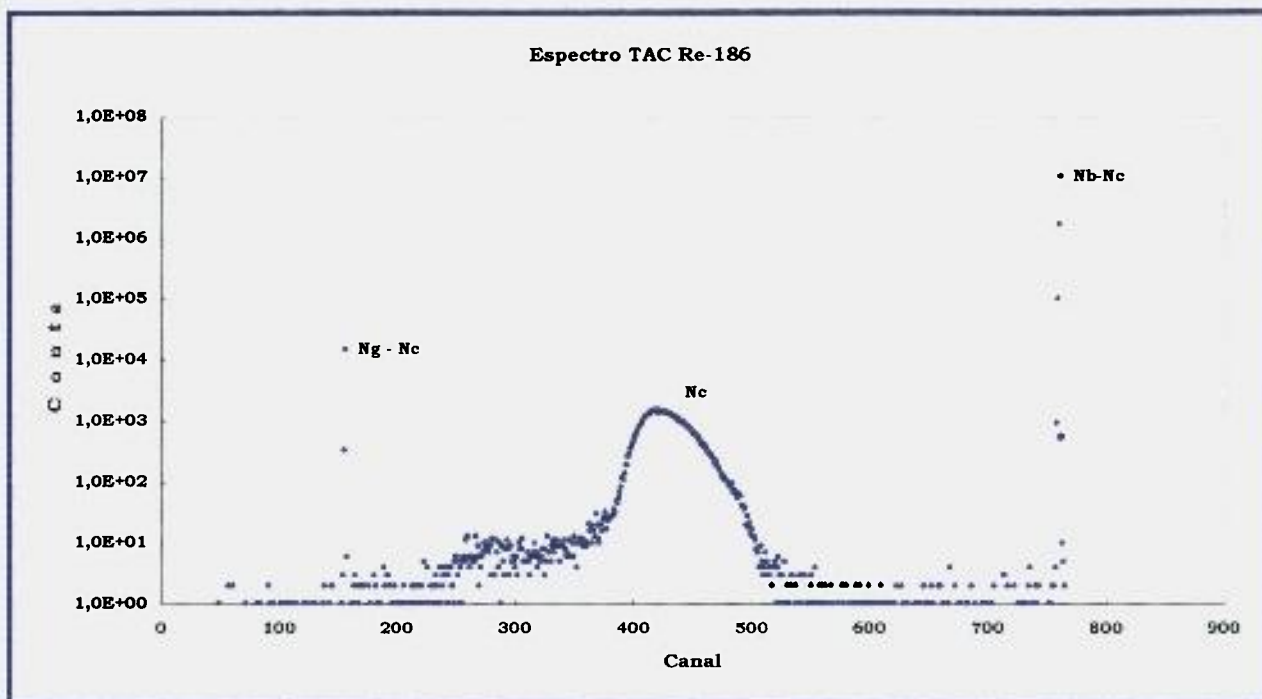
O gerador de porta e atraso 1 recebe os pulsos das vias beta e gama e os envia para a entrada "start" do TAC. O gerador de porta e atraso 2 recebe os pulsos das vias beta e gama atrasados por meio de módulos amplificadores de atraso (Delay Amplifier) e os envia para a entrada "stop" do TAC.

Os sinais "start-stop" dão origem no multicanal (MCA) aos picos beta, gama e da coincidência quando são detectados os eventos coincidentes.



**Figura 3.5.** : Diagrama do arranjo eletrônico TAC, utilizado na padronização do  $^{186}\text{Re}$ .

Na figura 3.6 é apresentado um espectro típico de saída do sistema eletrônico TAC, registrado pelo analisador multicanal, na medida do  $^{186}\text{Re}$ .



**Figura 3.6:** Espectro registrado pelo multicanal utilizando o sistema eletrônico TAC, para as medidas do  $^{186}\text{Re}$ . Onde  $N_g$ ,  $N_c$  e  $N_b$  são as taxas de contagens das vias gama, coincidência e beta, respectivamente. Cada canal corresponde a 10 ns.

### 3.4. MEDIDA DE TEMPO MORTO E TEMPO DE RESOLUÇÃO

Para o caso dos sistemas de coincidência que utilizam os sistemas eletrônicos convencionais, as taxas de contagens observadas devem ser corrigidas para perdas devido ao tempo morto dos detectores e do sistema eletrônico, e as coincidências devem ser corrigidas para coincidências espúrias ou acidentais que ocorrem no tempo de resolução pré-estabelecido, como descrito no item 2.4.

Nas medidas da atividade nos sistemas de coincidência convencionais acima descritos, os tempos mortos das vias  $\beta$ ,  $\gamma$  e os tempos

de resolução das vias de coincidência foram fixados eletronicamente no módulo gerador de porta e atraso. A seguir são apresentados os métodos experimentais utilizados para a medida destes parâmetros.

### 3.4.1. DETERMINAÇÃO DOS TEMPOS MORTOS $\beta$ E $\gamma$

O tempo morto é um tempo de parada imposto à eletrônica associada ao detector, para que este possa registrar dois eventos distintos. Este tempo deve ser maior que o tempo de resolução do detector e da eletrônica associada, de modo que se tenha um valor fixo que evite perdas de contagens reais. Seu valor é escolhido para que seja no mínimo duas vezes maior que o tempo de resolução.

O método experimental utilizado para medida do tempo morto dos sistemas de coincidência é uma variação do método das duas fontes, conhecido como "Método do Pulsador" [Baerg,1965].

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

O tempo morto foi determinado pela expressão [Baerg,1965]:

$$\tau = \frac{1}{n_f} \left\{ 1 - \left( \frac{n_{fp} - n_f}{n_p} \right)^{1/2} \right\} \quad (3.1)$$

Onde:

$n_f$  é a taxa de contagens por unidade de tempo da fonte radioativa

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

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

Nesta medida foi utilizada uma fonte radioativa de  $^{42}\text{K}$  com uma taxa de contagens da ordem de 12.000 cps, delimitando-se apenas o fotopico de 1524 keV e fixando-se a taxa do gerador utilizado (TIME MARK GENERATOR Modelo 429 - Marca Tektronix) em 50  $\mu\text{s}$ , ou 20.000 pps (pulsos por segundo). Com isso, se mediu as taxas de contagens  $n_f$ ,  $n_p$  e  $n_{fp}$  nas vias beta e gama do sistema.

O valor de tempo morto encontrado para os dois sistemas de coincidência, utilizando a eletrônica convencional foi de  $\tau_\beta = (3,04 \pm 0,17)$   $\mu\text{s}$  e  $\tau_\gamma = (2,94 \pm 0,17)$   $\mu\text{s}$ .

### 3.4.2. DETERMINAÇÃO DO TEMPO DE RESOLUÇÃO

O tempo de resolução é determinado pela contagem de coincidências acidentais produzidas por fontes não correlacionadas no tempo, incidindo no módulo de coincidência provenientes das duas vias de detecção. O tempo de resolução foi determinado por [Koskinas, 1988]:

$$\tau_R = \frac{N_{acc}}{2 \cdot N_\beta \cdot N_\gamma} \quad (3.2)$$

Onde:

$N_{acc}$  é a taxa de contagens acidentais

$N_{\beta}$  é a taxa de contagens da via  $\beta$ , onde utilizou-se uma fonte  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$  com aproximadamente 32.000 cps

$N_{\gamma}$  é a taxa de contagens da via  $\gamma$ , onde a fonte utilizada foi de  $^{137}\text{Cs}$  com 3.800 cps, posicionada no lado externo ao detector proporcional (foi utilizado o fotopico de 661 keV).

Variando-se as taxas de contagem através de discriminação eletrônica na via beta, foi possível se construir um gráfico, que relaciona as taxas de contagem medidas por meio de uma reta, cujo coeficiente angular permitiu calcular diretamente o valor do tempo de resolução.

O valor de tempo de resolução encontrado foi de  $\tau_R = (1,026 \pm 0,018)$   $\mu\text{s}$ .

### 3.5. ESPECTRÔMETRO REGe

O espectrômetro gama do LMN (Laboratório de Metrologia Nuclear) do IPEN/SP é constituído de um detector semiconductor de germânio com janela fina REGe (Reverse Electrode Germanium), em geometria coaxial, da marca Camberra, modelo GR1520, diâmetro 46,5 mm, comprimento 45,5 mm, resolução de 2 keV para a energia de 1,33 MeV e eficiência relativa de 15% .

Este tipo de detector com eletrodo reverso - REGe tem geometria similar aos outros detectores de germânio coaxial com uma importante diferença. Os eletrodos do REGe são opostos aos do detector coaxial

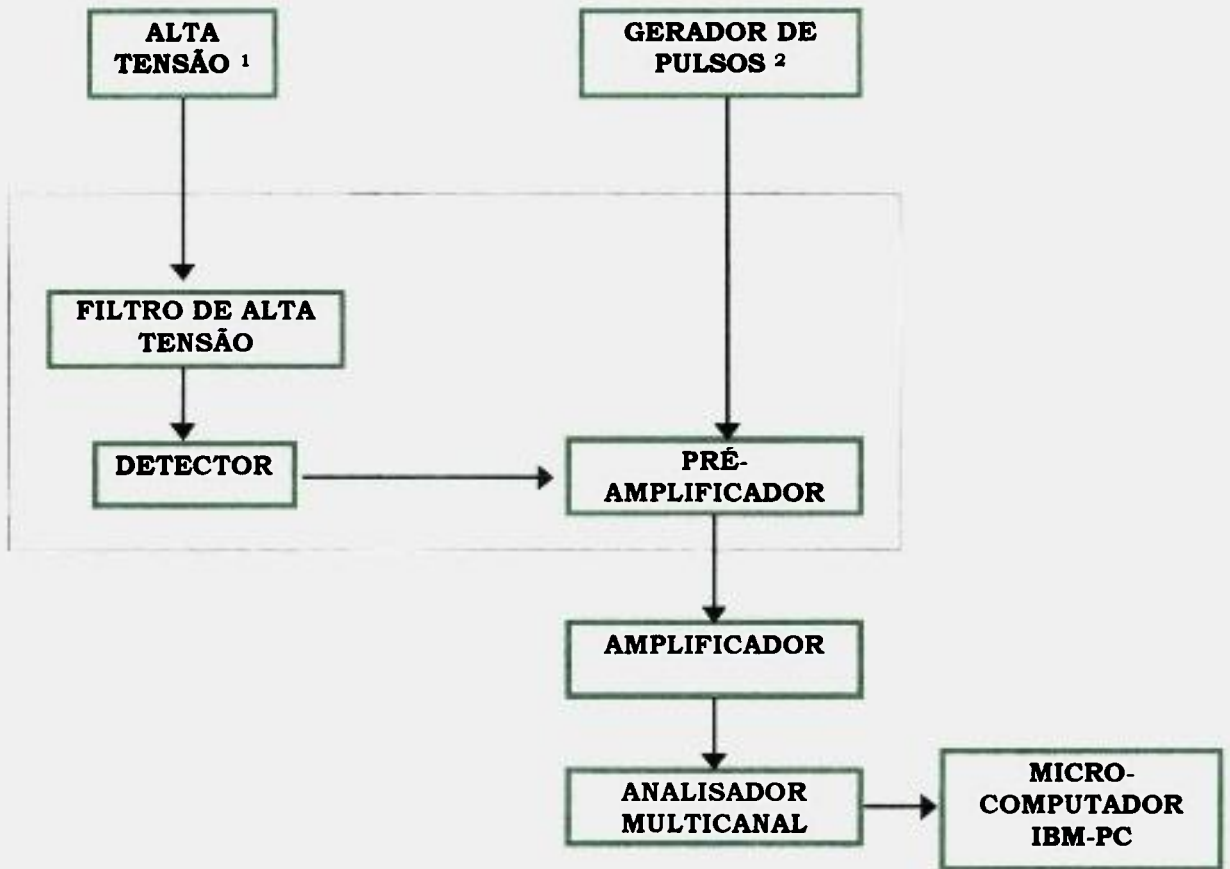
convencional, onde o eletrodo tipo-p (íon implantado de Boro) fica do lado externo e o contato tipo-n (Lítio difundido) fica do lado interno. Existem duas vantagens para este tipo de arranjo de eletrodos: - a espessura da janela (fina - intervalo de 5keV a 10 MeV) e sua resistência a danos causados pela radiação.

Junto ao cristal está posicionado o pré-amplificador, modelo 2002CLS e o filtro de alta tensão, constituindo uma única peça. Este conjunto também está montado em contato com um “dewar” com nitrogênio líquido, por meio de um “dedo-frio”, assim como descrito no item 3.2.2.

A tensão de operação foi de 4000 V (negativo).

### **3.5.1. SISTEMA ELETRÔNICO UTILIZADO**

O sistema eletrônico convencional acoplado ao espectrômetro REGe é mostrado na figura 3.7 que apresenta o diagrama de bloco do espectrômetro.



<sup>1</sup> Fonte de alta tensão - modelo ORTEC 459 - possui ajuste contínuo de 0 a 5 kV e estabilidade < 0,1%.

<sup>2</sup> Gerador de Pulsos - Modelo CAMBERRA 1501 - possui frequência 60 Hz, estabilidade 50 pulsos por minuto/volt/dia.

**Figura 3.7.:** Diagrama de bloco do sistema eletrônico acoplado ao espectrômetro REGe.

Os pulsos provenientes do detector passam por um amplificador modelo ORTEC 572, com uma constante de tempo de 2  $\mu$ s, saída unipolar e são registrados pelo Analisador Multicanal, placa Interwinner da Intertechnique, inserida em um microcomputador e gerenciada pelo programa Interwinner.

### **3.6. PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS**

#### **3.6.1. PREPARAÇÃO DAS FONTES UTILIZADAS NO SISTEMA DE COINCIDÊNCIAS**

As fontes radioativas utilizadas para medidas nos sistemas de coincidência, devem ser preparadas em substratos bem finos (filmes) para evitar a absorção das partículas beta.

Os substratos utilizados são filmes de COLLODION (nitrato de celulose) bem finos, com densidade superficial de 10 a 20  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ . O substrato utilizado é constituído de uma arandela de aço inox de 4 cm e 2,5 cm de diâmetro externo e interno, respectivamente. Sobre este substrato metálico adere-se o filme de COLLODION. Como o sistema utilizado neste trabalho (sistema de coincidências) tem como pré-requisito o uso de substratos condutores, o conjunto é metalizado com Au (densidade superficial de 10 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ).

As fontes são preparadas depositando-se sobre o centro do substrato alíquotas conhecidas da solução radioativa. As fontes devem ser finas e homogêneas para evitar perdas de contagens devido à auto-absorção. Entretanto, durante o processo de secagem, pode ocorrer a cristalização de resíduos visivelmente não uniformes. Para minimizar este efeito, as fontes foram submetidas a um tratamento apropriado:

- aplicação de um agente umectante para diminuir a formação de cristais grandes. Este agente é uma espécie de detergente que rompe a tensão superficial da gota e evita a formação de cristais. O agente utilizado foi o CYASTAT S.N. (concentração de 1%). Foi colocada uma gota desta solução após a deposição da solução radioativa.
- secagem em um dessecador.

A massa da solução radioativa foi determinada gravimetricamente pelo método do picnômetro[Campion,1975], que consiste na determinação da massa da alíquota pela diferença obtida da pesagem do picnômetro que contém a solução radioativa antes e depois da deposição da alíquota no substrato. A balança analítica utilizada na pesagem foi da Marca Mettler, modelo M5SA, com uma incerteza de  $\pm 20 \mu\text{g}$ .

### **3.6.1.1. PREPARAÇÃO DO $^{192}\text{Ir}$**

Para a padronização do  $^{192}\text{Ir}$  foi utilizada uma alíquota de uma solução matriz fornecida pelo Electrotechnical Laboratory (ETL-Japão), com uma composição química de  $\text{IrNa}_2\text{Cl}_6$  em 0,1 N de HCl, tendo uma atividade de 2,05MBq , massa  $m = 5,11770 \text{ g}$ , em 01 de Setembro de 1997.

A partir dessa solução, foram preparadas cerca de 10 fontes para a medida no sistema de coincidência, depositando-se uma gota da solução em um substrato de Collodion.

As fontes foram preparadas de acordo com o procedimento descrito no item 3.6.1.

Para medida no espectrômetro REGe foram preparadas ampolas contendo 1 ml da mesma solução radioativa utilizada na fabricação das fontes. As massas destas ampolas são determinadas pelo mesmo método citado no item anterior (3.6.1).

### **3.6.1.2. PREPARAÇÃO DO $^{152}\text{Eu}$**

Para a padronização do  $^{152}\text{Eu}$  foi utilizada uma alíquota de uma solução matriz fornecida pelo BIPM (Bureau International des Poids et Measures) da França, na forma de 26  $\mu\text{g}$  de  $\text{EuCl}_3/\text{ml}$   $\text{HCl}$  1M com massa de 0,891321g e uma atividade específica de 562,087 kBq/g em 01/04/2000 .

A partir dessa solução, foram preparadas cerca de 15 fontes para a medida no sistema de coincidência, depositando-se uma gota da solução em um substrato de Collodion.

As fontes foram preparadas de acordo com o procedimento descrito no item 3.6.1.

De modo análogo ao descrito no item 3.6.1.1, as ampolas foram preparadas contendo 1 ml da mesma solução radioativa utilizada na fabricação das fontes.

### 3.6.1.3. PRODUÇÃO E PREPARAÇÃO DO $^{186}\text{Re}$

Para a padronização do  $^{186}\text{Re}$ , este foi produzido por irradiação de 100 $\mu\text{g}$  de óxido de Rênio natural (marca Fluka Chemika, com 99,9% de pureza) selado em tubo de quartzo e colocado em tubo de alumínio selado, no reator de pesquisa tipo piscina, de 2 MW de potência do IPEN/CNEN-SP (IEA-R1), em um fluxo de nêutrons térmicos de  $2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ , pela reação  $^{185}\text{Re}(n,\gamma)^{186}\text{Re}$ . O tempo de irradiação foi de 30 horas e o tempo de "resfriamento" (espera) foi de aproximadamente 14 dias, necessário para que ocorresse o decaimento das impurezas até cerca de 0,006% do nuclídeo de interesse produzidas por reações secundárias, como  $^{188}\text{Re}$  ( $T_{1/2} = 17 \text{ h}$ ) [Schönfeld,1994].

Para a preparação das fontes de  $^{186}\text{Re}$ , o tubo de quartzo contendo 100  $\mu\text{g}$  do material radioativo foi aberto e o óxido foi dissolvido com 20 mg de  $\text{HNO}_3$  concentrado (1 M) e lavado com água destilada totalizando um volume de 2 ml com uma concentração de 0,1M.

Uma alíquota dessa solução foi depositada em um substrato de COLLODION, preparando-se dessa maneiras várias fontes para medida no sistema de coincidência.

As ampolas foram preparadas contendo 1 ml da mesma solução radioativa utilizada na fabricação das fontes.

#### 4. ESPECTROMETRIA $\gamma$ COM DETECTOR SEMICONDUTOR DE GERMÂNIO (REGe)

A identificação de um radionuclídeo é feita a partir da calibração do espectro em energia, fornecido pelo detector semicondutor, 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 seus centróides (canal) à energia correspondente. Vários fatores podem afetar a qualidade das medidas feitas em um espectrômetro gama, tais como: geometria do arranjo experimental, preparação das fontes utilizadas, etc. Contudo a precisão dessas medidas depende da precisão da curva de calibração em eficiência, em função da energia, e também da precisão dos parâmetros de decaimento dos nuclídeos utilizados.

Na medida da probabilidade de emissão da radiação  $\gamma$  por decaimento, em um espectrômetro gama, um dos parâmetros mais importantes é o conhecimento da eficiência de detecção no intervalo de energia de interesse e na geometria da amostra

A eficiência  $\epsilon_{\gamma}(E)$  é denominada eficiência de pico de absorção total e corresponde ao número de eventos registrados por fóton emitido pela fonte.  $\epsilon_{\gamma}(E)$  é expressa pela equação:

$$\epsilon_{\gamma} = \frac{S(E)}{I_{\gamma} \cdot [E] \cdot A \cdot T \cdot f} \quad (4.1)$$

Onde:

- S área sob o pico de absorção total para a energia  $\gamma$  considerada,
- $I_{\gamma}$  probabilidade de emissão  $\gamma$  por decaimento da linha considerada,

- A atividade da fonte,
- T tempo de contagem,
- f fatores de correção (item 4.2).

A eficiência do pico de absorção total, denominada a partir de agora apenas de eficiência, foi obtida pela medida de fontes radioativa padrão, isto é, que têm sua atividade e intensidade gama conhecidas com boa exatidão. A partir da medida das fontes padrão, a curva de calibração em eficiência foi determinada, cujos parâmetros são geralmente obtidos por ajuste polinomial pelo método de mínimos quadrados.

A curva de eficiência em função da energia pode ser representada genericamente como:

$$\ln \epsilon_{\gamma}(E) = \sum_{k=0}^n a_k (\ln E)^k \quad (4.2)$$

onde:

- n grau do polinômio ajustado
- $a_k$  coeficientes do ajuste.

#### **4.1. ÁREA SOB O PICO DE ABSORÇÃO TOTAL**

Para o cálculo da área, o método adotado [Kokta,1973] foi o da integração numérica, onde obtém-se a área, da soma direta das contagens entre limites pré-estabelecidos, subtraindo-se a contribuição da radiação de fundo (onde cada pico está superposto), canal por canal.

O intervalo estabelecido foi  $[P - 3D, P + 3D]$  onde  $P$  é a centróide do pico e  $D$  a resolução FWHM - (largura a meia-altura).

A região de contagem de fundo adotada foi considerada suficientemente afastada do pico de modo a não conter contagens provenientes da fonte e suficientemente próxima para evitar a contagem de outros picos do espectro de energia obtido em um multicanal, com energias próximas.

A área sob o pico de absorção total foi calculada segundo a expressão [Dias, 1992]:

$$S = \sum_{k_2+1}^{k_3-1} C_i - (S_B \cdot F_k) \quad (4.3)$$

onde:

$C_i$  contagens do canal  $i$ ,

$S_B$  área sob o espectro das contagens de fundo dada por [Dias, 1992]:

$$S_B = \sum_{k_1}^{k_2} C_i + \sum_{k_3}^{k_4} C_i \quad (4.4)$$

$F_k$  fator que leva em consideração o número de canais do pico de absorção total e o número de canais da região de fundo.

E os canais  $K_1$ ,  $K_2$ ,  $K_3$  e  $K_4$  correspondem a:

$K_p$  canal do centróide,

$K_1 =$  início da contagem de fundo =  $K_p - 3D$

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

$K_3 =$  fim do pico de absorção total =  $K_p + 2D$

$K_4 =$  fim da contagem de fundo =  $K_p + 3D$

A área sob o pico de absorção total e sua incerteza associada são calculadas e fornecidas pelo programa ALPINO [Dias, 2000].

## **4.2. CORREÇÕES APLICADAS**

A eficiência de um sistema de medidas (ou detector) pode ser definida como o número de contagens detectadas (corrigidas para contagens da radiação de fundo) pelo número de desintegrações da fonte. Conseqüentemente, todas as interações da radiação que ocorrem entre sua fonte de origem e sua detecção, como um pulso elétrico na saída do detector, podem influenciar na eficiência. Isto é indicado pelos fatores de correção tal como fator geométrico, fator de atenuação, absorção na fonte etc.

### **4.2.1. FATOR GEOMÉTRICO E DE ATENUAÇÃO**

Devido ao fato das soluções utilizadas neste trabalho serem preparadas em ampolas de vidro semelhantes às ampolas padrão e com soluções aquosas com mesmo volume, os fatores de correção para efeito geométrico e de atenuação foram considerados iguais a um (1). Somente as incertezas devidas à variação na espessura do vidro das ampolas e na altura do líquido foram consideradas, sendo estas incertezas fornecidas diretamente do programa para cálculo da atividade em função da eficiência (ALPINO) [Dias, 2000].

### 4.2.2. DECAIMENTO

A atividade da amostra (**A**) num determinado instante é função da atividade inicial **A<sub>0</sub>**, do tempo **t** transcorrido entre a sua calibração ou produção e o instante da medida, e da meia-vida, **T<sub>1/2</sub>**, desse nuclídeo. Isto pode ser expresso pela equação:

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \quad (4.5)$$

onde:

$\lambda$  é a constante de decaimento do radionuclídeo,  $\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$ .

### 4.2.3. TEMPO MORTO E EMPILHAMENTO DE PULSOS

Para corrigir os efeitos de tempo morto e de empilhamento de pulsos foi adotado o método do pulsador [Debertin,1988]. Pulsos eletrônicos de um pulsador de precisão, com baixa frequência conhecida **f** (60 Hertz), são enviados a um pré-amplificador juntamente com os pulsos provenientes do detector. A posição do pico do pulsador no espectro acumulado é selecionada tal que o pico do pulsador não interfira com nenhum outro pico existente no espectro.

Pelo número de contagens do pico do pulsador, pode-se calcular esta correção pela relação:

$$f_t = \frac{S_{pbc}}{S_{ponte}} \quad (4.6)$$

onde:

$S_{pBG}$  é a área do pico do pulsador real (60 contagens por segundo),

$S_{pfonte}$  é a área do pico do pulsador no espectro da fonte.

#### **4.2.4. EFEITO SOMA**

A correção para o efeito soma no detector de REGe, como a distância fonte-detector é grande (aproximadamente 17,23 cm), foi considerada desprezível (< 0,5%) [Takeda,2001].

#### **4.3. CURVA DE CALIBRAÇÃO EM EFICIÊNCIA**

A curva de calibração em eficiência do espectrômetro gama utilizada neste trabalho, foi determinada utilizando-se ampolas padrão, contendo soluções previamente calibradas no laboratório LMN [Fonseca,1997]. O intervalo de energia considerado foi de 81,00 keV a 1408,02 keV.

Os parâmetros de ajuste da curva de eficiência em função da energia foram determinados por ajuste polinomial de grau quatro do tipo:

$$Y = a_0 + a_1X + a_2X^2 + a_3X^3 + a_4X^4$$

pelo programa LOGFIT [Dias,1997], utilizando o método dos mínimos quadrados. Os erros parciais em todos os fatores envolvidos (item 4.2) foram considerados utilizando a metodologia de matriz de covariância. A

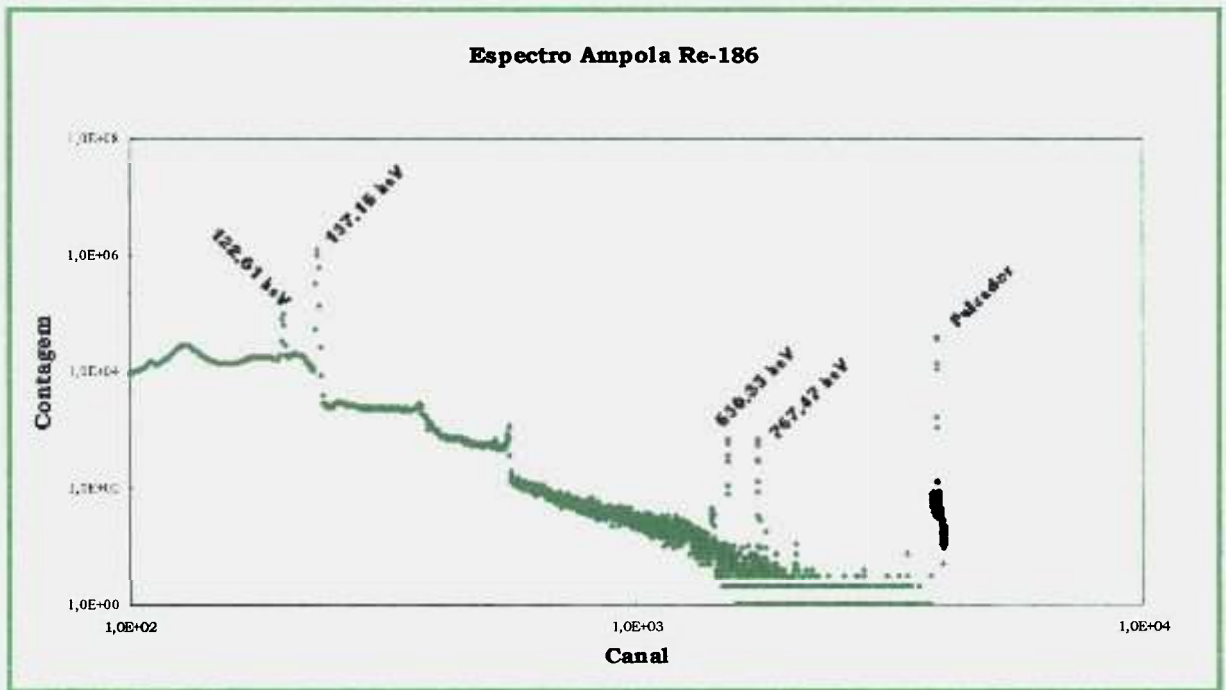
escolha do grau do polinômio foi baseada no valor do  $\chi^2$  reduzido com 13 graus de liberdade.

#### 4.4. MEDIDA DAS AMOSTRAS

As ampolas contendo as soluções radioativas estudadas neste trabalho continham aproximadamente 1 ml ou  $8,0 \pm 0,5$  mm de altura do líquido. A espessura da ampola de vidro foi de aproximadamente  $0,6 \pm 0,2$  mm. O tempo de contagem foi de 50.000 s para as ampolas de  $^{192}\text{Ir}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  e  $^{186}\text{Re}$ . Esse tempo foi escolhido de modo a se obter uma boa estatística de contagem sob os picos de absorção total de interesse.

A área sob o pico de absorção foi calculada pelo programa ALPINO [Dias, 2000], para cada linha de energia de interesse; a atividade das ampolas padrão, meia-vida, data de referência, data de medida, energia e probabilidade de emissão gama por decaimento, assim como os fatores de correção apresentados no item 4.2, são dados de entrada do programa. Este programa tem como opção de saída a atividade, a eficiência ou a área dos picos de absorção total da energia desejada.

Na figura 4.1 é apresentado um espectro típico fornecido pelo espectrômetro REGe, para a ampola de  $^{186}\text{Re}$ .



**Figura 4.1:** Espectro da ampola de  $^{186}\text{Re}$ , medida no espectrômetro REGe.

## 5. RESULTADOS OBTIDOS E ANÁLISE DOS DADOS

### 5.1. RESULTADOS DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO DO $^{192}\text{Ir}$

A padronização do  $^{192}\text{Ir}$ , como descrito no item 2.1, foi obtida pela aplicação da técnica de extrapolação linear da eficiência, utilizando-se dois sistemas de coincidência, um forneceu a taxa de desintegração por meio das medidas de coincidência dos raios- $\gamma$  provenientes do ramo  $\beta^-$  e o outro forneceu o fator de correção para a contribuição do ramo de captura no detector beta. Este fator foi aplicado no cálculo final da atividade.

Todas as incertezas foram calculadas utilizando-se a metodologia de análise de covariâncias apresentada no item 1.5.

A atividade obtida pelo espectrômetro REGe foi de  $(261,99 \pm 1,81)$  kBq.g<sup>-1</sup>.

O parâmetro de eficiência foi medido no intervalo de 65% a 93% utilizando-se absorvedores externos, perfazendo um total de 21 medidas, para cada um dos intervalos de energia gama selecionados. O tempo de cada medida foi de aproximadamente 2000 segundos.

As medidas foram analisadas pelo programa DILUIP7 [Dias,2000], desenvolvido no LMN em linguagem Basic, que fornece o valor da atividade das fontes e a eficiência dos detectores, aplicando as correções para radiação de fundo, tempo morto, tempo de resolução e decaimento, de acordo com os métodos descritos no item 2.4.

Nas tabelas 5.1 e 5.2 são apresentados: a eficiência de detecção  $\beta$ , o parâmetro de ineficiência  $[(1-N_c/N_\gamma) / N_c/N_\gamma]$  e a razão  $N_\beta N_\gamma/N_c$  com suas respectivas incertezas, resultados estes obtidos para as duas janelas de discriminação gama feitas no sistema  $4\pi\beta(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}\gamma$ .

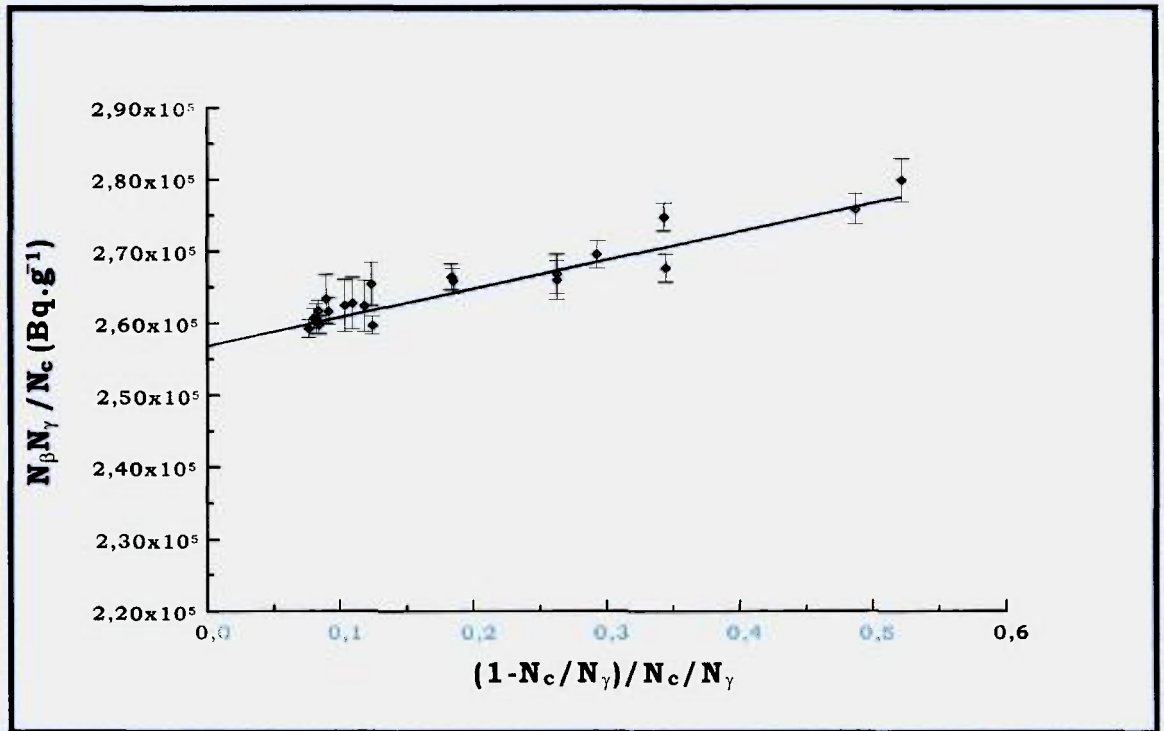
**Tabela 5.1:** Valores obtidos para a janela de discriminação  $\gamma_1$ .

Medida	$N_c/N_\gamma$	$(1-N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$	$N_\beta N_\gamma/N_c$ (Bq.g <sup>-1</sup> )	$\sigma\%$
1	9,159E-01	9,181E-02	2,617E+05	0,70
2	9,256E-01	8,039E-02	2,607E+05	0,52
3	8,891E-01	1,248E-01	2,597E+05	0,48
4	9,221E-01	8,451E-02	2,599E+05	0,48
5	9,227E-01	8,377E-02	2,617E+05	0,55
6	9,288E-01	7,667E-02	2,593E+05	0,47
7	8,896E-01	1,241E-01	2,654E+05	1,13
8	8,436E-01	1,854E-01	2,659E+05	0,67
9	8,446E-01	1,840E-01	2,665E+05	0,67
10	7,434E-01	3,451E-01	2,677E+05	0,72
11	7,917E-01	2,632E-01	2,660E+05	1,01
12	7,916E-01	2,633E-01	2,669E+05	1,03
13	7,443E-01	3,436E-01	2,747E+05	0,69
14	7,732E-01	2,933E-01	2,695E+05	0,71
15	6,723E-01	4,874E-01	2,758E+05	0,76
16	6,570E-01	5,221E-01	2,798E+05	1,07
17	9,174E-01	9,002E-02	2,634E+05	1,30
18	9,240E-01	8,229E-02	2,607E+05	1,53
19	9,011E-01	1,098E-01	2,628E+05	1,36
20	9,058E-01	1,040E-01	2,625E+05	1,38
21	8,939E-01	1,187E-01	2,624E+05	1,34

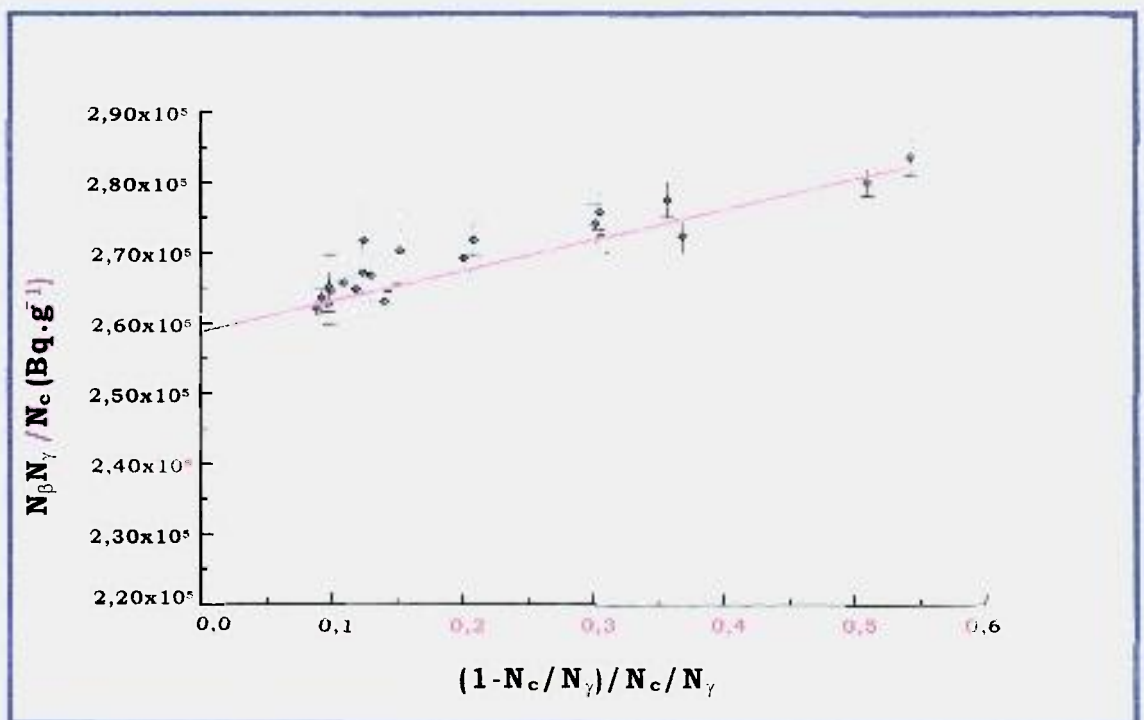
**Tabela 5.2:** Valores obtidos para a janela de discriminação  $\gamma_2$ .

<b>Medida</b>	<b><math>N_c/N_\gamma</math></b>	<b><math>(1-N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma</math></b>	<b><math>N_\beta N_\gamma/N_c</math> (Bq.g<sup>-1</sup>)</b>	<b><math>\sigma\%</math></b>
1	9,018E-01	1,090E-01	2,658E+05	1,23
2	9,153E-01	9,254E-02	2,637E+05	0,45
3	8,771E-01	1,402E-01	2,633E+05	0,51
4	9,117E-01	9,683E-02	2,628E+05	0,46
5	9,108E-01	9,792E-02	2,652E+05	0,80
6	9,185E-01	8,877E-02	2,622E+05	0,39
7	8,847E-01	1,303E-01	2,669E+05	1,47
8	8,327E-01	2,008E-01	2,693E+05	0,71
9	8,277E-01	2,081E-01	2,719E+05	0,86
10	7,306E-01	3,688E-01	2,724E+05	0,92
11	7,682E-01	3,018E-01	2,741E+05	1,01
12	7,661E-01	3,053E-01	2,757E+05	0,90
13	7,367E-01	3,574E-01	2,775E+05	0,88
14	7,652E-01	3,068E-01	2,724E+05	0,81
15	6,624E-01	5,097E-01	2,799E+05	0,67
16	6,481E-01	5,429E-01	2,836E+05	0,91
17	8,890E-01	1,248E-01	2,718E+05	1,66
18	9,098E-01	9,910E-02	2,647E+05	1,86
19	8,941E-01	1,185E-01	2,649E+05	1,43
20	8,896E-01	1,241E-01	2,673E+05	1,63
21	8,678E-01	1,523E-01	2,703E+05	1,74

Com esses dados pôde-se construir as curvas de  $N_\beta N_\gamma/N_c$  versus o parâmetro de ineficiência,  $(1-N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$ , para as janelas  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  (item 2.1.2.1), apresentadas nas figuras 5.1 e 5.2, respectivamente. Os pontos cheios correspondem aos dados experimentais com as respectivas barras de erros e a linha contínua corresponde à reta ajustada.



**Figura 5.1:** Curva de extrapolação  $N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$  versus  $(1-N_c/N_{\gamma})/N_c/N_{\gamma}$ , para janela  $\gamma_1$ .



**Figura 5.2:** Curva de extrapolação  $N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$  versus  $(1-N_c/N_{\gamma})/N_c/N_{\gamma}$ , para janela  $\gamma_2$ .

Na tabela 5.3.1 e 5.3.2 são apresentadas as incertezas parciais na razão  $N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$ , para as duas janelas  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  selecionadas, e os fatores de correlação considerados no ajuste. Todos os erros foram normalizados pela raiz quadrada do  $\chi^2$ . Com isso, o valor de  $\chi^2$  reduzido para a janela  $\gamma_1$  foi 0,999 e para  $\gamma_2$  foi 1,003. A escolha do grau do polinômio foi feita utilizando-se o Teste F de Snedecor [Atalla,1978] obtido pelo programa gráfico Microcal Origin 4.0, onde se verifica se há melhoria no aumento do grau do polinômio. Foi ajustado um polinômio de grau 1 para as duas janelas gama selecionadas.

Os parâmetros dos ajustes das curvas de extrapolação, com suas incertezas associadas, obtidos pelo método dos mínimos quadrados utilizando-se o programa LINFIT [Dias,1999] (desenvolvido no laboratório LMN em linguagem FORTRAN e que utiliza a metodologia de matriz de covariância) são apresentados na tabela 5.4. Os valores dos parâmetros **a** e **b** obtidos na literatura[Firestone,1996] e do fator  $f_x$  são apresentados na tabela 5.5. O elevado erro no fator  $f_x$  (cerca de 15%) é devido a estatística da área sob o fotopico de absorção total da transição  $\gamma$  do Ósmio obtida no detector de Ge(Li). Entretanto, sua contribuição na atividade é muito pequena, pois este é multiplicado pelo parâmetro **b**.

**Tabela 5.3.1:** Incertezas parciais consideradas no ajuste da curva de extrapolação para janela  $\gamma_1$ .

<b>Medidas</b>	$\sigma_{BQ\gamma}\%$	$\sigma_{massa}\%$	$\sigma_{est}\%$	$\sigma_{correl}\%$	$\sigma_{exp}\%$
1	0,05	0,43	0,47	0,28	0,06
2	0,06	0,42	0,21	0,19	0,08
3	0,07	0,41	0,13	0,18	0,08
4	0,07	0,41	0,17	0,17	0,08
5	0,05	0,41	0,13	0,32	0,08
6	0,06	0,41	0,13	0,16	0,09
7	0,15	0,42	0,94	0,35	0,25
8	0,14	0,42	0,30	0,29	0,29
9	0,17	0,42	0,17	0,33	0,33
10	0,13	0,42	0,30	0,35	0,33
11	0,25	0,42	0,73	0,37	0,34
12	0,18	0,42	0,77	0,37	0,35
13	0,08	0,25	0,43	0,31	0,35
14	0,12	0,25	0,43	0,34	0,37
15	0,07	0,16	0,60	0,23	0,38
16	0,05	0,16	0,94	0,30	0,38
17	0,24	0,17	0,30	0,52	1,12
18	0,46	0,24	0,73	0,54	1,12
19	0,41	0,17	0,47	0,47	1,10
20	0,46	0,16	0,43	0,47	1,12
21	0,19	0,13	0,47	0,52	1,12
<b>Fator de</b>	0	1	0	0	1
<b>Correlação</b>					

**Tabela 5.3.2:** Incertezas parciais consideradas no ajuste da curva de extrapolação para janela  $\gamma_2$ .

<b>Medidas</b>	$\sigma_{BG, \%}$	$\sigma_{massa \%}$	$\sigma_{est \%}$	$\sigma_{correl \%}$	$\sigma_{exp \%}$
1	0,31	0,29	1,03	0,52	0,04
2	0,12	0,28	0,23	0,24	0,05
3	0,20	0,28	0,29	0,24	0,05
4	0,28	0,27	0,11	0,20	0,06
5	0,24	0,28	0,60	0,38	0,06
6	0,07	0,27	0,17	0,19	0,06
7	0,22	0,28	1,35	0,43	0,17
8	0,36	0,28	0,32	0,40	0,20
9	0,31	0,28	0,54	0,46	0,22
10	0,33	0,28	0,57	0,53	0,22
11	0,64	0,28	0,40	0,56	0,23
12	0,41	0,28	0,46	0,55	0,23
13	0,25	0,17	0,63	0,48	0,24
14	0,29	0,17	0,49	0,49	0,25
15	0,21	0,11	0,46	0,35	0,25
16	0,22	0,11	0,69	0,47	0,25
17	0,98	0,12	0,89	0,66	0,75
18	1,18	0,16	1,03	0,64	0,75
19	0,46	0,11	0,97	0,58	0,74
20	1,12	0,11	0,69	0,59	0,75
21	0,64	0,09	1,26	0,68	0,75
<b>Fator de</b>	0	1	0	0	1
<b>Correlação</b>					

Onde:

$\sigma_{BG\gamma}$	incerteza na radiação de fundo da via gama
$\sigma_{massa}$	incerteza na determinação da massa da fonte
$\sigma_{est}$	incerteza estatística nas contagens
$\sigma_{correl}$	incerteza na correlação entre as taxas de contagem $\beta$ , $\gamma$ e coincidências
$\sigma_{exp}$	incerteza na correção de decaimento.

**Tabela 5.4:** Parâmetros dos ajustes das curvas de extrapolação da eficiência para o  $^{192}\text{Ir}$ , obtidos para os dois intervalos de energia gama selecionados, com suas respectivas matrizes de covariância.

Janela $\gamma$	Parâmetros ( $\times 10^3$ )	Matriz de Covariância ( $\times 10^3$ )	
$\gamma_1$	<b>A<sub>1</sub></b>	<b>(256,8 ± 1,1)</b>	<b>1260,83</b>
	<b>B<sub>1</sub></b>	<b>(39,5 ± 2,6)</b>	<b>-1201,30</b>
$\gamma_2$	<b>A<sub>2</sub></b>	<b>(258,8 ± 1,0)</b>	<b>956,88</b>
	<b>B<sub>2</sub></b>	<b>(43,2 ± 3,1)</b>	<b>-1745,96</b>
			<b>7012,14</b>
			<b>9850,84</b>

**Tabela 5.5:** Fator  $f_x$  e parâmetros do esquema de decaimento **a** e **b** obtidos da literatura.

Parâmetros	Valores
<b>Fator <math>f_x</math></b>	<b>0,412 ± 0,064</b>
<b>a (ramo <math>\beta^-</math>)</b>	<b>0,9524 ± 0,0004</b>
<b>b (ramo CE)</b>	<b>0,0476 ± 0,0004</b>

As taxas de desintegração do  $^{192}\text{Ir}$  foram calculadas pela equação 2.8, apresentada no item 2.1.2.2, uma para cada um dos intervalos de energia gama selecionados, e o valor final da atividade foi obtido pela média entre os resultados. Sua incerteza associada foi calculada pela equação:

$$\sigma_{\text{No}} = \sqrt{\sigma_{\text{A1}}^2 + \sigma_{\text{A2}}^2 + 2\rho\sigma_{\text{A1}}\sigma_{\text{A2}}} \quad (5.1)$$

Onde:

- $\sigma_{\text{No}}$  incerteza na atividade final
- $\sigma_{\text{A1}}$  incerteza na taxa de desintegração para a janela  $\gamma_1$ , que além de levar em consideração todas as incertezas parciais relacionadas na tabela 5.3.1., também contém as incertezas associadas aos parâmetros a e b e ao fator  $f_x$ , com suas devidas correlações
- $\sigma_{\text{A2}}$  incerteza na taxa de desintegração para a janela  $\gamma_2$ , que além de levar em consideração todas as incertezas parciais relacionadas na tabela 5.3.2., também contém as incertezas associadas aos parâmetros a e b e ao fator  $f_x$ , com suas devidas correlações
- $\rho$  coeficiente de correlação entre ambos parâmetros, = 1.

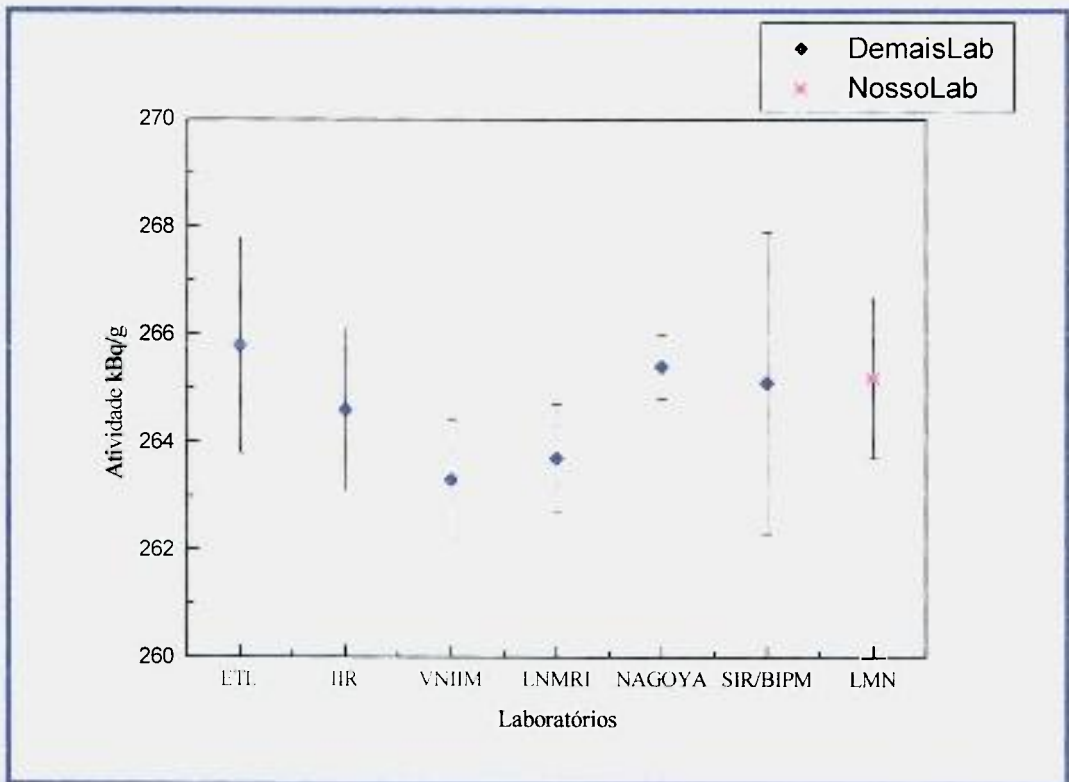
A tabela 5.6 apresenta a taxa de desintegração do  $^{192}\text{Ir}$ , juntamente com os resultados obtidos pelos laboratórios: BIPM (SIR) e LNMRI (IRD/RJ). A data de referência adotada foi 15 de outubro de 1997 às 00h00 UT.

Na figura 5.3 é apresentado um gráfico dos resultados dos laboratórios participantes da Comparação Internacional publicado pelo LMNRI [Iwahara,1998], no qual foi incluído o resultado obtido neste trabalho.

**Tabela 5.6:** Taxa de desintegração do  $^{192}\text{Ir}$ , com sua respectiva incerteza, comparada com os valores obtidos pelos outros laboratórios.

Referência	Condições	Taxa de desintegração (kBq.g <sup>-1</sup> )
<b>Presente trabalho</b>	<b><math>4\pi\beta\text{-}\gamma</math> com NaI(Tl)</b>	<b><math>265,2 \pm 1,5</math></b>
	<b><math>4\pi\beta\text{-}\gamma</math> com NaI(Tl)</b>	<b><math>263,7 \pm 1,1</math></b>
	<b><math>4\pi\gamma</math> (IC)</b>	<b><math>265,1 \pm 2,8</math></b>

IC = câmara de ionização



**Figura 5.3:** Resultado da atividade do  $^{192}\text{Ir}$  para a comparação internacional.

Os resultados obtidos na padronização do  $^{192}\text{Ir}$  utilizando-se duas janelas  $\gamma$  distintas foram concordantes dentro das incertezas experimentais. A aplicação do fator de correção  $f_x$  para a influência do ramo de captura eletrônica proposto neste trabalho demonstrou ser suficiente e necessário para a obtenção da atividade final, que está de acordo com os resultados dos demais laboratórios como apresentado na figura 5.3.

## 5.2. RESULTADOS DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO DO $^{152}\text{Eu}$

A padronização do  $^{152}\text{Eu}$ , como descrito no item 2.2, foi obtida pela aplicação da técnica de extrapolação bi-paramétrica da eficiência. A taxa de desintegração  $N_0$  foi determinada variando-se os parâmetros de eficiência beta  $\varepsilon_\beta$  e de eficiência dos raios-X, elétrons Auger e elétrons de conversão ( $\varepsilon_{X,A} + \varepsilon_{ec}$ ) pelo uso de absorvedores externos, que são colocados sobre a fonte radioativa de modo a diminuir a eficiência de detecção pela absorção dos betas, elétrons e raios-X de menor energia.

O parâmetro de eficiência  $\beta$  foi medido no intervalo de 60% a 85% e o parâmetro de eficiência para raios-X e elétrons Auger foi medido no intervalo de 28% a 60%, utilizando-se absorvedores externos, perfazendo um total de 30 medidas. O tempo de medida foi de aproximadamente 2000 segundos.

As medidas foram analisadas pelo programa DILUIP7 [Dias,2000], desenvolvido no LMN em linguagem Basic, que fornece o valor da atividade das fontes e a eficiência dos detectores, aplicando as correções

para radiação de fundo, tempo morto, tempo de resolução e decaimento, de acordo com os métodos descritos no item 2.4.

Todas as incertezas foram calculadas utilizando-se a metodologia de análise de covariâncias apresentada no item 1.5.

A medida no espectrômetro REGe foi feita para a verificação da presença de impurezas, tendo sido encontrada a presença de 0,67% de  $^{154}\text{Eu}$  (radiação gama mais intensa:  $\gamma = 1274,42 \pm 0,07$  keV ,  $I_\gamma = 35,0 \pm 0,3\%$ ,  $T_{1/2} = 8,59 \pm 0,02$  anos [Lagoutine,1984]), cuja atividade foi subtraída do valor obtido na extrapolação.

Na tabela 5.7 são apresentados os resultados obtidos pelo espectrômetro gama REGe para a solução de  $^{152}\text{Eu}$ , em 01 de Julho de 1999 às 09:00h.

**Tabela 5.7:** Taxas de desintegração do  $^{152}\text{Eu}$  e do  $^{154}\text{Eu}$ , com suas respectivas incertezas.

<b>Nuclídeo</b>	<b>Taxa de desintegração (kBq.g<sup>-1</sup>)</b>
<b><math>^{152}\text{Eu}</math></b>	<b><math>584,96 \pm 9,12</math></b>
<b><math>^{154}\text{Eu}</math></b>	<b><math>3,91 \pm 0,11</math></b>
<b>Contribuição da Impureza</b>	<b><math>(0,67 \pm 3,11)\%</math></b>

Na tabela 5.8 são apresentados os resultados obtidos para: os parâmetros de ineficiência, os valores experimentais (y) com suas incertezas associadas e os valores ajustados obtidos pelo método linear dos mínimos quadrados utilizando o programa LINFIT [Dias,1999] desenvolvido pelo LMN. O valor de  $\chi^2$  reduzido obtido para o ajuste foi  $\chi^2 = 0,982$ .

Os parâmetros dos ajustes das curvas de extrapolação, com suas incertezas associadas, obtidos pelo método dos mínimos quadrados, são apresentados na tabela 5.9.

**Tabela 5.8:** Parâmetros de ineficiência, valores experimental e ajustado.

Medida	$X_1$	$X_2$	Y	Incerteza	Ajuste
			$\times 10^5$ (Bq.g <sup>-1</sup> )	%	$\times 10^5$ (Bq.g <sup>-1</sup> )
1	0,65755	2,55707	14,929	0,96	15,220
2	0,58848	2,40520	14,662	0,97	14,660
3	0,44785	1,62398	11,907	1,20	11,780
4	0,29959	1,20580	10,458	1,37	10,230
5	0,28597	1,13180	10,153	1,41	9,960
6	0,33212	1,14160	10,143	1,41	9,996
7	0,27507	1,14680	10,133	1,41	10,020
8	0,25764	1,11840	9,990	1,43	9,910
9	0,26869	1,06560	9,778	1,46	9,715
10	0,30066	1,03690	9,676	1,48	9,609
11	0,27857	1,00450	9,483	1,51	9,490
12	0,25660	0,99687	9,447	1,51	9,461
13	0,24138	1,00440	9,437	1,51	9,489
14	0,20958	1,01438	9,433	1,51	9,526
15	0,26265	0,99297	9,413	1,52	9,447
16	0,25026	1,00350	9,390	1,52	9,486
17	0,24783	0,99877	9,363	1,53	9,468
18	0,22283	0,95889	9,361	1,53	9,321
19	0,24517	0,94303	9,160	1,56	9,263
20	0,25500	0,94262	9,132	1,56	9,261
21	0,24258	0,92928	9,083	1,57	9,212
22	0,21911	0,88433	9,044	1,58	9,046
23	0,20932	0,90921	9,027	1,58	9,138
24	0,24140	0,88292	8,864	1,61	9,041
25	0,17138	0,75216	8,762	1,63	8,558
26	0,18303	0,75136	8,477	1,68	8,555
27	0,18222	0,72235	8,412	1,70	8,447
28	0,18484	0,70606	8,337	1,71	8,387
29	0,17235	0,68481	8,236	1,73	8,309
30	0,17609	0,67433	8,207	1,74	8,270

Onde:  $X_1$  parâmetro de ineficiência  $\beta^-$ ,  
 $X_2$  parâmetro de ineficiência para os Raios-X e Elétrons Auger,  
 $Y$  atividade da fonte (equação 2.18).

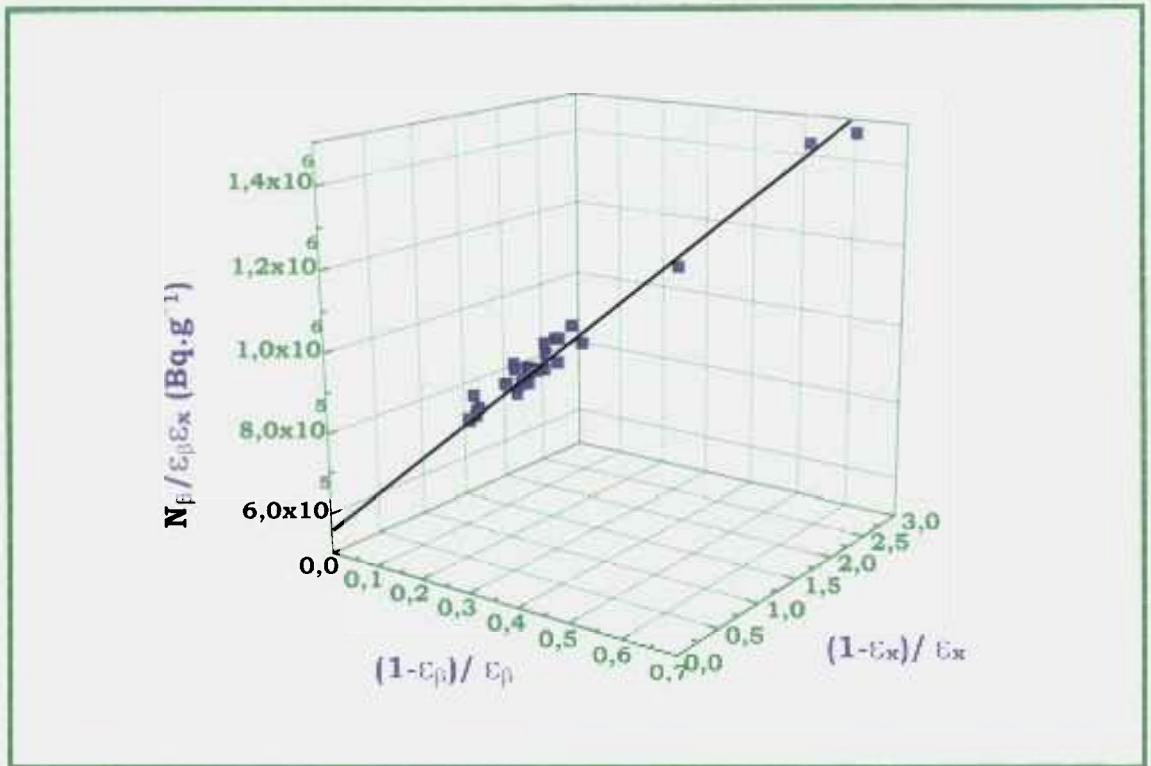
**Tabela 5.9:** Parâmetros do ajuste da curva de extrapolação biparamétrica da eficiência para o  $^{152}\text{Eu}$ , com sua respectiva matriz de covariância.

Parâmetros ( $\times 10^3$ )	Matriz de Covariância ( $\times 10^7$ )		
<b>A</b> (579,5 $\pm$ 7,9)	<b>6,184</b>		
<b>B</b> (362,2 $\pm$ 27,2)	<b>-3,023</b>	<b>73,853</b>	
<b>C</b> (17,7 $\pm$ 105,0)	<b>2,041</b>	<b>-280,023</b>	<b>1096,360</b>

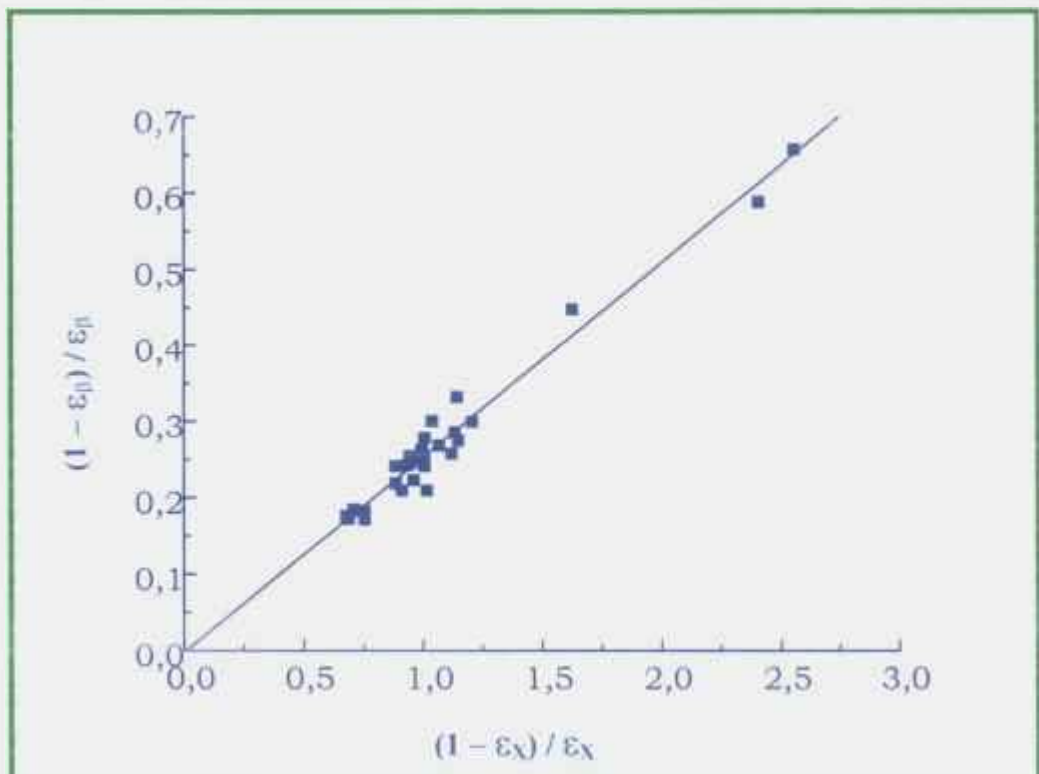
Com esses dados pôde-se construir a curva de extrapolação biparamétrica (figura 5.4) obtida para as duas janelas gama selecionadas:  $\gamma_1$  (344 keV) e  $\gamma_2$  (1408 keV). O valor extrapolado da taxa de desintegração foi de **579,54 kBq.g<sup>-1</sup>**, após a subtração da impureza de  $^{154}\text{Eu}$ , o valor final obtido na presente medida foi de **575,66 kBq.g<sup>-1</sup>** com uma incerteza total de 1,36%.

Um ajuste adicional foi feito, indicando uma correlação linear entre os dois parâmetros de ineficiência. O valor extrapolado (figura 5.5) foi zero dentro dos erros experimentais, indicando que as eficiências de captura eletrônica +  $\beta^+$  tenderam a um, quando a eficiência  $\beta^-$  tende a um. Os valores obtidos para os parâmetros do ajuste da reta foram:

$$\mathbf{A} = -0,00186 \pm 0,01004 \text{ e } \mathbf{B} = 0,25541 \pm 0,00872$$



**Figura 5.4** : Curva de extrapolação biparamétrica.



**Figura 5.5** : Curva de extrapolação entre os parâmetros de ineficiência  $\beta^-$  e raios-X e elétrons Auger.

Na tabela 5.10 são apresentados os resultados obtidos para a taxa de desintegração do  $^{152}\text{Eu}$ , juntamente com os valores obtidos para a atividade por três outros laboratórios, que utilizaram o mesmo sistema de coincidência, que será publicado pelo BIPM [Ratel,2001].

**Tabela 5.10:** Taxas de desintegração do  $^{152}\text{Eu}$ , com suas respectivas incertezas.

<b>Referência</b>	<b>Condições</b>	<b>Taxa de desintegração (kBq.g<sup>-1</sup>)</b>	<b>Incerteza associada (%)</b>
<b>Presente trabalho</b>	$4\pi(\beta,e)-\gamma$	<b>575,7±7,8</b>	<b>1,4</b>
<b>BIPM (Média de 4 labor.)</b>	$4\pi(\beta,e)-\gamma$	<b>578,1±9,8</b>	<b>1,7</b>
<b>BIPM (Média total)</b>	Vários	<b>582,0±8,1</b>	<b>1,4</b>

Os resultados obtidos na padronização do  $^{152}\text{Eu}$  estão em bom acordo com os demais laboratórios que utilizaram sistemas similares ao nosso, assim como com a média de todos os laboratórios participantes.

### 5.3. RESULTADOS DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO DO $^{186}\text{Re}$

A padronização do  $^{186}\text{Re}$ , como descrito no item 2.3, foi obtida pela aplicação da técnica de extrapolação linear da eficiência, utilizando-se dois sistemas de coincidência, um forneceu a taxa de desintegração por meio das medidas de coincidência dos raios- $\gamma$  provenientes do ramo  $\beta^-$  e captura eletrônica (janela gama selecionada,  $\gamma = 122 + 137$  keV) e o outro forneceu o fator de correção para a contribuição do ramo de captura no detector beta, como foi feito para o  $^{192}\text{Ir}$ . Este fator foi aplicado no cálculo da atividade final das fontes.

Todas as incertezas foram calculadas utilizando-se a metodologia de análise de covariâncias apresentada no item 1.5.

A atividade obtida pelo espectrômetro REGe foi de  $(9028,2 \pm 155,3)$  kBq.g<sup>-1</sup>. A medida neste espectrômetro foi feita para se obter a intensidade gama absoluta por decaimento e para a verificação da presença de impurezas, tendo sido encontrada a presença de  $^{188}\text{Re}$  (radiação gama mais intensa:  $\gamma = 155,02$  keV e  $I_\gamma = 0,1495(64)$  [Firestone,1996],  $T_{1/2} = 16,98 \pm 0,02$  horas [Miyahara,2000]). Aguardou-se um tempo de "resfriamento" (espera) de aproximadamente 14 dias, necessário para que ocorresse o decaimento da impureza até cerca de 0,006% do nuclídeo de interesse, produzida por reações secundárias.

O parâmetro de eficiência foi medido no intervalo de 64,9% a 88,7% utilizando-se absorvedores externos, perfazendo um total de 18 medidas. O tempo de cada medida foi de aproximadamente 4000 segundos.

As medidas foram analisadas pelo programa CONTAC9 [Dias,2001], desenvolvido no LMN em linguagem Basic, que fornece o valor da atividade das fontes e a eficiência dos detectores, aplicando as correções

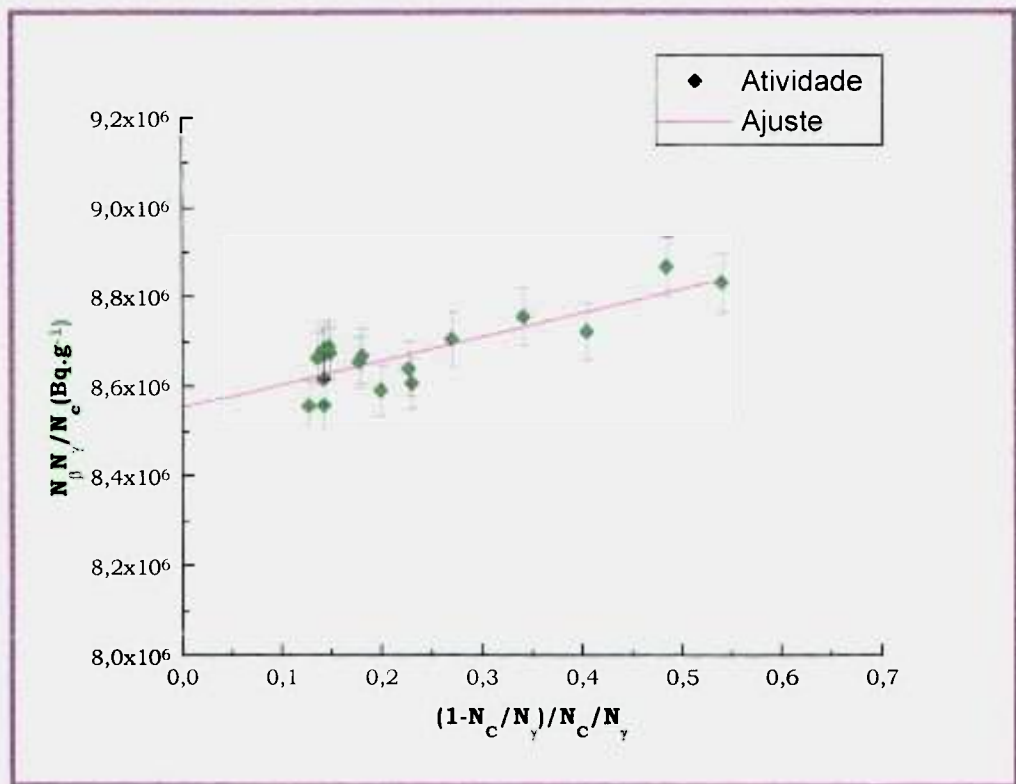
para radiação de fundo, tempo morto, coincidências espúrias e decaimento, de acordo com os métodos descritos no item 2.4.

Na tabela 5.11 são apresentados: a eficiência de detecção  $\beta$ , o parâmetro de ineficiência  $[(1-N_c/N_\gamma) / N_c/N_\gamma]$  e a razão  $N_\beta N_\gamma/N_c$  com suas respectivas incertezas, resultados estes obtidos para o sistema  $4\pi\beta(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}\gamma$ .

**Tabela 5.11:** Valores obtidos para a janela de discriminação  $\gamma = 122 + 137\text{keV}$ .

Medida	$N_c/N_\gamma$	$(1-N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$	$N_\beta N_\gamma/N_c$ (Bq.g <sup>-1</sup> )	$\sigma\%$
1	8,8019E-01	1,3612E-01	8,6668E+06	0,66
2	8,1256E-01	2,3068E-01	8,6105E+06	0,66
3	8,3360E-01	1,9962E-01	8,5942E+06	0,66
4	8,4928E-01	1,7746E-01	8,6577E+06	0,65
5	8,7508E-01	1,4275E-01	8,6201E+06	0,65
6	8,8690E-01	1,2753E-01	8,5596E+06	0,66
7	8,7615E-01	1,4136E-01	8,6831E+06	0,67
8	8,7564E-01	1,4202E-01	8,6736E+06	0,67
9	8,7159E-01	1,4733E-01	8,6914E+06	0,67
10	8,7040E-01	1,4890E-01	8,6777E+06	0,67
11	8,7508E-01	1,4276E-01	8,5607E+06	0,67
12	8,4668E-01	1,8108E-01	8,6711E+06	0,70
13	7,8731E-01	2,7015E-01	8,7087E+06	0,71
14	8,1466E-01	2,2750E-01	8,6423E+06	0,71
15	7,4544E-01	3,4149E-01	8,7583E+06	0,73
16	7,1174E-01	4,0500E-01	8,7252E+06	0,73
17	6,7329E-01	4,8524E-01	8,8702E+06	0,75
18	6,4923E-01	5,4029E-01	8,8347E+06	0,76

Com esses dados pôde-se construir a curva de  $N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$  versus o parâmetro de ineficiência,  $(1-N_C/N_{\gamma})/N_C/N_{\gamma}$ , apresentada na figura 5.6. Os pontos cheios correspondem aos dados experimentais com as respectivas barras de erros e a linha contínua corresponde à reta ajustada.



**Figura 5.6** : Curva de extrapolação de  $N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$  versus o parâmetro de ineficiência  $(1-N_C/N_{\gamma})/N_C/N_{\gamma}$ .

Na tabela 5.12 são apresentados as incertezas parciais na atividade  $N_{\beta}N_{\gamma}/N_C$ , e os fatores de correlação considerados no ajuste. O valor de  $\chi^2$  reduzido obtido para o ajuste foi  $\chi^2 = 1,043$ . A escolha do grau do polinômio foi testada também, utilizando o Teste F de Snedecor [Atalla,1978] obtido pelo programa gráfico Microcal Origin 4.0. Foi ajustado um polinômio de grau 1.

**Tabela 5.12:** Incertezas parciais consideradas no ajuste da curva de extrapolação.

<b>Medidas</b>	$\sigma_{est}\%$	$\sigma_{massa}\%$	$\sigma_{dec}\%$
1	0,54	0,20	0,32
2	0,54	0,20	0,33
3	0,54	0,20	0,32
4	0,54	0,20	0,31
5	0,54	0,20	0,31
6	0,54	0,20	0,33
7	0,54	0,20	0,34
8	0,54	0,20	0,34
9	0,54	0,20	0,34
10	0,54	0,20	0,34
11	0,54	0,20	0,35
12	0,54	0,20	0,40
13	0,55	0,20	0,40
14	0,54	0,20	0,42
15	0,56	0,20	0,42
16	0,56	0,20	0,42
17	0,58	0,20	0,44
18	0,59	0,20	0,44
<b>Fator de</b>	0	1	1
<b>Correlação</b>			

Onde:

$\sigma_{est}$  incertezas estatísticas nas contagens, que leva em conta as incertezas nas áreas das vias beta e gama

$\sigma_{massa}$  incerteza na determinação da massa da fonte

$\sigma_{dec}$  incerteza na correção de decaimento.

Os parâmetros do ajuste da curva de extrapolação, com suas incertezas associadas, obtidos pelo método dos mínimos quadrados utilizando-se o programa LINFIT [Dias,1999], são apresentados na tabela 5.13. E os valores dos parâmetros **a** e **b** obtidos na literatura [Firestone,1996, Baglin,1997] e do fator  $f_x$ , obtido pelo sistema  $4\pi(\text{PC})\text{-HPGe}$ , são apresentados na tabela 5.14.

**Tabela 5.13:** Parâmetros do ajuste da curva de extrapolação da eficiência para o  $^{186}\text{Re}$ , com sua respectiva matriz de covariância.

	<b>Parâmetros (<math>\times 10^4</math>)</b>	<b>Matriz de Covariância (<math>\times 10^8</math>)</b>	
<b>A</b>	<b>(855,41 <math>\pm</math> 2,41)</b>	<b>5,829</b>	
<b>B</b>	<b>(52,97 <math>\pm</math> 9,51)</b>	<b>-20,350</b>	<b>90,462</b>

**Tabela 5.14:** Fator  $f_x$  e parâmetros do esquema de decaimento **a** e **b** obtidos da literatura.

<b>Literatura</b>	<b>Parâmetros</b>	<b>Valores</b>
	<b>Fator <math>f_x</math></b>	<b>0,2072 <math>\pm</math> 0,0059</b>
<b>Firestone,1996</b>	<b>a (ramo <math>\beta^-</math>)</b>	<b>0,9310 <math>\pm</math> 0,0020</b>
	<b>b (ramo CE)</b>	<b>0,0690 <math>\pm</math> 0,0020</b>
<b>Baglin,1997</b>	<b>a (ramo <math>\beta^-</math>)</b>	<b>0,9253 <math>\pm</math> 0,0010</b>
	<b>b (ramo CE)</b>	<b>0,0747 <math>\pm</math> 0,0010</b>

Na tabela 5.15 são apresentadas as taxas de desintegração do  $^{186}\text{Re}$ , calculada pela equação 2.28 (apresentada no item 2.3.2.1), uma para cada valor de  $a$  e  $b$  obtidos da literatura, Firestone e Baglin. A incerteza final na atividade foi obtida pela propagação simples (somadas quadraticamente) das incertezas associadas aos parâmetros  $a$ ,  $b$  e  $f_x$ .

**Tabela 5.15:** Taxa de desintegração do  $^{186}\text{Re}$ , calculada utilizando-se valores dos parâmetros do esquema de decaimento  $a$  e  $b$ , obtidos de dois “evaluations” diferentes na literatura.

<b>Identificação</b>	<b>Referência</b>	<b>Taxa de desintegração (kBq.g<sup>-1</sup>)</b>
<b>(F)</b>	<b>Firestone, 1996</b>	<b>9049,12 ± 49,59</b>
<b>(B)</b>	<b>Baglin, 1997</b>	<b>9092,59 ± 46,94</b>

### 5.3.1. CURVA DE CALIBRAÇÃO DO ESPECTRÔMETRO REGe

A curva de calibração em eficiência de pico do espectrômetro gama para ampolas foi determinada utilizando-se ampolas padrão de  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{152}\text{Eu}$ , previamente calibradas no LMN [Fonseca, 1997]. O tempo de medida de cada ampola foi de 4000 segundos. Na tabela 5.16 são apresentados os radionuclídeos utilizados, suas atividades, incerteza associada e suas meias-vida.

A eficiência para cada linha de energia, no intervalo de 81,00 keV a 1408,02 keV, juntamente com sua intensidade gama, e incertezas associadas são apresentadas na tabela 5.17.

Na figura 5.7 é apresentada a curva de calibração em eficiência versus energia gama, para as ampolas padrão. Os pontos cheios correspondem aos dados experimentais já consideradas as barras de erros e a linha contínua corresponde à curva de calibração, representada por um polinômio de grau três como descrito no item 4.3. O valor de  $\chi^2$  reduzido obtido para o ajuste foi  $\chi^2 = 0,294$ .

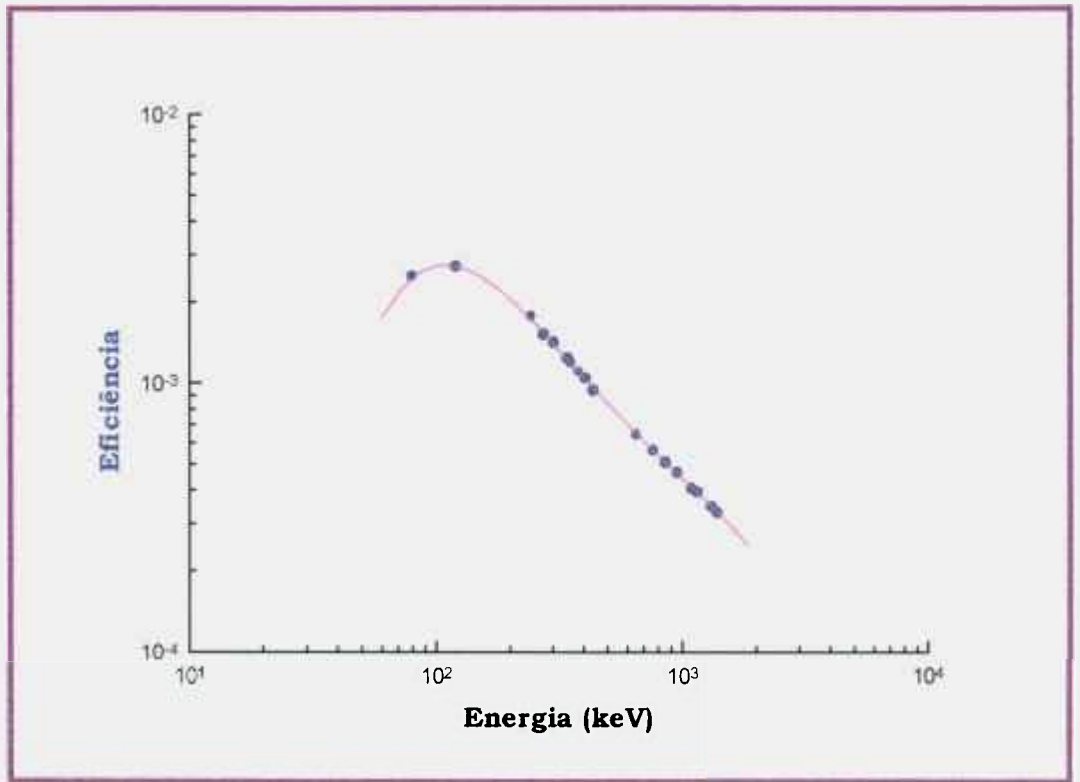
Na tabela 5.18 são apresentados os valores das incertezas parciais associadas à eficiência, com os fatores de correlação, obtidos pelo programa ALPINO [Dias,2000]. Os parâmetros da curva ajustada e sua respectiva matriz de covariância são apresentados na tabela 5.19.

**Tabela 5.16:** Radionuclídeos utilizados na determinação da curva de eficiência com respectivas atividades e meias-vida.

<b>Radionuclídeo</b>	<b>Atividade (kBq)</b>	<b>Meia-Vida (dias)[IAEA,1991]</b>	<b>Data de Referência</b>
$^{152}\text{Eu}$	$401,3 \pm 6,5$	$4933 \pm 11$	01/03/93 às 0:00h
$^{60}\text{Co}$	$345,0 \pm 2,5$	$1925,5 \pm 0,5$	01/03/93 às 0:00h
$^{137}\text{Cs}$	$521,1 \pm 5,6$	$11020 \pm 6$	01/03/93 às 0:00h
$^{133}\text{Ba}$	$46,55 \pm 0,60$	$3862 \pm 15$	01/03/93 às 0:00h

**Tabela 5.17:** Energia gama, eficiência e intensidade gama com suas respectivas incertezas, para as ampolas padrão.

$E(\gamma)$ [IAEA,1991]	(Eficiência $\pm \sigma_{abs}$ ) $\times 10^{-3}$	(Intensidade $\gamma \pm \sigma$ ) % [IAEA,1991]
81,00	(2,481 $\pm$ 0,041)	36,76 $\pm$ 0,51
121,78	(2,708 $\pm$ 0,050)	28,37 $\pm$ 0,46
244,70	(1,757 $\pm$ 0,032)	7,53 $\pm$ 0,53
276,40	(1,519 $\pm$ 0,028)	7,15 $\pm$ 0,42
302,85	(1,413 $\pm$ 0,023)	18,30 $\pm$ 0,33
344,28	(1,239 $\pm$ 0,022)	26,57 $\pm$ 0,41
356,02	(1,185 $\pm$ 0,018)	61,94 $\pm$ 0,22
383,85	(1,098 $\pm$ 0,020)	8,91 $\pm$ 0,32
411,13	(1,038 $\pm$ 0,020)	2,24 $\pm$ 0,45
443,97	(0,938 $\pm$ 0,018)	3,12 $\pm$ 0,45
661,66	(0,643 $\pm$ 0,008)	85,1 $\pm$ 0,23
778,90	(0,561 $\pm$ 0,010)	12,97 $\pm$ 0,46
867,39	(0,508 $\pm$ 0,010)	4,21 $\pm$ 0,59
964,06	(0,461 $\pm$ 0,008)	14,63 $\pm$ 0,41
1112,29	(0,403 $\pm$ 0,007)	13,54 $\pm$ 0,44
1173,24	(0,388 $\pm$ 0,004)	99,86 $\pm$ 0,02
1332,50	(0,347 $\pm$ 0,003)	99,98 $\pm$ 0,01
1408,02	(0,329 $\pm$ 0,006)	20,85 $\pm$ 0,43



**Figura 5.7:** Curva de calibração do espectrômetro REGe para ampolas.

**Tabela 5.18:** Incertezas que afetam o cálculo da eficiência de detecção (%).

$E_T$	$\sigma_r$	$\sigma_{fat}$	$\sigma_{fg}$	$\sigma_A$	$\sigma_{I_T}$	$\sigma_{dec}$	$\sigma_S$
81,00	0,36	0,68	0,25	1,28	0,51	0,22	0,35
121,78	0,36	0,58	0,25	1,62	0,46	0,10	0,12
244,70	0,36	0,45	0,25	1,62	0,53	0,10	0,31
276,40	0,36	0,43	0,25	1,28	0,42	0,22	1,05
302,85	0,36	0,39	0,25	1,62	0,41	0,10	0,18
344,28	0,36	0,41	0,25	1,28	0,33	0,22	0,64
356,02	0,36	0,39	0,25	1,28	0,22	0,22	0,36
383,85	0,36	0,37	0,25	1,28	0,32	0,22	1,02
411,13	0,36	0,36	0,25	1,62	0,45	0,10	0,83
443,97	0,36	0,35	0,25	1,62	0,45	0,10	0,71
661,66	0,36	0,30	0,25	1,07	0,23	0,12	0,11
778,90	0,36	0,28	0,25	1,62	0,46	0,10	0,41
867,39	0,36	0,26	0,25	1,62	0,59	0,10	0,90
964,06	0,36	0,25	0,25	1,62	0,41	0,10	0,41
1112,29	0,36	0,23	0,25	1,62	0,44	0,10	0,47
1173,24	0,36	0,23	0,25	0,72	0,02	0,03	0,25
1332,50	0,36	0,21	0,25	0,72	0,01	0,03	0,26
1408,02	0,36	0,21	0,25	1,62	0,43	0,10	0,39
<b>fator de Correlação</b>	<b>1</b>	<b>0</b>	<b>1</b>	<b>1 ou 0</b>	<b>0</b>	<b>1 ou 0</b>	<b>0</b>

Onde:

- $\sigma_t$  incerteza no tempo morto,
- $\sigma_{fat}$  incerteza no fator de atenuação,
- $\sigma_{fg}$  incerteza no fator geométrico,
- $\sigma_A$  incerteza na atividade, obtida do certificado das fontes padrão, considerando-se um desvio padrão, composto pelos erros sistemáticos e estatísticos,
- $\sigma_{I\gamma}$  incerteza na probabilidade de emissão gama por decaimento,
- $\sigma_{dec}$  incerteza na correção do decaimento,
- $\sigma_S$  incerteza na área.

As incertezas menores que 0,1% foram desprezadas.

**Tabela 5.19:** Parâmetros do ajuste da curva de eficiência do espectrômetro REGe e sua respectiva matriz de covariância.

<b>Parâmetros</b>	<b>Matriz de Covariância (<math>\times 10^{-2}</math>)</b>				
<b>A<sub>0</sub></b> (-101,32 ± 6,39)	<b>4088,06</b>				
<b>A<sub>1</sub></b> (62,48 ± 4,42)	<b>- 2821,94</b>	<b>1949,76</b>			
<b>A<sub>2</sub></b> (-14,96 ± 1,13)	<b>722,65</b>	<b>- 499,77</b>	<b>128,23</b>		
<b>A<sub>3</sub></b> (1,56 ± 0,13)	<b>- 81,42</b>	<b>56,36</b>	<b>- 14,48</b>	<b>1,64</b>	
<b>A<sub>4</sub></b> (-0,060 ± 0,005)	<b>3,41</b>	<b>- 2,36</b>	<b>0,61</b>	<b>- 0,07</b>	<b>0,003</b>

### 5.3.2. RESULTADOS DA PROBABILIDADE DE EMISSÃO GAMA POR DECAIMENTO

Para confirmação dos resultados obtidos na padronização do  $^{186}\text{Re}$ , a probabilidade de emissão gama por decaimento foi medida e determinada (item 1.4, equação 1.30), para as duas linhas de energias mais intensas. A eficiência foi obtida pelos parâmetros ajustados da curva de eficiência de pico apresentados na tabela 5.19.

Na tabela 5.20 são apresentados os valores obtidos para a probabilidade de emissão gama por decaimento, para as duas atividades identificadas na tabela 5.15 (um para cada referência), com suas respectivas incertezas parciais e a total. A incerteza final na probabilidade de emissão gama por decaimento foi obtida pela propagação simples (somadas quadraticamente) das incertezas associadas à atividade e à eficiência.

A probabilidade de emissão gama por decaimento, por linha de energia, determinada neste trabalho, é comparada com os valores apresentados por outros autores e seus resultados são apresentados na tabela 5.21.

**Tabela 5.20:** Probabilidade de emissão gama por decaimento, com suas respectivas incertezas associadas.

$E_{\gamma}$ (keV)	$I_{\gamma}$ (%)	$\sigma_{total}$ (%)	$\sigma_{No}$ (%)	$\sigma_{REGe}$ (%)
122,61 (F)	0,595	1,39	0,55	1,28
(B)	0,592	1,38	0,52	1,28
137,16 (F)	9,383	1,35	0,55	1,23
(B)	9,338	1,33	0,52	1,23

Onde:

- $\sigma_{No}$  incerteza na atividade medida pelo sistema de coincidência, tabela 5.15,
- $\sigma_{REGe}$  incerteza total associada à eficiência, composta pelas incertezas parciais descritas na tabela 5.18

**Tabela 5.21:** Probabilidade de emissão gama por decaimento, comparada com valores da literatura.

Autores	Probabilidades de Emissão $\gamma$ por Decaimento	
	Energia $\gamma$ 122,61(keV)	Energia $\gamma$ 137,16(keV)
<b>Valores Experimentais</b>		
<b>Este trabalho</b>	(F) 0,00595(8) (B) 0,00592(8)	(F) 0,0938(13) (B) 0,0934(12)
<b>Woods, 2000</b>	0,00597(8)	0,0935(10)
<b>Schönfeld, 1994</b>	0,00603(6)	0,0939(9)
<b>Miyahara, 2000</b>	0,00604(3)	0,0949(3)
<b>Compilações</b>		
<b>Baglin, 1997</b>	0,00603(6)	0,0942(6)
<b>Firestone, 1996</b>	0,0056(2)	0,0822(25)

**F** – com parâmetros de Firestone, 1996

**B** – com parâmetros de Baglin, 1997.

Os resultados obtidos na medida da probabilidade de emissão gama por decaimento, apresentados na tabela 5.21, são concordantes com os apresentados por Woods (2000) e Schönfeld (1994) dentro das incertezas experimentais, seja utilizando-se os valores tabelados por Firestone ou por Baglin, o que sugere a validade do método de padronização do  $^{186}\text{Re}$  proposto neste trabalho.

## 6. CONCLUSÕES

O objetivo proposto, estabelecer metodologias de medida da atividade de radionuclídeos que desintegram pela emissão de  $\beta^-$  -  $\beta^+$  / captura eletrônica, utilizando sistemas de coincidência, foi atingido. Os métodos de medida desenvolvidos neste trabalho, não foram utilizados por nenhum outro autor da literatura e se mostraram adequados na padronização dos radionuclídeos estudados,  $^{192}\text{Ir}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  e  $^{186}\text{Re}$ . Os resultados obtidos foram comparados aos de outros autores e apresentaram boa concordância.

A metodologia utilizada permitiu demonstrar que na padronização de radionuclídeos, cujo esquema de desintegração apresentam probabilidades bem distintas para os dois modos de decaimento, como é o caso do  $^{192}\text{Ir}$  (95,24% por emissão  $\beta^-$  e 4,76% para CE) e do  $^{186}\text{Re}$  (93,1% por emissão  $\beta^-$  e 6,9% para CE), a utilização da técnica de extrapolação linear da eficiência convencional é válida. E que a aplicação de um fator de correção ( $f_x$ ); para a contribuição do ramo de captura eletrônica (menos intenso); como foi proposto por este trabalho, medido com a utilização de outro sistema de coincidência  $4\pi(\text{PC})\beta\text{-HPGe}\gamma$ , é adequada e forneceu resultados consistentes e com boa exatidão.

O resultado obtido na padronização do  $^{192}\text{Ir}$  pode ser comparado com os apresentados pelos participantes da comparação internacional em pequena escala (SIR), e observou-se uma boa concordância entre os resultados.

Já na padronização do  $^{186}\text{Re}$ , como este não foi alvo de nenhuma comparação, a validade do método utilizado foi verificada por meio da medida das probabilidades de emissão gama por decaimento. Os

resultados obtidos foram comparados com os outros autores da literatura, tendo apresentado boa concordância dentro das incertezas experimentais.

Para a situação em que as probabilidades de desintegração de dois ramos de decaimento são mais altas, como é o caso do  $^{152}\text{Eu}$  (27,92% por emissão  $\beta^-$  e 72,08% para CE), o uso da técnica de extrapolação bi-paramétrica torna-se necessário. Pode-se comprovar também que a escolha da função ajustada :  $y = \frac{N_\beta}{\epsilon_\beta \epsilon_x}$ , proposta neste trabalho, é uma alternativa válida como demonstrado pelos resultados obtidos, e este tipo de ajuste não foi encontrado em outros trabalhos apresentados na literatura.

A boa concordância destes é observada na comparação com os resultados apresentados pelos demais laboratórios participantes da Comparação Internacional.

Com isso, conclui-se que os métodos de medida desenvolvidos neste trabalho apresentaram um bom desempenho como esperado.

Para trabalhos futuros, dentro desta mesma linha de pesquisa, sugere-se a padronização de outros radionuclídeos que também apresentam esquemas de decaimento complexos:  $^{188}\text{Re}$ ,  $^{123}\text{I}$  e  $^{201}\text{Tl}$ , e são de interesse em medicina nuclear.

## 7. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ATALLA, L.T., 1978. *Interpretação Quantitativa de Resultados Experimentais*, São Paulo, Instituto de Energia Atômica (Inf. IEA 60).
- ATTIE, M.R.P., KOSKINAS, M.F., DIAS, M.S. and FONSECA, K.A., 1998. Absolute disintegration rate measurements of  $^{67}\text{Ga}$ . *Appl. Radiat. Isot.* 49, p.1175-1177.
- BABA, S., *et al.*, 1982. A method for determination of the  $^{152}\text{Eu}$  activity. *Nuclear Instrum. and Methods A* 203, p. 273-280.
- BAERG, A.P., 1965. Variation on the paired source method of measuring dead time. . *Metrologia*, 1 (3), p. 131-133.
- BAERG, A.P., 1966. Measurement of radioactive desintegration rate by the coincidence method. *Metrologia*, 2 (1), p. 23 - 32.
- BAERG, A.P., 1967. Absolute measurement of radioactivity. *Metrologia*, 3(4), p.105 -108.
- BAERG, A.P., 1973. The efficiency extrapolation method in coincidence counting. *Nuclear Instruments and Methods*. 112 , p. 143-150.
- BAGLIN, C.M., 1997. *Nuclear Data Sheets for A=186*. 82, 1.Article n° DS970019.
- BÉ, M.M., 1999. *BNM-LNHB*. Evaluation 1999 for  $^{152}\text{Eu}$ .
- BIPM, 1998. Director's Report on the Activity and Management of the Bureau International des Poids et Mesures. (Feb.).

- CAMPION, P.J., 1959. The standardization of radioisotopes by the beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors. **Int. J. Appl. Radiat. Iso.**, 4 , p. 232-248.
- CAMPION, P.J., 1975. **Procedures for accurately diluting and dispensing radioactive solutions**. Bureau International de Poids et Mesures, Monografie BIPM-1.
- CODATA, 1998. Committee on Data for Science and Technology. Site [www.physics.nist.gov/cuu/Constants/index.html](http://www.physics.nist.gov/cuu/Constants/index.html) .
- COURSEY, B.M., *et al.*, 1991. The Standardization and Decay Scheme of Rhenium-186. **Appl. Radiat. Isot.** 42, p. 865-869.
- COX, D.R. and ISHAM, V., 1977. A bivariate point process connected with electronic counters. **Proc. Roy. Soc. A**, 356 , p. 149 - 160.
- DEBERTIN, K. and HELMER, R.G., 1988. **Gamma- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors**, North-Holland, Amsterdam.
- DIAS, M.S., 1992. Relatório Interno – Cálculo de Área – LMN (IPEN).
- DIAS, M.S., 1997. Relatório Interno – LOGFIT – LMN (IPEN).
- DIAS, M.S., 1999. Relatório Interno – LINFIT – LMN (IPEN).
- DIAS, M.S., 2000. Relatório Interno – ALPINO – LMN (IPEN).
- DIAS, M.S., 2000. Relatório Interno – DILUIP7 – LMN (IPEN).
- DIAS, M.S., 2001. Relatório Interno – CONTAC9 – LMN (IPEN).

- FIRESTONE, R.B., 1988. ***Nuclear Data Sheets***, **55**, 583.
- FIRESTONE, R.B. and SHIRLEY, V.S., 1996. ***Table of Isotopes***. 8<sup>th</sup> ed. Wiley, New York.
- FONSECA, K.A., 1997. ***Medida da atividade absoluta e determinação da taxa de emissão por decaimento do I-126***. Dissertação de Mestrado apresentada à Universidade de São Paulo.
- FONSECA, K.A., KOSKINAS, M.F. and DIAS, M.S., 2000. Disintegration rate measurement of a <sup>192</sup>Ir solution. ***Applied Radiation and Isotopes***. **54**, p.141-145.
- FUNCK, E., 1987. ***Appl. Radiat. Isotopes***. **38**, 771.
- GERALDO, L.P. and SMITH, D.L., 1989. ***Least Square Methods and Covariance Matrix Applied to the Relative Efficiency Calibration of a Ge(Li) Detector***. São Paulo. (IPEN- Pub. - 243).
- GERALDO, L.P. and SMITH, D.L., 1990. Covariance Analysis and Fitting of Germanium Gamma-Ray Detector Efficiency Calibration Data. ***Nuclear Instrum. Methods Phys. Res.***, **A290**, p. 499-508.
- GRIGORESCU, E.L. *et al.*, 1996. Standardization of some electron capture radionuclides. ***Nuclear Instrum. and Methods in Phys. Research A*** **369**, p. 414-420.
- HINO, Y. And Ohgaki, H., 1998. Absolute Measurement of <sup>192</sup>Ir. ***Appl. Radiat. Isot.*** **49**, p. 1179-1183.
- HOUTHERMANS, H. and MIGUEL, M., 1962. 4 $\pi$  $\beta$ - $\gamma$  coincidence counting for the calibration of nuclides with complex decay schemes. ***Int. J. Appl. Radiat. Isot.***, **13**, p. 137-142.

- IAEA, 1991. **X-Ray and Gamma-Ray Standards for Detector Calibration**. Vienna, 1991 (IAEA – TECDOC-619).
- IWAHARA, A., *et al.*, 1998. Standardization of  $^{192}\text{Ir}$  within the framework of an international comparison. **4<sup>to</sup> Congreso Regional – IRPA , Seguridad Radiológica y Nuclear – Memorias Tomo 2**.
- JELLEY, N.A., 1990. **Fundamentals of Nuclear Physics**. Cambridge University Press.
- KNOLL, G.F., 1989. **Nuclear Radiation and Measurement**. John Wiley & Sons.
- KOKTA, L., 1973. Determination of peak area. **Nuclear Instrum. and Methods**. 112, p. 245-251.
- KOSKINAS, M.F., 1988. **Desenvolvimento de um sistema de coincidência para a medida absoluta da atividade de radionuclídeos empregando detectores de barreira de superfície**. São Paulo. Tese (Doutoramento) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
- LAGOUTINE, F.; COURSOLO, N.; LEGRAND, J., 1984. **Table of Radionuclides**. Laboratoire de Métrologie des Rayonnements Ionisants. Bureau National de Métrologie.
- LAVRAS, W.O., KOSKINAS, M.F., DIAS, M.S. and FONSECA, K.A., 2001. Primary Standardization of  $^{51}\text{Cr}$  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*.

- LEO, W.R., 1994. **Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments**. 2<sup>a</sup> ed. Revisada, Springer-Verlog.
- MANNHART, W.A., 1981. **A small guide to generating covariances of experimental data**. Braunschweig (Germany, F.R.). Physikalisch Technische Bundesanstalt. (PTB - FMRB - 84).
- MIYAHARA, H., *et al.*, 1990. Standardisation of  $^{152}\text{Eu}$  by two-dimensional extrapolation. **Nuclear Instrum. and Methods in Phys. Research A** 286, p. 497-501.
- MIYAHARA, H.; *et al.*, 1994. Determination of gamma-ray emission probabilities for  $^{75}\text{Se}$ ,  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  and  $^{192}\text{Ir}$  by a self-consistent method. **Nuclear Instrum. and Methods in Phys. Research A** 339, p. 203-208.
- MIYAHARA, H.; *et al.*, 2000. Precise measurements of the gamma-ray emission probabilities of  $^{186}\text{Re}$  and  $^{188}\text{Re}$ . **Applied Radiation and Isotopes**. 52, p.573-579.
- MIYAHARA, H.; MORI, C., 1992. Standardization of  $^{133}\text{Ba}$  by two-dimensional extrapolation. **Appl. Radiat. Isot.** Vol. 43, (3), p. 377-381.
- MOREIRA, D.S., 2000. **Medida Absoluta da Taxa de Desintegração e da Probabilidade de Emissão Gama do  $^{42}\text{K}$** . Dissertação de Mestrado apresentada à Universidade de São Paulo.
- MOREL, J., 1975. **Etude des differents problèmes posés par l'étalonnage précis d'un spectromètre  $\gamma$** . Saclay, Fr., C.E.A. (CEA-R 4656).

- MOURA, L.P., 1969. **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  $^{203}\text{Tl}$** . Campinas. Tese (Doutoramento) - Universidade de Campinas.
- MÜLLER, J.K. and RYTZ, A.; 1967. Report on the International Comparison of Dilution and Source Preparation Methods by Means of  $^{60}\text{Co}$  - **Bureau International des Poids et Mesures**.
- PARK, T.S. *et al.*, 2001. Standardization  $^{152}\text{Eu}$  and  $^{88}\text{Y}$ . *13<sup>th</sup> International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications - ICRM 2001. - May 14-18, 2001, Braunschweig, Germany.*
- RATEL, G., 1992. Activity concentration of a solution  $^{133}\text{Ba}$ : results of an international comparison. ***Nuclear Instrum. and Methods in Phys. Res. A* 316**, p.318-323.
- RATEL, G., 1998. Results of an International Trial Comparison of Activity Measurements of a Solution of  $^{192}\text{Ir}$ . ***Appl. Radiat. Isot.* 49**, p. 1437-1443.
- RATEL, G., 2001. Results of the International Comparison of activity measurements of Eu-152. *13<sup>th</sup> International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications - ICRM 2001. - May 14-18, 2001, Braunschweig, Germany.*
- REHER, D.F.G. *et al.*, 1992. Standardization of  $^{192}\text{Ir}$ . ***Nuclear Instrum. and Methods in Phys. Research A* 312**, p. 263-268.
- RYTZ, A., 1982. Activity Measurements of a solution of  $^{134}\text{Cs}$ : report on an international comparison. . ***Nuclear Instrum. and Methods* 192**, p. 427-431.

- SCHAEKEN, B., *et al.*, 1992.  $^{192}\text{Ir}$  brachytherapy sources in Belgian hospitals. ***Nuclear Instrum. and Methods A*** 312, p. 251.
- SCHÖNFELD *et al.*, 1994. Standardization and decay data of  $^{186}\text{Re}$ . ***Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*** 339, p.174-179.
- SCHRADER, H., 1997. ***Activity Measurements with Ionization Chambers***. Monographie BIPM-4. Bureau International des Poids et Mesures.
- SMITH, D. and STUART, L.E.H., 1975. An extension of the  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  coincidence technique: two dimensional extrapolation. ***Metrologia***, 11, p. 67-72.
- SMITH, D.L., 1978. Improved correction formulae for coincidence counting. ***Nuclear Instruments and Methods***. 152, p. 505-519.
- SMITH, D.L., 1981. ***Covariance matrices and applications to the field of nuclear data***. Idaho Falls, Argonne National Lab. (ANL/NDM- 62).
- SMITH, D.L., 1987. Some developments in the Cox-Isham theory to coincidence correction, including the extension to the computer-discrimination method. ***Int. J. Appl. Radiat. Instit. Part A***, 38(10), p.813-822.
- TAKEDA, M.N., 2001. ***Determinação da correção para o efeito de soma em cascata para espectrômetros de HPGe pelo método de monte carlo***. . Dissertação de Mestrado apresentada à Universidade de São Paulo.

- TAYLOR, J.G.V., 1967. X-ray - X-ray coincidence counting methods for the standardization of  $^{125}\text{I}$  and  $^{197}\text{Hg}$ . In: International Atomic Energy Agency. *Standardization of Radionuclide: Proceedings of a Symposium on ... held in Vienna, 10 a 14 October 1966*. Vienna, 1967, p.341-353.
- WILLIAMS, A. and CAMPION, P.J., 1965. On the relative time distribution of pulses in the  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  coincidence technique. ***Int. J. Appl. Radiat. Isot.*** 16, p.555-560.
- WOODS, D.H., *et al.*, 2000. Standardisation and decay data of  $^{186}\text{Re}$ . ***Applied Radiation and Isotopes.*** 52, p.581-584.
- WOODS, M.J., *et al.*, 1992.  $^{192}\text{Ir}$  brachytherapy sources: Calibration of the NPL secondary standard radionuclide calibrator. ***Nuclear Instrum. and Methods A*** 312, p. 257.