



BR0342810

INS-BR-3823

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia Associada à Universidade de São Paulo

MEDIDA ABSOLUTA DA ATIVIDADE E DETERMINAÇÃO DA TAXA DE
EMISSÃO GAMA POR DECAIMENTO DO ^{126}I

KÁTIA APARECIDA FONSECA

Dissertação apresentada como parte
dos requisitos para obtenção do grau
de Mestre em Ciências na Área de
Tecnologia Nuclear.

Orientador:

DRA. MARINA FALLONE KOSKINAS

São Paulo

1997



Ao meu marido, WAGNER

Aos meus pais, EDSON E WANILDA

**"Vengo, sin saber de dónde,
existo, sin saber quién soy,
muero, sin saber cuándo,
voy, sin saber adónde,
y me maravilla ver lo feliz que me siento."**

POEMA MEDIEVAL

Agradecimentos:

À Dra. Marina Fallone Koskinas, orientadora deste trabalho, pelo apoio, paciência e dedicação durante o desenvolvimento desta dissertação;

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

À amiga Eliane Pocobi, pela preparação das amostras, amizade, incentivo e ajuda ao longo deste trabalho;

Às amigas Cláudia C. Braga e Nora Lia Maidana, pela amizade, estímulo e colaboração constantes;

A todos os colegas do LMN pelo incentivo e apoio oferecido;

À Dra. Linda Caldas, chefe da Divisão de Serviço de Proteção e Dosimetria, pela oportunidade oferecida de realização deste trabalho no SPD;

Ao pessoal do IEO, em especial ao Sr. Sabino, pelas confecções de arranjos e suportes e aos vidreiros pela selagem das amostras;

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

À Srta. Maria Cristina Santos Ferreira pela colaboração dispensada;

Aos colegas do SPD que de alguma forma colaboraram na realização deste trabalho;

Ao meu marido Wagner e aos meus pais, pelo apoio, carinho e incentivo nestes anos de realização deste trabalho;

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

Ao órgão de fomento CAPES, por conceder a bolsa de estudo;

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

MEDIDA ABSOLUTA DA ATIVIDADE E DETERMINAÇÃO DA TAXA DE EMISSÃO GAMA POR DECAIMENTO DO I-126

Kátia Aparecida Fonseca

RESUMO

O conhecimento com boa exatidão da taxa de emissão gama por decaimento de radionuclídeos é de grande interesse em várias aplicações. No caso do ^{126}I este interesse está relacionado principalmente à produção de ^{125}I , na qual o ^{126}I aparece como impureza e em cálculos de reatores, em que é utilizado como monitor de fluxo de nêutrons. Este trabalho apresenta a medida da intensidade gama por decaimento para as energias gama de 388 keV e 666 keV do ^{126}I . Este radionuclídeo foi obtido por meio da reação $^{127}\text{I}(n,2n)^{126}\text{I}$ em um fluxo de nêutrons rápidos no reator IEA-R1 do IPEN. A taxa de desintegração foi determinada por um método de medida absoluta que emprega dois sistemas de coincidência distintos, em razão do seu esquema de decaimento complexo. O sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$ consiste de um detector proporcional acoplado a dois cristais de NaI(Tl) de 3" x 3" para medida do ramo β^- e β^+ e o sistema X- γ , consiste de dois cristais de NaI(Tl) para o ramo que se desintegra pelo processo de captura eletrônica. A intensidade gama por decaimento foi medida em um espectrômetro gama de HPGe previamente calibrado com fontes padrões da AIEA (Agência Internacional de Energia Atômica). As incertezas envolvidas foram determinadas pela metodologia de matriz de covariância.

ABSOLUTE ACTIVITY MEASUREMENT AND GAMMA-RAY EMISSION PROBABILITY PER DECAY OF I-126

Kátia Aparecida Fonseca

ABSTRACT

The accurate knowledge of the gamma-ray emission probability per decay of radionuclides is important in several applications. In the case of ^{126}I , its importance lies mainly in fast neutron dosimetry as well as in the production of ^{125}I where ^{126}I appears as an impurity. In the present work the gamma-ray emission probabilities per decay for the 388 and 666-keV transitions of ^{126}I have been measured. This radionuclide was obtained by means of the $^{127}\text{I}(n,2n)^{126}\text{I}$ reaction in a fast neutron flux at the IPEN 2 MW research reactor. The methodology for the primary standardization of ^{126}I is described. For this purpose, two different coincidence systems were used due to the complex decay scheme of this radionuclide. The β branch measurement was carried out in a $4\pi(\text{PC})\beta\text{-}\gamma$ coincidence system consisting of a proportional counter, coupled to a pair of 3"x 3" NaI(Tl) crystal. The electron capture branch was measured in a X- γ coincidence system using two NaI(Tl) crystals. The gamma-ray measurements were performed in a HPGe system, previously calibrated by means of standard sources supplied by the International Atomic Energy Agency. All the uncertainties involved were treated rigorously, by means of covariance analysis.

SUMÁRIO

	Página
INTRODUÇÃO.....	01
1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS.....	04
1.1. Processos de Desintegração Radioativa	04
1.2. Método de Medida Absoluta da Atividade	10
1.2.1. Formalismo Geral do Método de Coincidência	11
1.2.1.1. Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência.....	12
1.3. Medida da Intensidade Gama por Decaimento.....	16
2. MEDIDA DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO DO ¹²⁶I.....	18
2.1. Esquema de Decaimento do ¹²⁶ I.....	18
2.2. Sistemas de Coincidência.....	22
2.2.1. Sistema de Coincidência 4π(PC)-NaI(Tl).....	22
2.2.2. Sistema de Coincidência NaI(Tl)-NaI(Tl).....	25
2.3. Determinação da taxa de desintegração do ¹²⁶ I.....	27
2.4. Arranjo Experimental.....	29
2.4.1. Características dos Detectores Utilizados no Sistema 4π (PC)- NaI(Tl).....	29
2.4.1.1. Contador Proporcional 4π (PC).....	29
2.4.1.2. Cristal Cintilador de NaI(Tl).....	30
2.4.1.3. Sistema Eletrônico Associado.....	30
2.4.2. Características dos Detectores Utilizados no Sistema NaI(Tl)- NaI(Tl).....	33

2.4.2.1. Sistema Eletrônico Associado.....	34
2.4.3. Medida de Tempo Morto e de Resolução.....	35
2.4.3.1. Determinação dos Tempos Mortos β e γ	35
2.4.3.2. Determinação do Tempo de Resolução.....	36
2.5. Produção e Preparação das Amostras.....	37
2.5.1. Produção do ^{126}I	37
2.5.2. Preparação das Fontes.....	37
2.6. Correções Aplicadas.....	39
2.6.1. Tempo Morto.....	39
2.6.2. Tempo de Resolução e Coincidências Espúrias	40
2.6.3. Decaimento.....	41
2.6.4. Impurezas Detectadas.....	42
2.6.5. Interferência Compton.....	43
2.6.6. Efeito Soma.....	44
3. ESPECTROMETRIA γ COM DETECTOR SEMICONDUTOR DE GERMÂNIO HIPERPURO (HPGe).....	46
3.1. Área Sob o Pico de Absorção Total.....	47
3.2. Curva de Eficiência do HPGe para Soluções em Ampolas.....	49
3.3. Correções Aplicadas.....	50
3.3.1. Fator Geométrico.....	50
3.3.2. Fator de Atenuação.....	52
3.3.3. Decaimento.....	53
3.3.4. Tempo Morto e Empilhamento de Pulsos.....	53
3.3.5. Efeito Soma.....	54
3.4. Arranjo Experimental.....	54
3.4.1. Características do Espectrômetro Gama.....	55
3.4.2. Medida das Amostras.....	56
3.5. Medida da Meia-Vida do ^{126}I	57

4. RESULTADOS OBTIDOS E ANÁLISE DOS DADOS.....	59
4.1. Resultados da Taxa de Desintegração do ^{126}I	59
4.2. Resultados da Espectrometria Gama.....	63
4.3. Resultados da Intensidade Gama por Decaimento.....	68
4.4. Resultado da Meia-Vida.....	70
4.5. Análise das Incertezas.....	72
4.5.1. Método de Análise de Covariância.....	72
4.5.1.1. Incertezas nas Eficiências de Detecção no HPGe.....	72
4.5.1.2. Incerteza na Taxa de Desintegração.....	76
4.5.1.3. Incerteza na Intensidade Gama Absoluta.....	80
5. CONCLUSÕES.....	82
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	84

INTRODUÇÃO

O conhecimento da intensidade gama por decaimento de radionuclídeos, 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.

Com o aprimoramento de detectores semicondutores utilizados para detecção de fótons (HPGe, Silício, etc.), o uso de radionuclídeos emissores gama tem aumentado continuamente nos vários campos de pesquisa básica e aplicada, assim como na indústria, na medicina, em controle ambiental, na agricultura etc.

O uso desses radionuclídeos implica no conhecimento dos parâmetros de seu esquema de desintegração, principalmente a meia-vida e a intensidade gama dos fótons emitidos. O conhecimento desses parâmetros com boa exatidão está diretamente relacionado a uma boa precisão no valor da atividade do radionuclídeo utilizado e conseqüentemente na sua aplicação.

O objetivo deste trabalho é a determinação da intensidade gama por decaimento do ^{126}I e o desenvolvimento do método de medida absoluta de sua taxa de desintegração.

A medida do ^{126}I é parte integrante do programa de medida de parâmetros nucleares desenvolvido no LMN (Laboratório de Metrologia Nuclear) do IPEN/CNEN-SP, iniciado com a medida do $^{31}\text{Si}^{101}$, para o qual foram selecionados

radionuclídeos de interesse no campo de radiofármacos ou relacionados à estudos de cálculos de reatores.

Especificamente no caso do ^{126}I os dados experimentais de sua intensidade gama apresentam incertezas maiores que as desejáveis (da ordem de 7%^[02]); conseqüentemente, existe a necessidade de novas medidas com incertezas menores. A importância do conhecimento da intensidade gama está principalmente relacionada à:

- produção do ^{125}I (radiofármaco aplicado no tratamento da tireóide); devido a alta secção de choque da reação $^{125}\text{I}(n,\gamma)^{126}\text{I}$ ($\sigma = 894 \pm 90 \text{ b}$)^[03] quantidades substanciais de ^{126}I estão presentes como uma impureza que contamina o ^{125}I produzido em reator^[04]. Assim, no controle de qualidade, é necessário o conhecimento da atividade do ^{126}I residual, sendo utilizadas para isso as emissões gama de 388 keV e 666 keV;
- monitoração do fluxo de nêutrons rápidos de reatores, por meio do estudo da reação $^{127}\text{I}(n,2n)^{126}\text{I}$, reação esta usada como padrão suplementar por apresentar uma energia limiar de 9,2 MeV^[05].

Entre os métodos para determinação da probabilidade de emissão gama por decaimento, destacamos o estudo do esquema de níveis que requer o conhecimento das razões dos ramos beta, das intensidades gama relativas e dos coeficientes de conversão interna^[06]. Embora a medida da intensidade gama relativa seja fácil, as medidas dos ramos beta e dos coeficientes de conversão interna são mais trabalhosas, havendo muitos casos em que por esse método as incertezas na probabilidade de emissão gama por decaimento apresentam pouca exatidão. Outro método é o da determinação da atividade padrão, que depende apenas da medida da intensidade dos raios gama mais intensos, do conhecimento da atividade da amostra em estudo, e da eficiência de detecção do espectrômetro gama, método este empregado no presente trabalho.

O capítulo 1, apresenta como fundamentos teóricos, um resumo dos principais processos de desintegração radioativa, visando um melhor entendimento do decaimento bastante complexo do radionuclídeo em estudo; o formalismo geral da técnica de coincidência para a determinação da taxa de desintegração (atividade) e a metodologia da medida da intensidade gama propriamente dita.

O capítulo 2 apresenta o método de coincidência diretamente aplicado para o caso do esquema de desintegração do ^{126}I assim como os arranjos experimentais, as técnicas de preparação de fontes e as correções feitas para a padronização deste radionuclídeo.

De maneira semelhante, mas relacionado ao espectrômetro gama, o capítulo 3 apresenta a metodologia, o arranjo experimental e as correções empregadas na medida da intensidade gama em um detector semicondutor de germânio hiper-puro.

No capítulo 4 são apresentados o tratamento de dados, resultados obtidos e a metodologia de análise de erros empregada.

Finalmente no capítulo 5 tem-se a discussão dos resultados obtidos e conclusões.

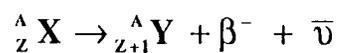
1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS

1.1. PROCESSOS DE DESINTEGRAÇÃO RADIOATIVA

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.

Decaimento beta:

▪ Decaimento β^- : neste decaimento, um antineutrino (que tem massa de repouso nula e uma probabilidade extremamente pequena de interação com a matéria) e um elétron negativo (β^-) são emitidos do núcleo como o resultado do processo : $n \rightarrow p + \beta^- + \bar{\nu}$. O decaimento aumenta a carga nuclear em uma unidade. Esquemáticamente:



A energia liberada em uma única transição β^- é dividida entre a partícula β^- e o antineutrino tal que, quando um grande número de transições é considerada, tanto os antineutrinos quanto as partículas β^- tem distribuições de energia se estendendo de 0 até um valor máximo. Para o decaimento de um nível de energia particular, E_L , no núcleo filho, a energia máxima avaliada é⁽⁰⁷⁾:

$$E_{\text{máx}} = Q^- - E_L \quad (1.1)$$

onde Q^- é a diferença de massa atômica, expressa em unidades de energia, entre os estados fundamentais dos núclídeos pai e filho. A energia média de uma partícula β^- nesta transição é dada por^[08]:

$$E_{\text{méd}} = \frac{\int_0^{E_{\text{máx}}} E N(E) dE}{\int_0^{E_{\text{máx}}} N(E) dE} \quad (1.2)$$

onde $N(E)$ é o número de partículas β^- com energia entre E e $E+dE$.

▪ Decaimento β^+ : neste decaimento, um neutrino (ν) e um elétron positivo (β^+) são emitidos de um núcleo como resultado do processo: $p \rightarrow n + \beta^+ + \nu$. Este decaimento diminui a carga nuclear de uma unidade.

Esquemáticamente:



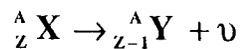
Como no decaimento β^- , as partículas β^+ emitidas na transição para um nível particular do núcleo filho tem uma distribuição de energia contínua com uma energia máxima $E_{\text{máx}}$ e uma energia média $E_{\text{méd}}$ bem definidas^[08].

$$E_{\text{máx}} = Q^+ - 2mc^2 \quad (1.3)$$

onde Q^+ é a diferença de massa atômica, expressa em unidades de energia, entre os estados fundamentais dos núclídeos pai e filho. O decaimento β^+ , para um nível de

energia particular E_L , não pode ocorrer a menos que $Q^+ - E_L > 2mc^2$ (onde $2mc^2 = 1021,99812 \text{ keV}$)⁽⁰⁹⁾.

Decaimento por Captura-Eletrônica (CE): Neste processo um elétron orbital é capturado pelo núcleo e um neutrino é emitido como resultado do processo $p + e^- \rightarrow n + \nu$. Este decaimento diminui a carga nuclear de uma unidade e deixa o núcleo filho com uma vacância em uma das camadas atômicas. Esquematicamente:



O elétron capturado da camada K, por exemplo, se refere ao processo de captura onde a vacância do estado final é na camada K. Para o elétron de captura da camada K em um nível particular de energia, E_L , a energia liberada é dada por: $Q^+ - E_L - E_K$, onde E_K é a energia de ligação da camada K do átomo filho.

O processo de captura eletrônica sempre compete com o decaimento β^+ mas também pode ocorrer quando a energia de transição é pequena para permitir a emissão β^+ , ou seja, quando $Q^+ - E_L < 1021,99812 \text{ keV}$.

Radiação gama: Uma transição γ ocorre quando um núcleo é desexcitado para um nível de energia mais baixo que pode ou não ser o estado fundamental. Este se manifesta pela emissão de um fóton γ ou um elétron de conversão.

A intensidade da transição γ é dada por:

$$T_\gamma = I_\gamma + I_{CE} \quad (1.4)$$

onde I_γ e I_{CE} são as intensidades da emissão γ e da emissão do elétron de conversão, respectivamente.

▪ Emissão γ : Os raios- γ são originados no núcleo como o resultado de uma desexcitação nuclear, e sua energia (monoenergética) se estende de poucos a vários milhões de eV quando emitidos por fontes radioativas.

A energia do raio- γ emitido é ^[07]:

$$E_{\gamma} = (E_i - E_f) - E_r \quad (1.5)$$

onde:

$E_i - E_f$ é a diferença de energia entre os níveis inicial e final da transição γ ,

E_r é a energia de recuo do estado final do núcleo, dado por^[07] :

$$E_r = \frac{(E_{\gamma})^2}{2 M_N c^2} \quad (1.6)$$

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 γ e baixos números atômicos.

▪ Conversão Interna: O processo de conversão interna inicia com um núcleo em estado excitado, que pode ter sido formado por um processo precedente - frequentemente o decaimento beta de um nuclídeo pai. O método comum de desexcitação é por meio da emissão de um fóton. Para alguns estados excitados, a emissão gama pode ser relativamente inibida, e a alternativa da conversão interna pode tornar-se significativa. Aqui, 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^[07]:

$$E_{ceX} = E_{eX} - E_X \quad (1.7)$$

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

Para uma dada transição, a razão da probabilidade para emissão do elétron de conversão da camada K e emissão do raio- γ é chamada de coeficiente de conversão interna e é definido por^[07]:

$$\alpha_K = \frac{I_{cek}}{I_\gamma} \quad (1.8)$$

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

$$\alpha_T = \alpha_K + \alpha_L + \alpha_M + \dots = \frac{I_{ce}}{I_\gamma} \quad (1.9)$$

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

Com isso tem-se as seguintes relações^[07]:

$$I_{ce} = \frac{\alpha_T}{1 + \alpha_T} T_\gamma \quad (1.10) \text{ e}$$

$$I_\gamma = \frac{1}{1 + \alpha_T} T_\gamma \quad (1.11)$$

Encontra-se com frequência na literatura os valores dos coeficientes de conversão interna relativos, representados simbolicamente por K/L/M que são definidos por^[07]:

$$K/L = \frac{I_{cek}}{I_{cel}} = \frac{\alpha_k}{\alpha_l} \quad (1.12), \quad K/LM = \frac{I_{cek}}{I_{cel} + I_{cem}} = \frac{\alpha_k}{\alpha_l + \alpha_m}, \dots \quad (1.13)$$

Rearranjo Eletrônico: A captura eletrônica e a conversão interna são processos que originam vacâncias na nuvem eletrônica. O preenchimento destas vacâncias 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.

- **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^[07].

Os elétrons Auger produzem um espectro de energia discreto, com diferentes grupos correspondentes aos diferentes estados inicial e final. Sua energia é relativamente baixa comparada com a das partículas β ou dos elétrons de conversão, particularmente porque a emissão dos elétrons Auger são favoráveis somente à elementos de Z baixo (< 45) cujas energias de ligação dos elétrons são pequenas^[10].

- **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 nanosegundos 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.

1.2. MÉTODO DE MEDIDA ABSOLUTA DA ATIVIDADE

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

(1) os métodos diretos, onde algumas radiações são detectadas sob condições bem definidas, tais como geometria, eficiência, espalhamento etc., ou onde todas as radiações emitidas são detectadas;

(2) os métodos de coincidência, onde pela medida adequada das taxas de contagens, a taxa de desintegração pode ser determinada sem o conhecimento exato dos parâmetros do detector (ângulo sólido, eficiência etc.).

O método de coincidência^[11,12,13,14] 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.

1.2.1. FORMALISMO GERAL DO MÉTODO DE COINCIDÊNCIA

O método de coincidência é aplicável, principalmente, a radionuclídeos que se desintegram pela emissão de duas ou mais radiações α - γ , β - γ , raio-X- γ , emitidas simultaneamente.

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, figura 1.1.

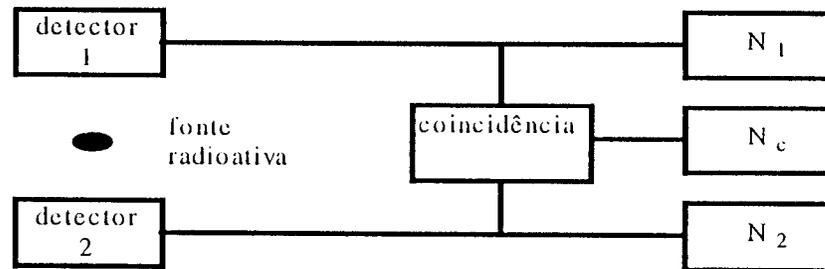


Figura 1.1: Diagrama de bloco do sistema de coincidência.

Considerando-se uma fonte puntiforme de um emissor genérico, com esquema de decaimento simples (figura 1.2), pode-se escrever as equações para este método como:

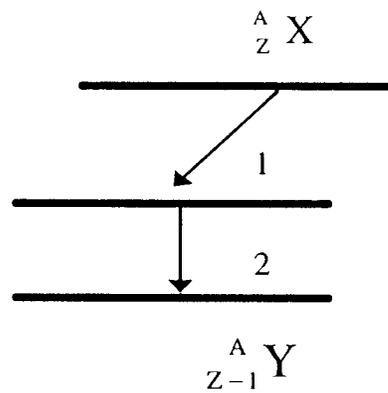


Figura 1.2: Esquema de decaimento para um emissor genérico ${}^A_Z X$.

$$N_1 = N_0 \epsilon_1 \quad (1.14)$$

$$N_2 = N_0 \epsilon_2 \quad (1.15)$$

$$N_c = N_0 \epsilon_1 \epsilon_2 \quad (1.16)$$

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 ϵ_1 e ϵ_2 são as eficiências dos detectores 1 e 2.

Multiplicando-se as equações (1.14) e (1.15) e dividindo pela (1.16), tem-se:

$$\frac{N_1 N_2}{N_C} = N_0 \quad (1.17)$$

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

1.2.1.1. TÉCNICA DE EXTRAPOLAÇÃO LINEAR DA EFICIÊNCIA

As considerações apresentadas no item 1.2.1, correspondem às condições ideais e raramente alcançadas. Na prática, os núclídeos apresentam esquemas de desintegração complexos, de modo que uma série de correções devem ser aplicadas^[12,14,15], como, por exemplo, sensibilidade dos detectores a outras radiações que não sejam desejadas, uso de fontes não puntiformes, tempos de resposta diferentes para cada detector. Portanto, para um caso prático em que o radionuclídeo decai por β^- - γ e apresenta um esquema de desintegração complexo, com n ramos beta, as equações 1.14, 1.15 e 1.16 podem ser reescritas como:

$$N_\beta = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\epsilon_{\beta_r} + (1 - \epsilon_{\beta_r}) \left(\frac{\alpha \epsilon_{cc} + \epsilon_{\beta_r}}{1 + \alpha} \right)_r \right] \quad (1.18)$$

$$N_\gamma = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \epsilon'_{\gamma_r} \quad (1.19)$$

$$N_c = N_0 \sum_{r=1}^n a_r [\epsilon_{\beta_r} \epsilon'_{\gamma_r} + (1 - \epsilon_{\beta_r}) \epsilon_{c_r}] \quad (1.20)$$

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

onde:

- a_r abundância do r-ésimo grupo beta,
- ϵ_{β_r} eficiência para o r-ésimo grupo beta,
- ϵ'_{γ_r} eficiência para o gama correspondente ao r-ésimo grupo beta,
- α_r coeficiente de conversão interna total para o r-ésimo grupo beta.
- ϵ_{c_r} eficiência para contagens de coincidência gama-gama,
- ϵ_{cc} eficiência do detector beta para elétrons de conversão,
- $\epsilon_{\beta\gamma}$ eficiência do detector beta para a radiação gama.

Com isso, a equação 1.17 passa a ser representada por:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \frac{\sum_{r=1}^n a_r \left[\epsilon_{\beta_r} + (1 - \epsilon_{\beta_r}) \left(\frac{\alpha \epsilon_{cc} + \epsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \right] \left[\sum_{r=1}^n a_r \epsilon'_{\gamma_r} \right]}{\sum_{r=1}^n a_r \left[\epsilon_{\beta_r} \epsilon'_{\gamma_r} + (1 - \epsilon_{\beta_r}) \epsilon_{c_r} \right]} \quad (1.21)$$

Analisando a equação 1.21 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"^[11,12,13].

Segundo esta técnica a determinação de N_0 (atividade) só será possível se pudermos estabelecer uma relação funcional entre N_β e o parâmetro de eficiência N_C/N_γ 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 como 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 ϵ_{cc} , $\epsilon_{\beta\gamma}$ e ϵ_γ sejam constantes ou nulos.

Das equações 1.19 e 1.20 obtém-se que:

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = \frac{\sum_{r=1}^n a_r \epsilon'_\gamma \left[\epsilon_{\beta r} + (1 - \epsilon_{\beta r}) \epsilon_{cr} / \epsilon'_\gamma \right]}{\left[\sum_{r=1}^n a_r \epsilon'_\gamma \right]} \quad (1.22)$$

sendo k_r constante para uma dada eficiência beta (r -ésimo ramo beta)

$$\frac{a_r \epsilon'_\gamma}{\sum_{r=1}^n a_r \epsilon'_\gamma} = k_r \text{ e } \sum k_r = 1.$$

Assim:

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = 1 - \sum k'_r [1 - f_r(\epsilon_{\beta s})] \quad (1.23)$$

com $k'_r = k_r (1 - \epsilon_{cr} / \epsilon'_\gamma)$ e $N_C/N_\gamma \rightarrow 1$ quando $\epsilon_{\beta s} \rightarrow 1$.

Portanto N_β é simplesmente uma função F do parâmetro de eficiência N_C/N_γ tal que

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

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

Esta é a fórmula de coincidência generalizada^[12].

Para um intervalo limitado de variação do parâmetro de eficiência e para espectros semelhantes dos grupos beta 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 sua solução gráfica ou analítica^[16,17], usando-se a razão $N_\beta N_\gamma / N_C$ como variável dependente e $[1-(N_C/N_\gamma)]/(N_C/N_\gamma)$ como parâmetro variável. Desta forma obtem-se uma função G , cuja variação é mais lenta do que a da função F referida na equação (1.24).

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

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

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

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.

Determina-se portanto a taxa de desintegração N_0 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. MEDIDA DA INTENSIDADE GAMA POR DECAIMENTO

Em um espectro gama, os fótons de mesma energia dão origem ao pico de absorção total, o qual é a informação essencial do espectro pois caracteriza o raio gama de emissão. Sua abscissa representa a energia dos fótons e sua área é proporcional à taxa de emissão fotônica, permitindo assim deduzir a intensidade gama absoluta do raio gama ou a atividade do radionuclídeo presente.

Para uma análise quantitativa da radiação gama, os parâmetros necessários que devem ser considerados são: a eficiência absoluta do pico de absorção total, a atividade do emissor gama e sua intensidade absoluta de emissão com energia (E).

Este último pode ser determinado por meio da razão^[18]:

$$I_\gamma(E) = \frac{S(E)}{A \epsilon_\gamma(E)} \quad (1.26)$$

onde:

- S área sob o fotopico para a energia gama considerada,
- A atividade da fonte obtido pelo método de medida absoluta (N_0),
- ϵ_γ eficiência de detecção determinada por meio da curva de calibração em eficiência para o espectrômetro utilizado .

Sendo que tanto o parâmetro A como ϵ_γ devem ser previamente conhecidos.

2. MEDIDA DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO DO ^{126}I

Serão a seguir, apresentadas as considerações teóricas e o formalismo do método de coincidência desenvolvidos especificamente para o ^{126}I , considerando-se seu esquema de decaimento e os sistemas utilizados.

2.1. ESQUEMA DE DECAIMENTO DO ^{126}I

O ^{126}I se desintegra com uma meia-vida de $13,02\text{d}^{[19]}$, com 46% de probabilidade por emissão β^- populando os níveis excitados do ^{126}Xe e com 54% de probabilidade por processo de captura eletrônica e emissão β^+ populando os níveis excitados do ^{126}Te . O esquema de desintegração do ^{126}I é mostrado na figura 2.1^[19,20].

Nas tabelas 2.1 e 2.2 são apresentadas as energias e intensidades absolutas mais intensas ($> 0,1\%$) dos vários tipos de radiações emitidas no decaimento do ^{126}I .

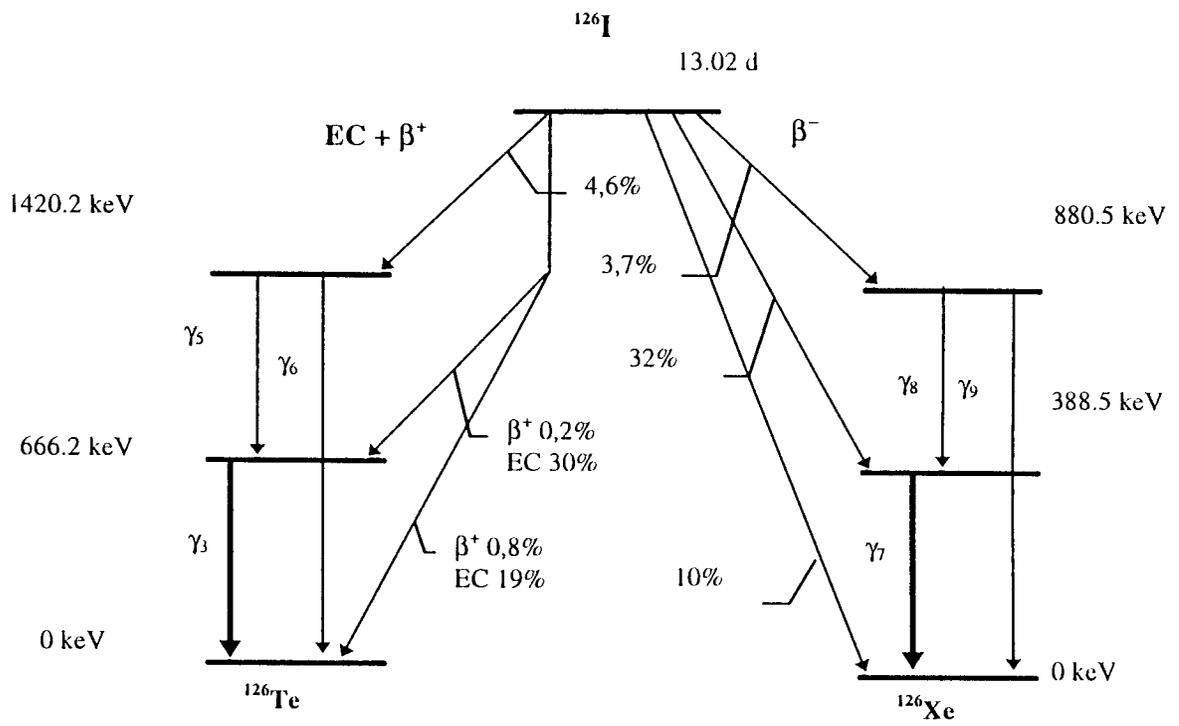


FIGURA 2.1: Esquema de decaimento do $^{126}\text{I}^{[19,20]}$.

TABELA 2.1^[08] - Tipos de radiação, energia e intensidade absoluta para o processo de decaimento por (EC+ β^+).

TIPO DE RADIAÇÃO	ENERGIA (keV)	INTENSIDADE (%)	
Eletron Auger			
e_{AL}	3,19	43 (3)	
e_{AK}	22,7	5,7 (13)	
Conversão Interna			
e_{cK1}	634,517 (12)	0,108 (9)	
β^+			
β^+ 1 máx	1134 (5)		
méd	508,4 (23)	3,34 (22)	
Raio - X			
X_L	3,77	4,3 (15)	
$X_{K\alpha 2}$	27,20170 (20)	11,3 (7)	
$X_{K\alpha 1}$	27,47230 (20)	21,1 (13)	
$X_{K\beta}$	31	7,3 (5)	
Radiação - γ			α -coeficiente de conversão interna
γ_3	666,331 (12)	33,1 (25)	0,00382 ^[02]
γ_5	753,819 (13)	4,2 (4)	0,0028 ^[02]
γ_6	1420,19 (3)	0,295 (23)	
γ_{\pm}	511,0034 (14) ^[20]	6,68	

TABELA 2.2^[08] - Tipos de radiação, energia e intensidade absoluta para o processo de decaimento por β^- .

TIPO DE RADIAÇÃO	ENERGIA (keV)	INTENSIDADE (%)	
Eletron Auger			
e_{AL}	3,43	0,51 (5)	
Eletron de Conversão	354,072 (11)	0,53 (5)	
e_{ccK1}			
β^-			
β^-_1 máx	371 (5)		
méd	108,9(17)	3,6 (3)	
β^-_2 máx	862 (5)		
méd	289,7 (20)	32 (3)	
β^-_3 máx	1251 (5)		
méd	449,5(22)	8 (3)	
Total β^-			
méd	304,1 (22)	44 (5)	
Raio - X			
$X_{K\alpha 2}$	29,4580 (10)	0,134 (12)	
$X_{K\alpha 1}$	29,7790 (10)	0,249 (22)	
Radiação - γ			α -coeficiente de conversão interna
γ_7	388,633 (11)	34 (3)	0,0187 ^[02]
γ_8	491,243 (11)	2,85 (22)	0,00944 ^[02]
γ_9	879,876 (13)	0,75 (6)	

2.2. SISTEMAS DE COINCIDÊNCIA

Para a padronização do ^{126}I , isto é, a determinação da taxa de desintegração, foram empregados dois sistemas de coincidência distintos. O sistema convencional $4\pi\beta\text{-}\gamma$ utilizado para medida do ramo que se desintegra pela emissão de β^- e β^+ e o sistema de coincidência raio X- γ para a medida do ramo que se desintegra pelo processo de captura eletrônica, emitindo raios-X_K característicos. A atividade foi obtida pela combinação dos resultados das medidas nos dois sistemas de coincidência.

2.2.1. SISTEMA DE COINCIDÊNCIA $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$

No método de coincidência convencional $4\pi\beta\text{-}\gamma$ utilizou-se um detector proporcional à gás fluente em geometria 4π , para detecção das partículas beta, acoplado a um par de cristais de cintilação de NaI(Tl) para a detecção da radiação gama coincidente.

Analisando o esquema de decaimento do ^{126}I (item 2.1), verificou-se que a radiação gama mais conveniente (por ser a mais intensa) a ser selecionada para medida em coincidência com o β^- , foi a radiação gama de 388 keV, entretanto devido a presença dos pósitrons e dos raios-X provenientes da captura eletrônica, foi feita paralelamente a medida do gama de 666 keV coincidente com estes.

Desse modo, as expressões das taxas de contagem no sistema proposto para o ^{126}I , considerando-se a hipótese de que praticamente todo β^+ decai diretamente para o nível fundamental, são dadas por:

$$N_{\beta} = N_0 \left\{ b \epsilon_{\beta} + (1 - \epsilon_{\beta}) b \left(\frac{b_7 \alpha_7 \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta\gamma_7}}{1 + \alpha_7} \right) + p \epsilon_{\beta} + (1 - \epsilon_{\beta}) p 2 \epsilon_{\beta\gamma_5} + (a - p) \epsilon_X + \right. \\ \left. + (a - p)(1 - \epsilon_X) \left[\left(\frac{(a - p)_3 \alpha_3 \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta\gamma_3}}{1 + \alpha_3} \right) + \left(\frac{(a - p)_5 \alpha_5 \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta\gamma_5}}{1 + \alpha_5} \right) \right] \right\} \quad (2.1)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \left(\frac{I_{\gamma_7}}{1 + \alpha_7} \right) \epsilon_{\gamma_7} \quad (2.2)$$

$$N_c = N_0 \left(\frac{I_{\gamma_7}}{1 + \alpha_7} \right) \epsilon_{\gamma_7} \epsilon_{\beta} \quad (2.3)$$

onde:

- N_0 é a taxa de desintegração total da fonte,
- b é a probabilidade de desintegração por β^- ,
- a é a probabilidade de desintegração por EC + β^+ ,
- p é a probabilidade de desintegração por β^+ ,
- $(a - p)$ é a probabilidade de desintegração por captura eletrônica,
- N_{β} é a taxa de contagem do contador proporcional,
- N_{γ} é a taxa de contagem da janela gama de 388 keV (NaI),
- N_c é a taxa de contagem do módulo de coincidência,
- ϵ_{β} é a eficiência para o ramo β (β^- e β^+),
- $(1 - \epsilon_{\beta})$ é a ineficiência para o ramo β (β^- e β^+),
- ϵ_{γ_7} é a eficiência para o γ_7 (388 keV), tabela 2.2, item 2.1,
- α é o coeficiente de conversão interna total, os subíndices representam a transição gama correspondente (tabela 2.1 e 2.2),
- I_{γ_7} é a probabilidade de emissão do γ_7 (388 keV), tabela 2.2, item 2.1,
- ϵ_{ec} é a eficiência do detector β para elétrons de conversão,
- $\epsilon_{\beta\gamma}$ é a eficiência do detector β para a radiação gama,
- ϵ_X é a eficiência do detector β para raio-X ,
- $(1 - \epsilon_X)$ é a ineficiência do detector β para raio-X,
- $\epsilon_{\beta\gamma_5}$ eficiência do detector β para o raio gama de aniquilação (511keV)

Os subíndices (3, 5 e 7) representam os grupos beta e captura eletrônica indicados na figura 2.1, item 2.1, cujos valores estão indicados nas tabelas 2.1 e 2.2.

Dividindo-se a equação (2.3) pela (2.2) obtém-se $\epsilon_{\beta} = N_C / N_{\gamma}$ e fazendo-se alguns rearranjos matemáticos; considerando $\epsilon_{\beta}^{-} = \epsilon_{\beta}^{+}$, $k_{b7} = \left(\frac{b_7 \alpha_7 \epsilon_{cc} + \epsilon_{\beta 77}}{1 + \alpha_7} \right) e$

$$k_x = \left[\left(\frac{(a-p)_3 \alpha_3 \epsilon_{cc} + \epsilon_{\beta 73}}{1 + \alpha_3} \right) + \left(\frac{(a-p)_5 \alpha_5 \epsilon_{cc} + \epsilon_{\beta 75}}{1 + \alpha_5} \right) \right],$$
 e dividindo-se a equação (2.1) por N_C / N_{γ} , obtém-se:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_C} = N_o \left\{ b + p + \frac{(1 - N_C / N_{\gamma})}{N_C / N_{\gamma}} [b k_{b7} + 2p \epsilon_{\beta 7a} + (a-p) [\epsilon_x + k_x - \epsilon_x k_x]] \right\} + N_o (a-p) [\epsilon_x + k_x - \epsilon_x k_x] \quad (2.4)$$

Como a variação de ϵ_x , obtida da medida do γ de 666 keV, foi pequena (menor que 1%) pode-se fazer:

$\epsilon_x + k_x - \epsilon_x k_x = f_x$, com isso tem-se:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_C} - N_o (a-p) f_x = N_o (b+p) \left\{ 1 + \frac{(1 - N_C / N_{\gamma})}{N_C / N_{\gamma}} [B] \right\} \quad (2.5)$$

onde $B = b k_{b7} + 2p \epsilon_{\beta 7a} + (a-p) f_x$

Rearranjando a equação 2.5, tem-se:

$$N_o (b+p) = \left[\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_C} - N_o (a-p) f_x \right] \left(1 + \frac{(1 - N_C / N_{\gamma})}{N_C / N_{\gamma}} [B] \right)^{-1} \quad (2.6)$$

onde:

- $N_0 (b + p)$ é a taxa de desintegração correspondente a emissão β^- e β^+ ,
- b é a probabilidade de desintegração por β^- ,
- p é a probabilidade de desintegração por β^+ ,
- N_β é a taxa de contagem do contador proporcional,
- N_γ é a taxa de contagem da janela - γ de 388 keV (NaI),
- N_C é a taxa de contagens coincidentes,
- $f_X = [\epsilon_X + k_X - \epsilon_X \cdot k_X]$ é um fator de correção para os raios-X detectados na via beta, determinado a partir dos parâmetros do esquema de desintegração e pela medida da eficiência do raio-X na janela de 666 keV.
- B é um fator de correção para o esquema de decaimento referente ao ramo β^- e β^+ determinado experimentalmente pela técnica de extrapolação linear da eficiência ^[13] e representa a contribuição dos eventos não coincidentes para a eficiência de detecção do contador proporcional.

As taxas de contagens observadas, N_β e N_γ foram corrigidas para radiação de fundo, tempo morto, tempo de resolução e decaimento radioativo pelos métodos usuais apresentados no item 2.6. A taxa de coincidência N_C foi corrigida para tempo morto e coincidências acidentais usando-se o formalismo de Cox-Isham ^[21]. Foi considerado também o fator de correção devido ao efeito Compton como descrito no item 2.6.

2.2.2. SISTEMA DE COINCIDÊNCIA NaI(Tl)-NaI(Tl)

Este método de coincidência utilizou dois cristais cintiladores de NaI(Tl). Os raios - X_K de 30 keV provenientes do processo de captura eletrônica foram

detectados por um dos cintiladores, enquanto o outro detectou os raios - γ emitidos simultaneamente.

A energia da radiação gama mais conveniente para este sistema foi a de 666 keV e as expressões das taxas de contagem desse sistema, são dadas pelas equações:

$$N_x = N_o. (a - p). \epsilon_x \quad (2.7)$$

$$N_\gamma = N_o. \left(\frac{I_{\gamma_3}}{1 + \alpha_3} \right). \epsilon_{\gamma_3} \quad (2.8)$$

$$N_c = N_o. \left(\frac{I_{\gamma_3}}{1 + \alpha_3} \right). \epsilon_{\gamma_3}. \epsilon_x \quad (2.9)$$

onde:

N_x é a taxa de contagem em um dos cintiladores ,para o raio X de 30 keV,

N_γ é a taxa de contagem da janela - γ de 666 keV, do outro cintilador,

N_c é a taxa de contagens coincidentes,

$(a - p)$ é a probabilidade de desintegração por captura eletrônica,

α_3 é o coeficiente de conversão interna para a energia gama de 666keV (tabela 2.1),

I_{γ_3} é a probabilidade de emissão do γ_3 (666 keV),

ϵ_{γ_3} é a eficiência para o γ_3 (666 keV),

ϵ_x é a eficiência para raio- X_K ,

Das equações (2.7), (2.8) e (2.9) pode-se escrever:

$$N_o (a - p) = \frac{N_x N_\gamma}{N_c} \quad (2.10)$$

onde:

$N_0(a - p)$ é a taxa de desintegração do ramo de captura eletrônica,

As taxas de contagens observadas N_x , N_y e N_c foram corrigidas como descrito no item 2.2.1 incluindo o fator de correção devido ao efeito soma (item 2.6).

2.3. DETERMINAÇÃO DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO DO ^{126}I

A partir das medidas nos dois sistemas e lembrando que a soma das probabilidades de emissão de cada ramo de desintegração (β^- e $\beta^+ + \text{CE}$), corresponde a unidade, isto é, $(a + b) = 1$, foi possível determinar a taxa de desintegração N_0 pela soma das equações (2.6) e (2.10). Entretanto, como pode ser verificado, vários parâmetros dessas equações dependem do esquema de decaimento. Para contornar este problema e evitar o uso de valores da literatura que apresentam incertezas muito altas, foi aplicada a técnica de extrapolação linear da eficiência para os dois sistemas.

A partir das equações (2.6) e (2.10) obteve-se a razão:

$$R_N - f_x = A \left[1 + B \left(\frac{N_y}{N_c} - 1 \right) \right] \quad (2.11)$$

onde:

$$R_N = \left[\frac{N_\beta N_y}{N_c} / \frac{N_x N_y}{N_c} \right],$$

$$A = (b+p) / (a - p) = [(a - p)^{-1} - 1] \quad (2.11.1).$$

Esta razão (equação 2.11) é independente da atividade, massa e tempo de irradiação da fonte, portanto fontes de diferentes grupos de irradiações puderam ser utilizadas em uma única extrapolação.

Os parâmetros A e B foram obtidos pela técnica de extrapolação linear, utilizando-se o método de mínimos quadrados com o programa LSSOLVER^[22] que inclui a metodologia de matriz de covariância.

O parâmetro de eficiência N_c / N_γ foi variado pelo uso de 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, para os dois sistemas de coincidência empregados. Utilizou-se filmes metalizados de COLLODION (com $\sim 40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ de espessura), folhas de alumínio (com densidade superficial de $0,2 \text{ mg}/\text{cm}^2$) e MYLAR aluminizado (com $0,93 \text{ mg}/\text{cm}^2$ de densidade superficial). Os absorvedores foram colocados de modo a formar um "sanduíche" com a fonte no meio.

Foram feitas várias medidas, discriminando-se os picos de absorção total dos raios- γ de 388 keV e 666 keV que estão em coincidência com as partículas β (β^- e β^+) e dos raios- γ de 666 keV que estão em coincidência com o raio-X de 30 keV.

Os resultados obtidos foram corrigidos para todos os fatores de correção descritos no item 2.6 e permitiram a determinação do valor extrapolado, por meio do gráfico de $R_N - f_X$ versus $(1 - N_c/N_\gamma) / N_c / N_\gamma$ (parâmetro de ineficiência). Estes resultados serão apresentados no capítulo 4.

Conhecendo-se o valor de A (determinado experimentalmente), pode-se determinar a atividade N_0 por meio das medidas no sistema NaI(Tl)-NaI(Tl) (equação 2.10) e os valores das probabilidades de desintegração por β^- , β^+ e CE (**b**, **p** e **a - p**, respectivamente).

2.4. ARRANJO EXPERIMENTAL

2.4.1. CARACTERÍSTICAS DOS DETECTORES UTILIZADOS NO SISTEMA 4π (PC)- NaI(Tl)

O sistema de coincidência 4π (PC)- NaI(Tl) utilizado, compõe-se, como já foi citado anteriormente, de um detector de geometria 4π , tipo pill-box, à gás fluente operando em regime proporcional, empregado na detecção das partículas beta (β^- e β^+), acoplado a dois cristais de NaI(Tl) utilizados para medir as radiações γ coincidentes.

2.4.1.1. CONTADOR PROPORCIONAL 4π (PC)

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

O detector do LMN / IPEN (4π (PC)) é formado por duas partes simétricas de latão, entre as quais corre uma placa ("lingueta") com dois orifícios para a colocação das fontes, permitindo a troca das mesmas sem abertura do detector. A vedação é garantida por um sistema de anéis de borracha colocados em cada uma das metades. Seu volume interno, é delimitado por definidores de latão, que o tornam aproximadamente cilíndrico, tendo 3,0 cm de diâmetro e 7,5 cm de comprimento. Em cada metade do detector estende-se, paralelamente ao eixo do cilindro, o ânodo, constituído por um fio de aço inoxidável, de 25 μm de diâmetro, preso pelas extremidades a isoladores de teflon.

O gás utilizado neste detector é uma mistura de 90% de argônio com 10% de metano (P10), e é operado à pressão atmosférica como contador de eventos, pois em geral os betas depositam somente uma fração de sua energia no volume sensível.

Foi operado com uma tensão de operação de 2.050 V, a medida foi feita no modo integral, discriminando-se apenas o ruído eletrônico (~ 2 keV).

2.4.1.2. CRISTAL CINTILADOR DE NaI(Tl)

Em contato direto com as paredes inferior e superior, de 0,3 cm de espessura do contador "pill-box", foram posicionados os cristais cintiladores de iodeto de sódio ativado com tálio, com dimensões de 76 mm x 76 mm.

A tensão de operação de cada cristal foi de 1.100 V, e a medida foi feita apenas nos picos de absorção total dos gamas em estudo.

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

2.4.1.3. SISTEMA ELETRÔNICO ASSOCIADO

O sistema eletrônico associado (figura 2.2) foi o convencional para este tipo de medida. Este sistema é constituído de três vias distintas:

Via Beta - Na via beta os pulsos provenientes do detector 4π (PC), após serem amplificados, passam por um discriminador (analisador de altura de pulso monocanal) para serem selecionados os intervalos de energia de interesse. 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 cintiladores são somados após sua amplificação, e os intervalos de energia de interesse, são selecionados através de dois analisadores de altura de pulso monocanais.

Os tempos morto e 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 que registra os eventos provenientes de radiações emitidas simultaneamente.

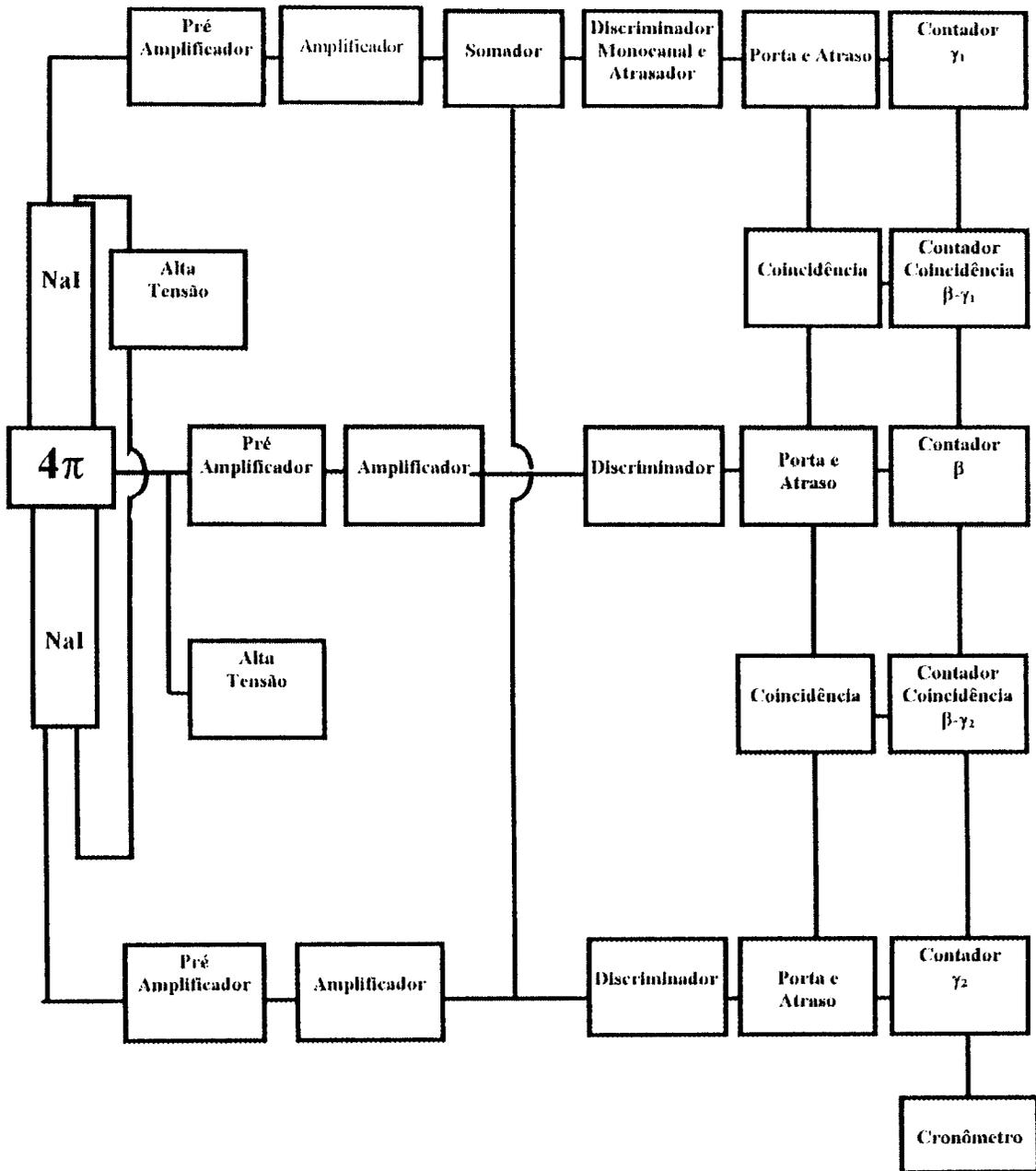


Figura 2.2 - Arranjo eletrônico para o sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$

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 β e γ em fase, de modo que atinjam o módulo de coincidência ao mesmo tempo [23].

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 de tempo pré-estabelecido, conhecido como tempo de resolução " τ_R ".

Os contadores das cinco vias de detecção β , γ_1 e γ_2 e coincidências 1 e 2 estavam ligados a um cronômetro digital.

2.4.2. CARACTERÍSTICAS DOS DETECTORES UTILIZADOS NO SISTEMA NaI(Tl)-NaI(Tl)

O sistema NaI(Tl)-NaI(Tl) para medida das coincidências raio X- γ utiliza detectores cintiladores de iodeto de sódio ativado com tálio, semelhantes aos descritos no sistema 4π (PC) -NaI(Tl), de 76 mm x 76 mm.

O arranjo experimental para este sistema, é constituído de uma garra de alumínio fixada na parede interna de alumínio e chumbo da blindagem, onde foram dispostos frontalmente os NaI(Tl), um com janela voltada para baixo e o outro, fixada numa base com rosca, com janela voltada para cima. Entre eles, foi colocado um suporte de fontes confeccionado em lucite, com alças que permitiram a troca da fonte, somente puxando-se o suporte para fora do arranjo fixo. Desta maneira,

fonte, somente puxando-se o suporte para fora do arranjo fixo. Desta maneira, formou-se um "sanduíche" com a fonte entre os dois detectores que distavam aproximadamente 3mm da fonte radioativa (como mostra a figura 2.3).

2.4.2.1. SISTEMA ELETRÔNICO ASSOCIADO

O sistema eletrônico para este sistema de coincidência (figura 2.3) é semelhante ao descrito no item 2.4.1.3. Foram suprimidos os contadores, amplificadores, discriminadores e módulos de coincidência sobressalentes e o módulo soma.

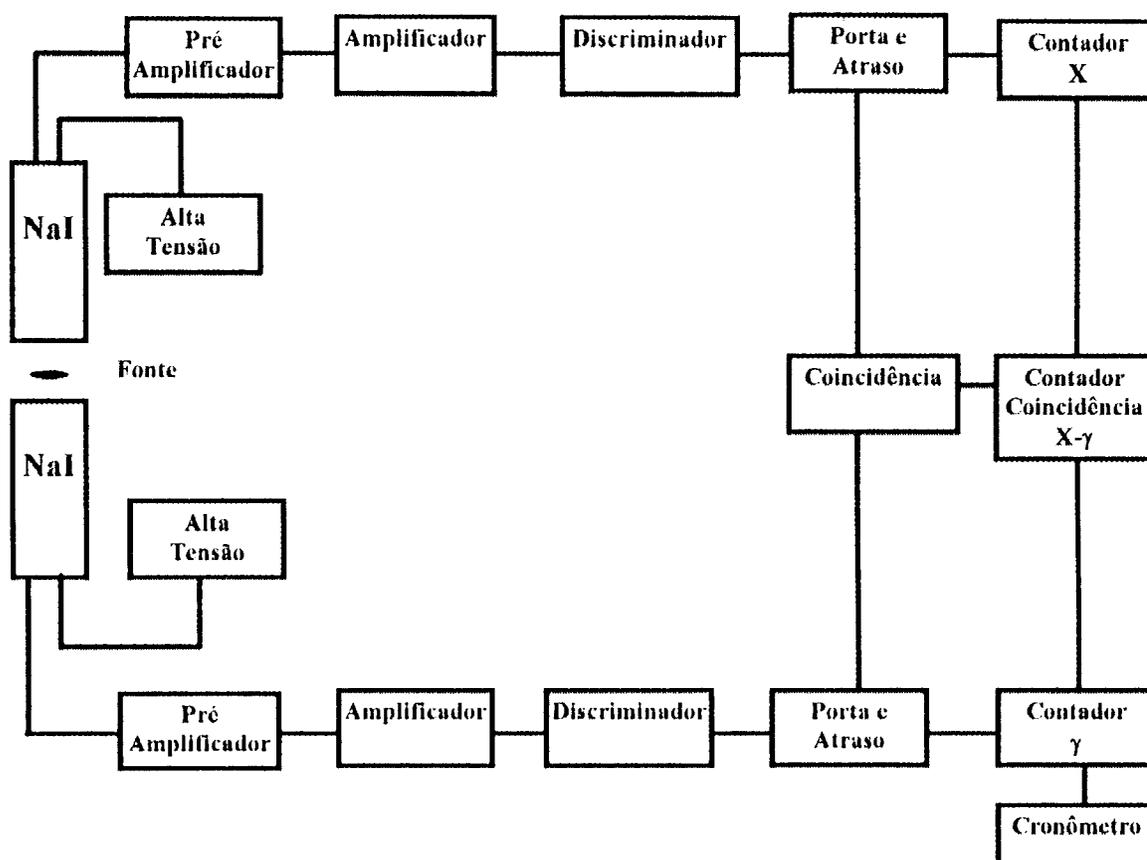


Figura 2.3 - Arranjo eletrônico para o sistema de coincidência NaI-NaI

2.4.3. MEDIDA DE TEMPO MORTO E DE RESOLUÇÃO

Na medida da atividade nos sistemas de coincidência acima descritos, os tempos mortos das vias β , γ 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.

2.4.3.1. DETERMINAÇÃO DOS TEMPOS MORTOS β E γ

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" [24].

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

O tempo morto foi determinado pela expressão [24]:

$$\tau = \frac{1}{n_r} \left\{ 1 - \left(\frac{n_{rp} - n_r}{n_p} \right)^{1/2} \right\} \quad (2.12)$$

Onde:

- n_r é a taxa de contagens por unidade de tempo da fonte radioativa
- n_p é a taxa de contagens por unidade de tempo do gerador (frequência do pulsador)

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

Nesta medida foi utilizada uma fonte de ^{60}Co com uma taxa de contagens da ordem de 20.000 cps. O gerador utilizado foi o TIME MARK GENERATOR Modelo 429 - Marca Tektronix e a frequência usada foi de 20.000 pps (pulsos por segundo).

O valor de tempo morto encontrado para os dois sistemas de coincidência foi de $\tau_{\beta} = (3,259 \pm 0,004) \mu\text{s}$ e $\tau_{\gamma} = (3,238 \pm 0,011) \mu\text{s}$.

2.4.3.2. 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^[15]:

$$\tau_R = \frac{N_{acc}}{2 \cdot N_{\beta} \cdot N_{\gamma}} \quad (2.13)$$

Onde:

N_{acc} é a taxa de contagens acidentais

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

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

O valor de tempo de resolução encontrado foi de $\tau_R = (0,930 \pm 0,007) \mu\text{s}$.

2.5. PRODUÇÃO E PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS

2.5.1. PRODUÇÃO DO ^{126}I

O ^{126}I utilizado neste trabalho, foi produzido no reator de pesquisa tipo piscina, de 2MW de potência do IPEN/CNEN-SP (IEA-R1), a irradiação foi feita numa posição que apresentava um alto fluxo de nêutrons rápidos (posição 62). A reação utilizada foi $^{127}\text{I} (n,2n)^{126}\text{I}$ sob um fluxo de nêutrons rápidos de aproximadamente $5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. As amostras irradiadas foram confeccionadas com 100 mg de pó de KI (MERCK - P.A. 99,5%), seladas em tubo de quartzo e envoltas em cádmio, para minimizar a ativação por nêutrons térmicos. O tempo de irradiação foi de aproximadamente 13 dias (8 horas/dia) e o tempo de "resfriamento" (espera) foi de 10 dias, necessário para que ocorresse o decaimento das impurezas e reações secundárias como $^{82}\text{Br} (T_{1/2} = 1,47 \text{ d})^{(19)}$.

As impurezas ou contaminantes foram controladas pelas medidas no detector HPGe e as impurezas β presentes foram corrigidas por meio de estudos teóricos apresentados no item 2.6.

2.5.2. PREPARAÇÃO DAS FONTES

Para a preparação das fontes de ^{126}I , o KI (100 mg) foi diluído em 6 ml de NaOH ($5 \times 10^{-3} \text{ mol/l}$) e depositado em um substrato de COLLODION (nitrato de celulose), com densidade superficial de 10 a 20 $\mu\text{g/cm}^2$. 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.

As fontes deveriam ser finas e homogêneas para evitar perdas de contagens devido à auto-absorção. Entretanto, durante o processo de secagem, um resíduo tendeu a cristalizar de modo visivelmente não uniforme. Para minimizar este efeito, a fonte foi submetida 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 no filme antes da deposição da solução radioativa.
- secagem em um dessecador.

Devido ao fato do Iodo ser muito volátil, uma alíquota (aproximadamente 10mg) de uma solução contendo 160 mg de AgNO_3 por grama de solução, foi depositada sobre a fonte para garantir que não ocorressem perdas de material radioativo.

A massa da solução radioativa foi determinada gravimetricamente pelo método do picnômetro^[25], 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 M5SA, com uma incerteza de $\pm 20 \mu\text{g}$.

Como o sistema utilizado neste trabalho (sistema de coincidência) tem como pré-requisito o uso de substratos condutores, as fontes foram preparadas em substratos de COLLODION metalizados com Au com densidade superficial de $10\mu\text{g} / \text{cm}^2$.

Desta maneira, preparou-se várias fontes (14 fontes da 1ª irradiação e 9 fontes da 2ª irradiação) para medida nos sistemas de coincidência e uma ampola com 1 ml da solução radioativa para medida no espectrômetro HPGe.

2.6. CORREÇÕES APLICADAS

Para obtenção da taxa de desintegração, as taxas de contagens observadas devem ser corrigidas para radiação de fundo, tempo morto, tempo de resolução, coincidências espúrias e decaimento. No caso das correções para coincidências espúrias e tempo de resolução foi aplicada a fórmula matemática exata desenvolvida por Cox-Isham^[21].

Além das correções acima citadas, para o caso particular do ^{126}I , foi necessária a aplicação de outros fatores de correção específicos, como: correção para impurezas presentes na amostra, efeito da interferência Compton, efeito soma no caso específico do sistema NaI(Tl)-NaI(Tl). Estas correções serão descritas a seguir.

2.6.1. TEMPO MORTO

O intervalo de tempo mínimo, τ , para o qual dois eventos consecutivos devem ser separados para que ambos sejam registrados é denominado tempo morto. Os eventos que chegam durante este período do sistema eletrônico são perdidos e a fração destes eventos aumenta quando a taxa de contagem cresce.

O tempo morto do sistema utilizado neste trabalho foi fixado eletronicamente e seu valor determinado experimentalmente como descrito no item 2.4.3.1, a correção aplicada às taxas de contagens observadas em cada via de detecção (β , γ e coincidência e X, γ e coincidência) é dada por:

$$N = \frac{n}{(1 - n\tau)} \quad (2.14)$$

onde:

- N taxa de contagem corrigida para o tempo morto (taxa real)
- n taxa de contagem medida
- τ 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:

$$N = \frac{n}{(1 - n\tau)} - n_{BG} \quad (2.15)$$

2.6.2. TEMPO DE RESOLUÇÃO E COINCIDÊNCIAS ESPÚRIAS

A taxa de coincidência é obtida pela detecção de duas radiações consideradas simultâneas, em relação ao tempo de resolução fixado eletronicamente (como descrito no item 2.4.3.2). 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^[21] e adequada à um modelo prático por Smith^[26,27]. Esta formulação matemática é exata, para tempos mortos iguais nas duas vias de detecção (beta e gama).

No caso de tempos mortos diferentes, esta fórmula é uma aproximação de 4ª ordem. As formulações anteriores de Bryant^[28] e Campion^[13] só podem ser aplicadas para baixas taxas de contagem e são aproximações de 2ª ordem.

2.6.3. DECAIMENTO

A correção para decaimento 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:

$$N_R = N_m \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}} e^{\lambda(t_m - t_R)} \quad (2.16)$$

onde:

- N_R taxa de desintegração N_0 no instante de referência t_R
- N_m taxa de desintegração N_0 no instante da medida t_m
- λ constante de desintegração do radionuclídeo
- t tempo de medida
- t_R instante de referência (ou data de referência)

t_m instante inicial da medida.

A correção para decaimento dada pela expressão (2.16) foi aplicada à fórmula (2.15) para determinação da taxa de desintegração na data de referência estabelecida.

Esta correção foi determinada pelo programa ATIVIBG (para o sistema beta-gama) e ATIVIXG (para o sistema X-gama) desenvolvido no LMN^[29] e que determina a atividade da fonte.

2.6.4. IMPUREZAS DETECTADAS

A presença de impurezas contaminantes foi detectada a partir da análise das ampolas de ^{126}I no espectrômetro HPGe. Para a identificação e quantificação dessas impurezas, foi feito um acompanhamento em diferentes datas para observação do decaimento das radiações emitidas e identificação dos contaminantes.

Foram feitas também análises das taxas de contagens beta e raio-X, e chegou-se a conclusão que estas estavam acima do valor previsto na literatura. Com isso, concluiu-se que havia impurezas emissoras de radiação beta e gama, produzidas durante a irradiação do material em estudo.

Para uma análise mais rigorosa do espectro gama fornecido, mediu-se as ampolas preparadas com a solução de ^{126}I irradiada, no espectrômetro de HPGe. A detecção de várias energias gamas, que não pertenciam ao espectro de ^{126}I , levou a um acompanhamento, em diferentes datas, do decaimento destas radiações e com isso foram identificadas; por meio de suas energias gamas e meias-vidas; as impurezas contaminantes descritas a seguir:

- $^{127m}\text{Te} - ^{127}\text{Te}$ [$\gamma = 417,9$ keV, $I_\gamma = 0,95$ (10) %, $T_{1/2} = 109(2)$ d]^[19]
- ^{124}Sb [$\gamma = 602,72$ keV mais intenso, $I_\gamma = 98,3$ (20) %, $T_{1/2} = 60,20(3)$ d]^[19]
- ^{86}Rb [$\gamma = 1077,2$ keV, $I_\gamma = 8,79(9)$ %, $T_{1/2} = 18,82(2)$ d].^[19]

As impurezas que alteravam as contagens beta e raio-X medidas nos dois sistemas de coincidência foram identificadas como sendo de ^{127}Te (via β e X), ^{124}Sb (via β e X) e ^{86}Rb (via β). Por este motivo foram calculadas suas atividades e suas respectivas incertezas para as duas irradiações. Estes valores foram subtraídos das taxas de contagens beta e raio-X dos dois sistemas de coincidência, diretamente por meio dos programas de cálculo de atividade (ATIVIBG e ATIVIXG)^[29].

2.6.5. INTERFERÊNCIA COMPTON

Quando a radiação- γ interage com o cristal de NaI, ocorrem vários processos de interação, entre eles o efeito fotoelétrico e o espalhamento Compton. Com isso, tem-se a formação de um espectro contínuo de energia do elétron Compton que pode se estender de zero até uma energia máxima que é um pouco menor que a energia do fóton incidente.

No caso do ^{126}I , foi necessário fazer as correções para esse contínuo Compton nos dois sistemas de coincidência.

Para o sistema $4\pi(\text{PC})-(\text{NaI})$, essa correção foi feita para os picos de absorção total das radiações- γ de 666 keV, 753,8 keV e 1420,2 keV que interferiam nas contagens do raio- γ de 388 keV.

Este fator de correção foi determinado experimentalmente por meio da medida de uma fonte de ^{137}Cs , cuja energia gama de 661 keV é próxima à energia de

666 keV do ^{126}I , o que permitiu determinar a influência Compton na região do pico de absorção total de 388 keV. A influência dos demais raios gama foi calculada teoricamente pela estimativa das eficiências de detecção.

Já para o sistema de coincidência NaI(Tl) - NaI(Tl), tinha-se uma interferência Compton na região do raio- X_K de 30 keV do ^{126}Te .

Esta contribuição foi determinada pela medida das contagens das fontes com um filtro de cobre (com espessura de 0,6 mm) interposto entre a fonte e o detector.

Essas correções foram introduzidas diretamente nos programas que calculam a atividade dos dois sistemas de coincidência.

2.6.6. EFEITO SOMA

Para o sistema de detecção NaI(Tl)-NaI(Tl) foram utilizados dois detectores espessos, o que ocasionou uma interferência considerável nas medidas. Esta interferência denominada efeito soma^[10] é um efeito importante, a ser levado em consideração. Este ocorre quando um radionuclídeo emite múltiplos raios- γ em cascata em seu decaimento, assumindo que nenhum estado isomérico esteja envolvido, o tempo de vida do estado intermediário é geralmente tão curto que dois ou mais raios- γ são, em efeito, emitidos em coincidência. É portanto inteiramente possível para ambos raios- γ , de um único decaimento, interagirem e depositarem toda sua energia dentro de um curto intervalo de tempo comparado com o tempo de resposta do detector ou o tempo de resolução do sistema eletrônico associado. Com isso pode ser observado um pico soma que resulta da detecção coincidente dos pulsos dos picos de absorção total dos dois raios gamas coincidentes.

Este efeito soma não somente cria um pico soma mas pode também remover eventos que por outro lado contribuiriam em um pico de absorção total de raio- γ individual.

O efeito soma é bastante acentuado em detectores espessos e quando a distância fonte-detector é pequena (no nosso caso 3 mm).

Esta correção foi calculada para o sistema de coincidência NaI-NaI e seu valor é da ordem de 0,896, que foi introduzido no programa de cálculo da atividade do ^{126}I para o sistema de coincidência X- γ com sua respectiva incerteza associada (o qual depende das eficiências de detecção e probabilidade de decaimento dos raios gama).

3.ESPECTROMETRIA γ COM DETECTOR SEMICONDUTOR DE GERMÂNIO HIPERPURO (HPGe)

Na medida da probabilidade de emissão da radiação γ 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.

Essa 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:

$$\epsilon_{\gamma} = \frac{S(E)}{I_{\gamma}(E) \cdot A \cdot T} \cdot f \quad (3.1)$$

Onde:

- S área sob o pico de absorção total para a energia γ considerada,
- I_{γ} probabilidade de emissão γ por decaimento da linha considerada,
- A atividade da fonte,
- T tempo de contagem,
- f fatores de correção (item 3.3).

A eficiência do pico de absorção total, denominada a partir de agora apenas de eficiência, foi obtida pela medida de fontes radioativas padrões, isto é, que tem sua atividade e intensidade gama conhecidas com boa exatidão. A partir da medida

das fontes padrões, foi determinada a curva de eficiência, cujos parâmetros são geralmente obtidos por ajuste polinomial pelo método de mínimos quadrados^[30].

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

$$\ln \epsilon_{\gamma}(E) = \sum_{k=0}^n a_k (\ln E)^k \quad (3.2)$$

onde:

n grau do polinômio ajustado.

No caso específico deste trabalho, como a fonte a ser medida estava na forma líquida e acondicionada em ampola de vidro, foi necessária a determinação da curva de eficiência para esta geometria particular, isto é, para soluções em ampolas.

3.1. ÁREA SOB O PICO DE ABSORÇÃO TOTAL

Para o cálculo da área, o método adotado^[31] 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^[32] :

$$S = \sum_{k_2+1}^{k_3-1} C_i - (S_B \cdot F_k) \quad (3.3)$$

onde:

C_i contagens do canal i ,

S_B área sob o espectro das contagens de fundo dada por^[32] :

$$S_B = \sum_{k_1}^{k_2} C_i + \sum_{k_3}^{k_4} C_i \quad (3.4)$$

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 da 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 = $K_p + 3D$

3.2. CURVA DE EFICIÊNCIA DO HPG_e PARA SOLUÇÕES EM AMPOLAS

Para obtenção da curva de eficiência com ampolas padrões, foi necessária a produção e calibração dessas ampolas, a partir de soluções matrizes; para isso, procedeu-se da seguinte maneira:

- Calibração do espectrômetro gama numa posição bem definida (a 17,23 cm sobre o eixo do detector) utilizando-se fontes padrões de ^{60}Co , ^{152}Eu , ^{137}Cs e ^{133}Ba fornecidas pela Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA).
- A partir de soluções matrizes dos mesmos radionuclídeos, produziu-se fontes em polietileno e ampolas seladas. As fontes em polietileno (três para cada radionuclídeo) foram medidas no espectrômetro γ previamente calibrado, fornecendo as atividades das soluções matrizes e conseqüentemente as atividades das ampolas seladas (tabela 4.4) que passaram a ser as ampolas padrões, com as quais pode-se obter a curva de eficiência para a geometria de interesse.

A eficiência das ampolas padrões foi determinada pela expressão 3.1.

Os parâmetros de ajuste da curva de eficiência em função da energia foram determinados por ajuste polinomial pelo método dos mínimos quadrados, como citado no item 3. O programa utilizado foi o LSSOLVER^[22].

A escolha do grau do polinômio mais adequado aos dados experimentais, foi feita pela aplicação do teste F de Snedecor^[33,34] obtido pelo programa S.A.S^[34].

O intervalo de energia considerado foi de 244,70 keV a 1408,02 keV. Após a determinação da curva de eficiência foram feitas as medidas das amostras de ^{126}I .

Os resultados obtidos para a eficiência do espectrômetro são apresentados e discutidos no capítulo 4, assim como os resultados das medidas do ^{126}I .

3.3. 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.

3.3.1. FATOR GEOMÉTRICO

Detectores como Ge(Li) ^[35] ou HPGe, possuem uma eficiência do pico de absorção total $\epsilon(E_\gamma, d)$ para fontes puntiformes a uma distância fonte-detector d , que é proporcional a $(d + d')^{-2}$. Nessa expressão d' é a distância de penetração efetiva no volume sensível do detector, que depende da energia do fóton. Desta maneira, a eficiência do pico de absorção total $\epsilon(E_\gamma, d)$ deve ser expressa de acordo com a equação ^[35]:

$$\epsilon(E_\gamma, d) = \frac{\epsilon_0(E_\gamma)}{[d + d'(E_\gamma)]^2} \quad (3.5)$$

onde:

\mathcal{E}_0 é a eficiência do fóton de energia E_γ , considerada como a eficiência intrínseca do pico de absorção total.

A distância fonte-superfície do detector, d , foi calculada considerando-se as características geométricas do suporte das fontes, além das dimensões destas fontes.

O valor de d' foi determinado teoricamente, considerando o coeficiente de absorção do detector, $\mu(E)$, e a profundidade sensível do detector de HPGe. O valor de d' foi obtido pela equação [35]:

$$d' = \frac{1}{\mu} \left[1 + \frac{\mu h}{1 - e^{-\mu h}} \right] \quad (3.6)$$

Para o cálculo do fator geométrico para as fontes de polietileno, foi utilizada como referência a distância entre as fontes padrões e a superfície do detector. Com isso, o fator geométrico utilizado no cálculo das atividades das amostras foi calculado pela expressão:

$$f_{\text{geo}} = \frac{(d_{\text{amostra}} + d')^2}{(d_{\text{IAEA}} + d')^2} \quad (3.7)$$

Para a padronização das ampolas, o fator geométrico considerado é 1 (um) pois utilizou-se as ampolas como padrão, após a calibração da solução radioativa. Sua incerteza leva em consideração as incertezas nas fontes da IAEA (Agência Internacional de Energia Atômica) e de polietileno, além da altura do líquido. Este é apresentado na tabela 4.12, no capítulo 4.

3.3.2. FATOR DE ATENUAÇÃO

Se a fonte a ser medida e o padrão usado não são aproximadamente iguais, correções devem, a maioria das vezes, ser aplicadas para atenuação na superfície da amostra ou material suporte entre a fonte e o detector.

As correções para atenuação podem, em geral, serem calculadas com boa aproximação, especialmente se a distância fonte-detector é grande, comparada com as dimensões da fonte, pois todas as radiações da fonte para o detector podem ser consideradas como perpendiculares à superfície do detector.

Para a atenuação do raio- γ na própria amostra, tem-se ^[36]:

$$I = I_0 e^{-\mu_0 \frac{x}{2}} \quad (3.8)$$

onde:

- I é o número de fótons transmitidos por uma amostra de espessura x , com relação a um feixe incidente de intensidade I_0
- μ_0 é o coeficiente de atenuação linear total ^[37]
- $x/2$ é a meia-espessura.

No caso das ampolas padrões, o fator de atenuação é considerado 1 (um) e seu erro leva em consideração a altura do líquido e a espessura do vidro da ampola. Este é apresentado na tabela 4.12, no capítulo 4.

3.3.3. DECAIMENTO

A atividade da amostra (A) num determinado instante, é função da atividade inicial A_0 , do tempo t transcorrido entre a sua calibração ou produção e o instante da medida, e da meia-vida, $T_{1/2}$, desse nuclídeo. Isto pode ser expresso pela equação:

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \quad (3.9)$$

onde:

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

3.3.4. TEMPO MORTO E EMPILHAMENTO DE PULSOS

Para corrigir os efeitos de tempo morto e de empilhamento de pulsos foi adotado o método do pulsador. Pulsos eletrônicos de um pulsador de precisão com baixa frequência conhecida f 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:

$$f_{\tau} = \frac{S_{\text{pnc}}}{S_{\text{pnc}}} \quad (3.10)$$

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.

3.3.5. EFEITO SOMA

A correção para o efeito soma no detector de HPGe, é exatamente a mesma já descrita no item 2.6.6. Mas para este caso, como a distância fonte-detector é grande (aproximadamente 17,23 cm), esta correção foi considerada desprezível (< 0,5%), pois só é importante em casos de pequena distância fonte-detector.

3.4. ARRANJO EXPERIMENTAL

O espectrômetro gama do LMN (Laboratório de Metrologia Nuclear) do IPEN/SP é constituído de um detector de germânio hiper-puro (HPGe), em geometria bem definida acoplado a um sistema eletrônico convencional (na figura 3.1. é mostrado o diagrama de bloco do espectrômetro gama).

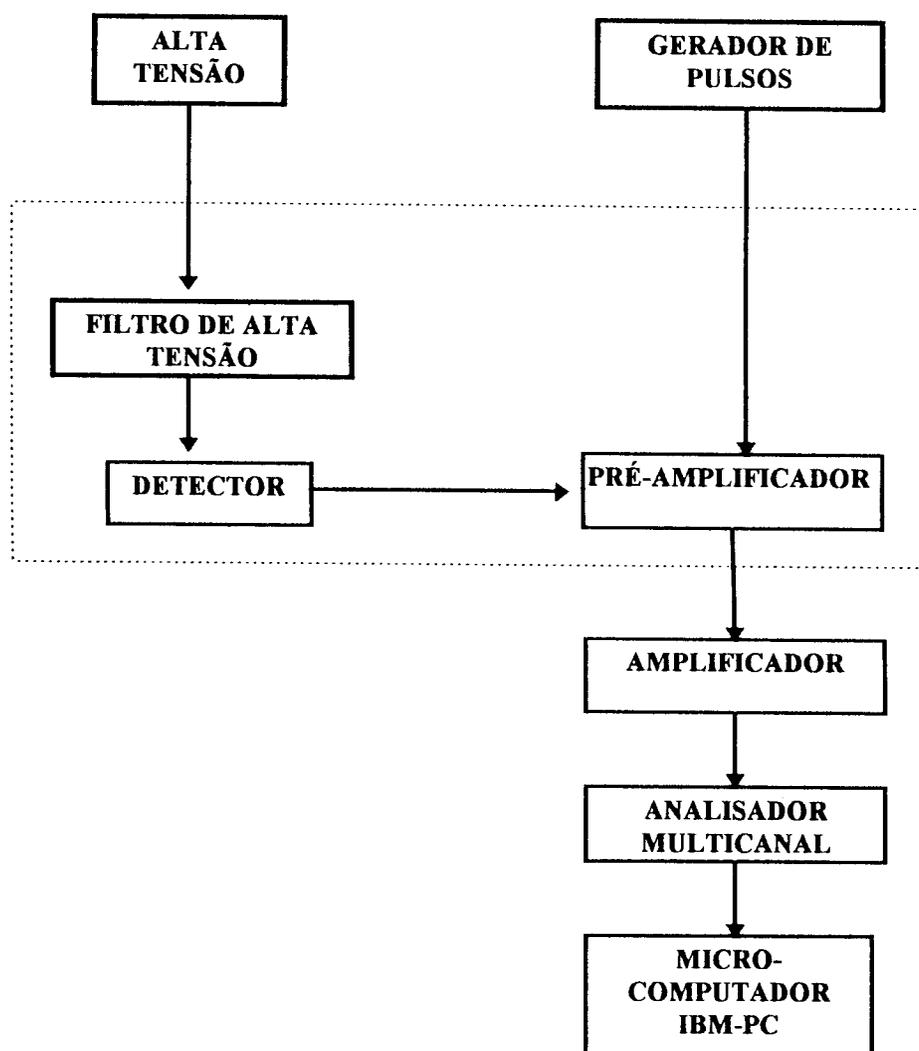


Figura 3.1: Sistema eletrônico para medidas no Detector de HPGe

3.4.1. CARACTERÍSTICAS DO ESPECTRÔMETRO GAMA

Detector de HPGe da marca INTERTECHNIQUE - tipo EGC 20, coaxial com diâmetro 51,2 mm e área sensível $20,6 \text{ cm}^2$, comprimento 50,2 mm e volume sensível $99,7 \text{ cm}^3$. A tensão de operação foi de 3.000 volts (negativo).

O sistema eletrônico utilizado é constituído de um pré-amplificador e um filtro de alta tensão, constituindo uma única peça. Este conjunto está montado em

O sistema eletrônico utilizado é constituído de um pré-amplificador e um filtro de alta tensão, constituindo uma única peça. Este conjunto está montado em contato com nitrogênio líquido, por meio de um "dedo-frio". Todo o conjunto está blindado contra campos eletromagnéticos.

Demais componentes eletrônicos associados ao sistema:

- Fonte de alta tensão - Modelo ORTEC 459 , possui ajuste contínuo de 0 a 5kV e estabilidade $< 0,1\%$.
- Amplificador - Modelo ORTEC 572, com uma constante de tempo de $2 \mu\text{s}$, saída unipolar.
- Gerador de Pulsos - Modelo CAMBERRA 1501 - frequência 60 Hz, estabilidade 50 pulsos por minuto/volt/dia.
- Analisador Multicanal - Modelo IEN 115001, é composto por uma Interface Multicanal - Modelo IEN 11019; um Conversor Analógico/Digital - Modelo 11020 (módulo NIM) (2048 canais) e um Programa gerenciador.
- Micro-computador tipo PC-XT marca SCOPUS .

3.4.2. MEDIDA DAS AMOSTRAS

Devido a baixa atividade específica ($< 1,67 \times 10^5 \text{ Bq/g}$) das fontes de ^{126}I em COLLODION e de sua fragilidade decidiu-se utilizar ampolas seladas contendo a solução radioativa (aproximadamente 1ml ou $8,0 \pm 0,5 \text{ mm}$ de altura do líquido). A espessura da ampola de vidro foi de aproximadamente $0,6 \pm 0,2 \text{ mm}$.

O tempo de contagem foi de 50.000 s, para as ampolas das duas irradiações distintas. 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 total foi calculada pelo programa UNITGAM^[32], para cada linha de energia de interesse; a atividade das ampolas, 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 3.2; são dados de entrada do programa. Este programa tem como opção de saída ou a atividade, ou a eficiência ou a área dos picos de absorção total da energia desejada.

A medida no espectrômetro gama possibilitou também a determinação da probabilidade de emissão de pósitrons (β^+) por meio da medida da intensidade da radiação de 511 keV. Esta medida foi feita colocando-se a ampola com a solução de ^{126}I dentro de um cilindro de lucite com paredes de 0,63 cm de espessura, para garantir que todos os pósitrons fossem aniquilados na fonte.

3.5. MEDIDA DA MEIA-VIDA DO ^{126}I

Em razão das discrepâncias advindas da presença de impurezas (item 2.6.4.) verificadas nas medidas do sistema de coincidência e do espectrômetro gama, decidiu-se fazer o estudo da meia-vida do ^{126}I , do qual obteve-se um valor discordante dos encontrados na literatura.

Essas medidas foram feitas no espectrômetro de HPGe, onde as ampolas foram colocadas a uma distância de 17,23 cm e foram contadas por 50.000 segundos. Com os resultados das áreas sob os picos de absorção total de energia mais intensos (388 keV e 666 keV), calculou-se a meia-vida do ^{126}I .

O resultado final para a meia-vida foi a média aritmética dessas medidas nos dois picos de absorção total de energia (388 keV e 666 keV). Estes estão apresentados no capítulo 4, na tabela 4.11.

4. RESULTADOS OBTIDOS E ANÁLISE DOS DADOS

4.1. RESULTADOS DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO DO ^{126}I

A taxa de desintegração do ^{126}I , como descrito no item 2.6, foi obtida pela aplicação da técnica de extrapolação linear da eficiência, utilizando-se os dados combinados das medidas nos dois sistemas de coincidência.

Na tabela 4.1 são apresentados os resultados obtidos para os parâmetros $R_N - f_X$ (equação 2.11) com suas respectivas incertezas e $[1 - (N_c/N_\gamma)] / (N_c/N_\gamma)$. Os dados apresentados são referentes a duas irradiações distintas perfazendo um total de 15 (quinze) fontes medidas. Outras irradiações foram feitas mas apresentaram problemas na preparação da solução, não podendo ser aproveitadas.

Tabela 4.1. Resultados obtidos para $R_N - f_X$ e para o parâmetro de ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$.

AMOSTRA	$R_N - f_X$	$\sigma(\%)$	$(1-N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$
01	0.9447	1.95	0.2484
02	0.9761	1.48	0.3084
03	0.9688	1.50	0.3088
04	0.9562	1.50	0.2665
05	0.9718	1.53	0.2919
06	0.9643	1.56	0.3324
07	0.9209	2.48	0.1035
08	0.9510	2.41	0.1197
09	0.9603	1.59	0.1657
10	0.9488	1.57	0.1623
11	0.9497	1.78	0.1753
12	0.9738	1.57	0.2086
13	0.9578	2.38	0.2191
14	0.9786	1.91	0.1710
15	0.9597	3.49	0.2036

Com esses dados pode-se construir a curva de $R_N - f_X$ versus o parâmetro de ineficiência, apresentada na figura 4.1. Os pontos cheios correspondem aos dados experimentais com as barras de erro e a linha contínua corresponde à curva de extrapolação, representada pelo polinômio de grau 1 ajustado pelo método dos mínimos quadrados utilizando-se o programa LSSOLVER^[22] que além de permitir um ajuste ponderado fornece a matriz de covariância dos parâmetros do ajuste.

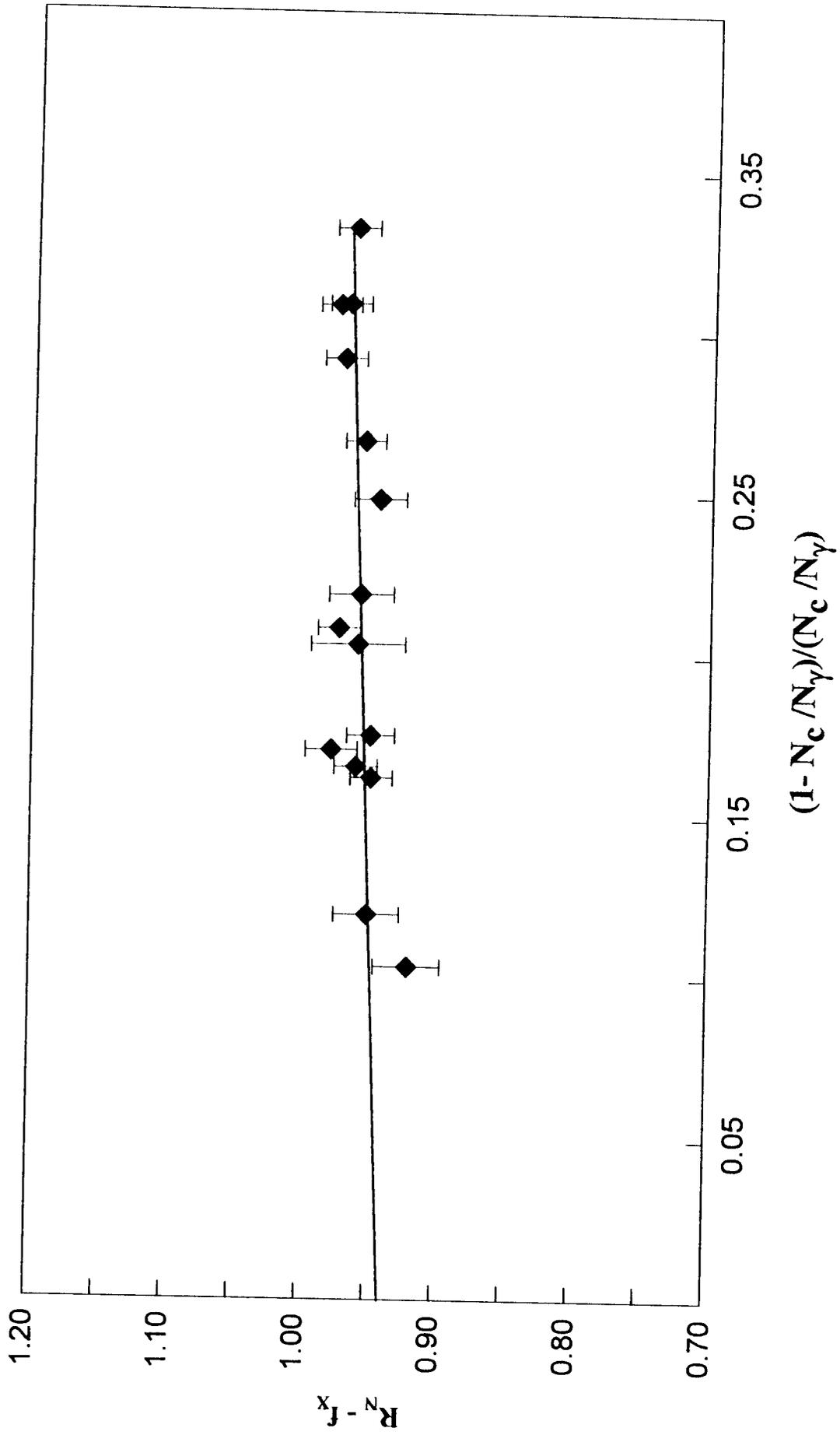


Figura 4.1: Curva de extrapolação linear de $R_N - f_x$ versus $(1 - N_c / N_\gamma) / (N_c / N_\gamma)$.

Os parâmetros do ajuste da curva de extrapolação são apresentados na tabela 4.2., juntamente com sua incerteza e matriz de correlação. O χ^2 reduzido obtido foi de 1,07 para 13 graus de liberdade o que demonstra o bom ajuste efetuado.

Tabela 4.2. Parâmetros, incertezas e matriz de correlação relativos à curva de extrapolação linear da eficiência.

Parâmetro	Valor Obtido	σ_{abs}	Matriz de correlação (x 1000)	
A	0,938	0,017	1000	
B	0,0932	0,039	-602	1000

A partir dos valores de A e B, como descrito no item 2.3, pode-se determinar o valor da atividade N_0 resultante da média aritmética das medidas feitas no sistema de coincidência X- γ .

A tabela 4.3 apresenta os valores de $N_X N_\gamma / N_c$ (média aritmética dos resultados obtidos no sistema de coincidência X- γ , para cada irradiação) e N_0 com suas respectivas incertezas, obtido para cada irradiação. O coeficiente de correlação entre os parâmetros utilizados no cálculo do erro da atividade (A e $N_X N_\gamma / N_c$), para as duas irradiações, é calculado conforme item 4.5.1.2 equação 4.5.

Tabela 4.3: Média da atividade do sistema raio X- γ , a atividade final e o coeficiente de correlação.

IRRADIAÇÃO	$(N_X N_\gamma / N_c \pm \sigma) \times 10^3$	$(N_0 \pm \sigma) \times 10^3$ Bq/g	ρ
1 ^a	$3,28 \pm 0,08$	$6,36 \pm 0,05$	-0,56
2 ^a	$86,0 \pm 1,5$	$167,0 \pm 0,8$	-0,83

Conforme descrito no item 2.3, obteve-se as probabilidades de desintegração para β^- , β^+ e CE (**b**, **p** e **a - p** respectivamente) a partir dos resultados obtidos na extrapolação linear da eficiência (tabela 4.2).

Lembrando que:

$$A = [(a - p)^{-1} - 1] \text{ e } (a + b) = 1, \text{ tem-se:}$$

$$a = (52,68 \pm 0,45)\%$$

$$b = (47,32 \pm 0,45)\% \text{ e}$$

$$p = (1,09 \pm 0,016)\%$$

4.2. RESULTADOS DA ESPECTROMETRIA GAMA

Conforme procedimento descrito no capítulo 3 são apresentados a seguir na tabela 4.4 os radionuclídeos utilizados para a calibração do espectrômetro HPGe e na fabricação das ampolas padrões, suas atividades, incerteza associada e suas meias-vidas.

Tabela 4.4: Radionuclídeos utilizados na determinação da curva de eficiência com respectivas atividades e meias-vida.

Radionuclídeo	Atividade (kBq)	Meia-Vida (dias) ^[38]	Data de Referência
¹⁵² Eu	401,3 ± 6,5	4933 ± 11	01/03/93 às 0:00h
⁶⁰ Co	345,0 ± 2,5	1925,5 ± 0,5	01/03/93 às 0:00h
¹³⁷ Cs	521,1 ± 5,6	11020 ± 6	01/03/93 às 0:00h
¹³³ Ba	46,55 ± 0,60	3862 ± 15	01/03/93 às 0:00h

A eficiência para cada linha de energia, no intervalo de 244,70 keV a 1408,02keV, das ampolas padrões , juntamente com sua incerteza absoluta associada, descrita no item 3.2, está relacionada na tabela 4.5

Tabela 4.5. Energia gama, eficiência e intensidade gama com suas respectivas incertezas, para as ampolas padrões.

$E(\gamma)^{[38]}$	(Eficiência $\pm \sigma_{abs}$) $\times 10^{-3}$	(Intensidade $\gamma \pm \sigma$) % [38]
244,70	(1,68 \pm 0,04)	7,53 \pm 0,53
344,28	(1,27 \pm 0,03)	26,58 \pm 0,41
411,13	(1,05 \pm 0,03)	2,24 \pm 0,45
443,97	(1,01 \pm 0,03)	3,12 \pm 0,45
778,90	(0,626 \pm 0,013)	12,97 \pm 0,46
867,39	(0,569 \pm 0,015)	4,21 \pm 0,59
964,06	(0,530 \pm 0,011)	14,63 \pm 0,41
1112,29	(0,477 \pm 0,010)	13,54 \pm 0,44
1408,02	(0,394 \pm 0,008)	20,85 \pm 0,43
1173,24	(0,473 \pm 0,005)	99,86 \pm 0,020
1332,50	(0,428 \pm 0,005)	99,98 \pm 0,010
661,66	(0,734 \pm 0,009)	85,1 \pm 0,23
276,40	(1,59 \pm 0,04)	7,15 \pm 0,42
302,85	(1,45 \pm 0,03)	18,30 \pm 0,33
356,02	(1,27 \pm 0,02)	61,94 \pm 0,22
383,85	(1,21 \pm 0,03)	8,91 \pm 0,32

Na figura 4.2 é apresentada a curva de calibração da eficiência ϵ_γ em função da energia, para as ampolas padrões, descrita no item 3.2. Os pontos cheios correspondem aos dados experimentais já consideradas as barras de erro e a linha contínua corresponde à curva de calibração, representada pelo polinômio de grau 1 ajustado pelo método dos mínimos quadrados utilizando-se o programa LSSOLVER^[22]. A escolha do grau do polinômio foi feita utilizando-se o teste F de Snedecor^[33,34] obtido pelo programa S.A.S.^[34].

Na tabela 4.6 estão apresentados os parâmetros do ajuste da curva de eficiência em função da energia gama, os erros absolutos nos parâmetros e a matriz de correlação entre estes, obtidos para as ampolas padrões. Foi obtido um χ^2 (reduzido) de 1,74 para 14 graus de liberdade, considerado o melhor ajuste.

Tabela 4.6: Parâmetros da curva de eficiência de pico de absorção total para as ampolas padrões com suas respectivas incertezas e matriz de correlação .

Parâmetro	Valor Obtido	σ	Matriz de correlação (x 1000)	
a	-1.815	0,038	1000	
a ₁	-0,8284	0,0056	-977	1000

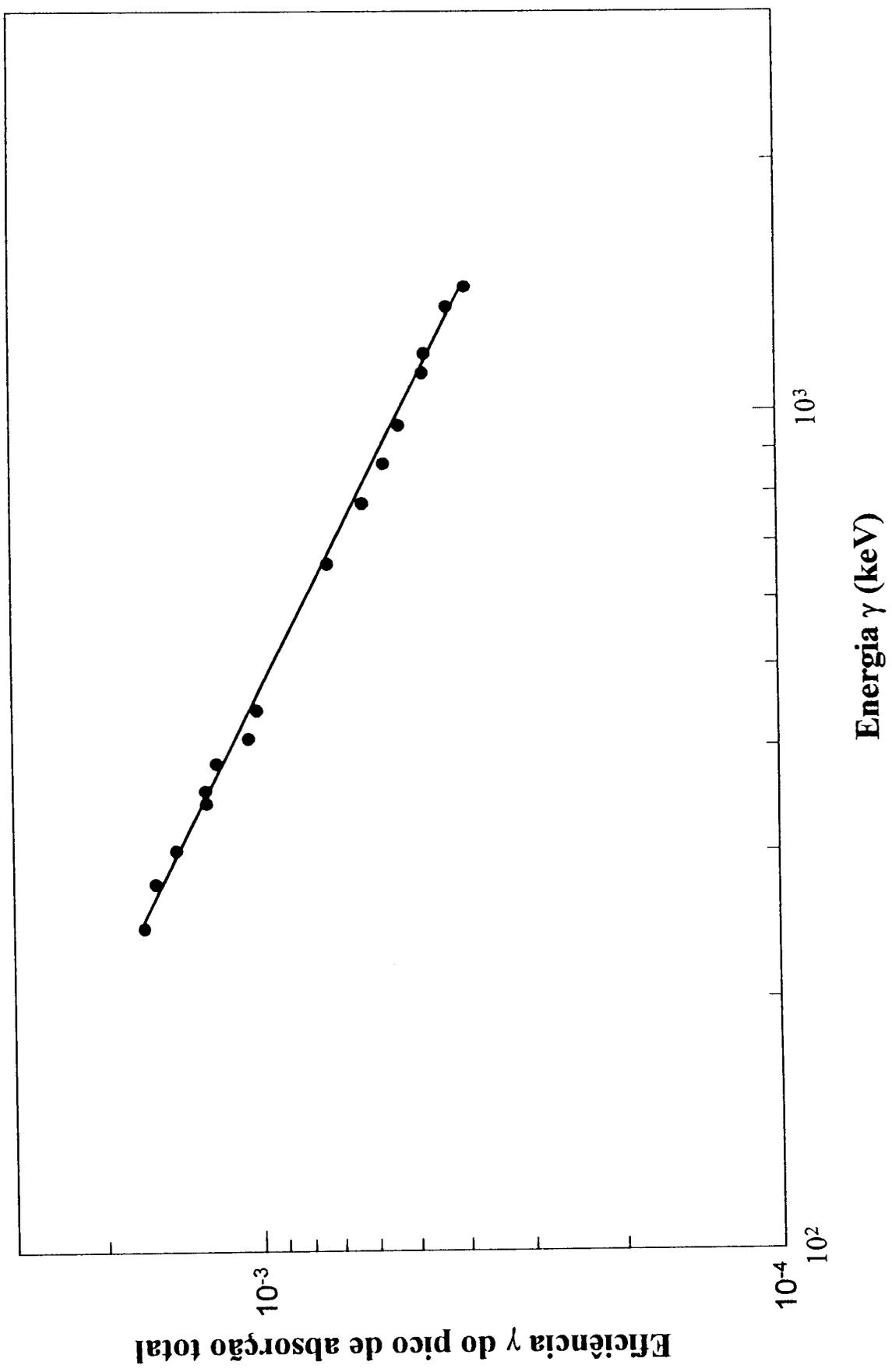


Figura 4.2: Curva de calibração da eficiência em função da energia γ .

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR/SP - CNEN

A medida da ampola de ^{126}I , seguiu o procedimento adotado para as medidas das ampolas padrões como foi descrito no item 3.2. A sua eficiência foi obtida pelo programa EFFIC5^[39], onde os dados de entrada são as linhas de energia gama e os parâmetros do ajuste com sua matriz de correlação, apresentados na tabela 4.6. A tabela 4.7 apresenta os resultados dessa eficiência por linha de energia para a ampola de ^{126}I , e suas respectivas incertezas. A matriz de correlação das eficiências está indicada na tabela 4.8.

Tabela 4.7: Energia gama e eficiência com sua respectiva incerteza associada para o ^{126}I por linha de energia.

Energia γ (keV)	(Eficiência $\pm \sigma_{\text{abs}}$) $\times 10^{-3}$
388,63	(1,166 \pm 0,011)
491,24	(0,960 \pm 0,008)
511,00	(0,929 \pm 0,008)
666,30	(0,746 \pm 0,006)
753,82	(0,673 \pm 0,006)
879,88	(0,592 \pm 0,005)
1420,19	(0,398 \pm 0,004)

Tabela 4.8: Matriz de correlação das incertezas nas eficiências do ^{126}I .

$E(\gamma)$	$\sigma\%$	Matriz de correlação (x 1000)							
388,63	0,91	1000							
491,24	0,86	990	1000						
511,00	0,85	986	1000	1000					
666,33	0,82	942	980	985	1000				
753,82	0,82	911	959	966	996	1000			
879,88	0,82	862	924	933	982	994	1000		
1420,19	0,89	668	766	781	879	916	953	1000	

4.3. RESULTADO DA INTENSIDADE γ POR DECAIMENTO

A intensidade gama por decaimento foi determinada como descrito no item 1.3 pela equação 1.26. A eficiência, corrigida para os fatores de correção descritos no item 3.3, foi calculada pela equação 3.1 e os resultados apresentados na tabela 4.7.

A atividade foi calculada como descrito no item 2.3 e seu resultado foi apresentado na tabela 4.3.

Os resultados para a intensidade gama por decaimento do ^{126}I obtidos para cada irradiação são apresentados na tabela 4.9. A intensidade final foi a média ponderada entre as duas irradiações, calculada pela expressão:

$$I_{\gamma} = \frac{w_1 I_{\gamma_1} + w_2 I_{\gamma_2}}{w_1 + w_2} \quad (4.1)$$

onde:

I_{γ_1} e I_{γ_2} são as intensidades gama por decaimento para a 1^a e 2^a irradiações, respectivamente.

w_1 e w_2 são os pesos fornecidos pela equação $w=1/\sigma^2$, onde σ é dado pela equação 4.7, para cada irradiação.

Tabela 4.9: Intensidade gama por decaimento para a 1^a e 2^a irradiação, e a média ponderada fornecendo a intensidade γ final, com suas respectivas incertezas.

Energia γ	$(I_{\gamma_1} \pm \sigma)$	$(I_{\gamma_2} \pm \sigma)$	$(I_{\gamma} \pm \sigma)$
388,63	$0,3502 \pm 0,0050$	$0,3603 \pm 0,0048$	$0,3556 \pm 0,0048$
491,24	$0,02818 \pm 0,00046$	$0,02930 \pm 0,00042$	$0,02882 \pm 0,00040$
666,33	$0,3252 \pm 0,0043$	$0,3321 \pm 0,0040$	$0,3290 \pm 0,0040$
753,82	$0,04100 \pm 0,00059$	$0,04186 \pm 0,00053$	$0,04148 \pm 0,00052$
879,88	$0,00740 \pm 0,00019$	$0,00745 \pm 0,00014$	$0,00743 \pm 0,00013$
1420,19	$0,00279 \pm 0,00011$	$0,00317 \pm 0,00009$	$0,00304 \pm 0,00008$

A metodologia para obtenção das incertezas será apresentada em detalhes no item 4.5.

A tabela 4.10 apresenta os resultados obtidos no presente trabalho, para a intensidade gama do ^{126}I , comparados com os dados encontrados na literatura.

Tabela 4.10 : Resultados da intensidade gama do ^{126}I .

Probabilidades de Emissão γ		
Energia γ (keV)	Presente trabalho	Tamura [02] 1982
$\gamma_7 - 388,63$	$0,3556 \pm 0,0048$	$0,341 \pm 0,027$
$\gamma_8 - 491,24$	$0,02882 \pm 0,00040$	$0,0285 \pm 0,0022$
$\gamma_3 - 666,33$	$0,3290 \pm 0,0040$	$0,331 \pm 0,025$
$\gamma_5 - 753,82$	$0,04148 \pm 0,00052$	$0,0416 \pm 0,0031$
$\gamma_9 - 879,88$	$0,007433 \pm 0,00013$	$0,00755 \pm 0,00059$
$\gamma_6 - 1420,19$	$0,003039 \pm 0,000075$	$0,00295 \pm 0,00022$

4.4. RESULTADO DA MEIA-VIDA

O resultado obtido para a meia-vida do ^{126}I é mostrado na tabela 4.11, a qual apresenta os resultados para as duas irradiações e a média aritmética obtida para o resultado final, com suas respectivas incertezas, comparada com outros autores. As medidas foram feitas sob os picos de absorção total de 388 keV e 666keV (mais intensos). Com as áreas e as diferentes datas, fez-se um ajuste polinomial de grau 1 e o coeficiente angular forneceu os resultados para a meia-vida.

Tabela 4.11: Meia-vida do ^{126}I .

Energia γ	Meia-vida (d)	Meia-vida (d)	Meia-vida (d)	Meia-vida (d)
	Este Trabalho	Tamura[02]	Anderson[40]	Ok[41]
388 keV	12,83±0,01			
666 keV	12,79±0,01			
Média $T_{1/2}$	12,81±0,02	13,02±0,07	12,8±0,1	12,93±0,06

Na figura 4.3 é apresentado o esquema de decaimento do ^{126}I com os valores dos parâmetros e meia-vida obtidos no presente trabalho.

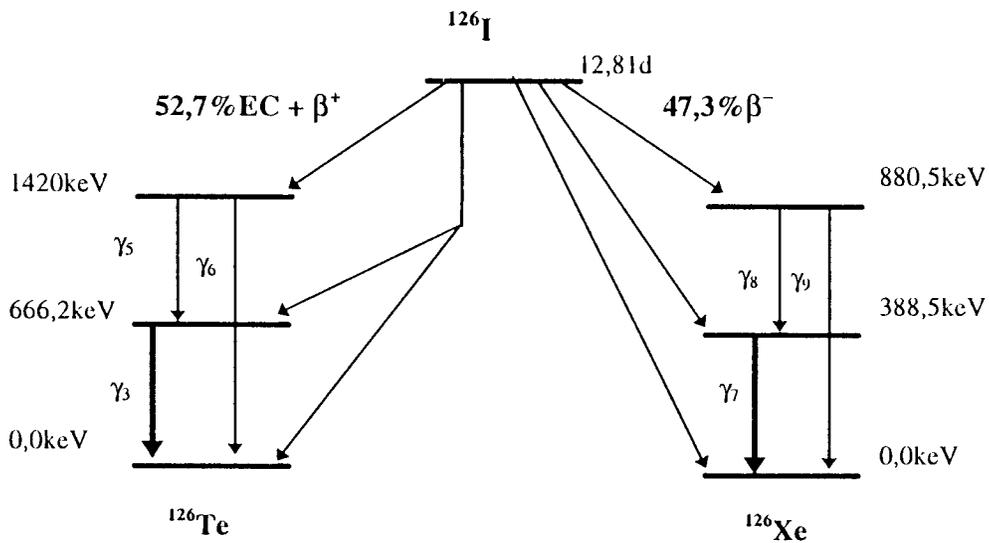


Figura 4.3: Esquema de decaimento do ^{126}I , com valores para as probabilidades de desintegração calculados neste trabalho.

4.5. ANÁLISE DAS INCERTEZAS

4.5.1. MÉTODO DE ANÁLISE DE COVARIÂNCIA

A metodologia de matriz de covariância é a forma mais completa de representação das incertezas em dados experimentais, pois além da incerteza total, ela fornece informações sobre a existência de um nível de correlação entre as incertezas nos parâmetros.

O método de derivação de uma matriz de covariância (\bar{V}_x) para quaisquer dados experimentais tem sido discutido em detalhes por vários autores^[30,42,43,44].

Devido a complexidade do esquema de decaimento do ^{126}I , o cálculo das incertezas foi dividido em várias etapas, uma para cada sistema de medida e irradiação. A metodologia de matriz de covariância e o método dos mínimos quadrados foram aplicados na sua padronização.

4.5.1.1. INCERTEZAS NAS EFICIÊNCIAS DE DETECÇÃO NO HPGe

Após a identificação das diferentes fontes de erro no processo de medida das ampolas, onde são levados em consideração as incertezas nas fontes padrões (IAEA) e nas fontes de polietileno, propagou-se os erros em comum levando-se em conta a correlação entre elas.

Com isso, obteve-se a matriz de covariância das incertezas na eficiência, \bar{V}_ϵ padrão, a qual foi obtida por meio do programa CALCOV^[30], desenvolvido para

gerar uma matriz de covariância e produzir também a matriz de correlação e as incertezas totais. Os elementos dessa matriz de covariância são calculados pelo programa a partir da relação^[42]:

$$\bar{V}_{\epsilon_{ij}} = \sum_{l=1}^L S_{\epsilon_{ijl}} \cdot e_{\epsilon_{il}} \cdot e_{\epsilon_{jl}} \quad (4.2)$$

onde:

$S_{\epsilon_{ij}}$ são as correlações parciais entre as incertezas,
 $e_{\epsilon_{ij}}$ e $e_{\epsilon_{ij}}$ são as incertezas parciais nos parâmetros.

Os dados de entrada do programa CALCOV são as incertezas parciais e as correlações entre cada fonte de erro. Para o nosso caso em particular, as incertezas estão apresentados na tabela 4.12, em valores percentuais (resultado da propagação simples dos erros), para as ampolas padrões, por linha de energia, considerando-se os erros nas fontes de polietileno e da IAEA. As correlações consideradas estão indicadas nessa mesma tabela para cada fonte de erro.

Tabela 4.12: Incertezas que afetam o cálculo da eficiência de detecção
(em %).

E_γ	σ_τ	σ_{fat}	σ_{fg}	σ_A	$\sigma_{I\gamma}$	σ_m	σ_S
244,70	0,42	0,86	0,60	1,57	0,53	0,08	0,68
344,28	0,42	0,77	0,60	1,57	0,41	0,08	0,35
411,12	0,42	0,72	0,60	1,57	0,45	0,08	2,13
443,96	0,42	0,70	0,60	1,57	0,45	0,08	1,64
778,90	0,42	0,55	0,60	1,57	0,46	0,08	0,78
867,39	0,42	0,52	0,60	1,57	0,59	0,08	1,78
964,05	0,42	0,50	0,60	1,57	0,41	0,08	0,77
1.112,09	0,42	0,46	0,60	1,57	0,44	0,08	0,79
1.408,03	0,42	0,40	0,60	1,57	0,43	0,08	0,68
1.173,24	0,59	0,45	0,60	0,42	0,02	0,16	0,44
1.332,50	0,59	0,42	0,60	0,42	0,01	0,16	0,43
661,60	0,58	0,59	0,60	0,52	0,23	0,14	0,21
276,40	0,58	0,82	0,45	1,12	0,42	0,08	1,57
302,85	0,58	0,79	0,45	1,12	0,33	0,08	0,88
356,02	0,58	0,75	0,45	1,12	0,22	0,08	0,47
383,85	0,58	0,74	0,45	1,12	0,32	0,08	1,30
fator de							
Correlação	1	0	1 ou 0	1 ou 0	0	1	0

Onde:

σ_τ incerteza no tempo morto, obtida pelo programa UNITGAM^[32],

σ_{fat} incerteza no fator de atenuação, obtida da propagação simples dos termos da equação(3.8) para as fontes da IAEA,

- σ_{fg} incerteza no fator geométrico, obtida da propagação simples dos erros nos fatores para ampola, polietileno e agência,
- σ_A incerteza na atividade, obtida do certificado das fontes padrões, considerando-se um desvio padrão, composto pelos erros sistemáticos e estatísticos,
- $\sigma_{I\gamma}$ incerteza na probabilidade de emissão gama por decaimento^[38],
- σ_m incerteza na massa, obtida da propagação simples dos erros com análise de covariância nas massas da ampola, das fontes de polietileno e da IAEA, considerado aproximadamente 20 μg na pesagem das amostras,
- σ_S incerteza na área, obtida pela propagação simples dos erros nas áreas da ampola, das fontes de polietileno e da IAEA obtidos pelo programa de cálculo UNITGAM^[32].

As incertezas menores que 0,1% foram desprezadas.

As incertezas totais na medida das eficiências são relacionadas com as variâncias através da fórmula^[42]:

$$\sigma_{\epsilon_i} = (\bar{V}_{\epsilon_i})^{1/2} \quad (4.3)$$

A matriz de covariância dos erros nos parâmetros do ajuste da curva de eficiência, \bar{V}_{ak} é dada por^[42]:

$$\bar{V}_{ak} = (\bar{A}' \cdot \bar{V}_z^{-1} \cdot \bar{A})^{-1} \quad (4.4)$$

onde:

\bar{A} é uma matriz n x m cujos elementos são $\bar{A}_{ik} = (\ln \epsilon_i)^{k-1}$.

\bar{V}_z é a matriz de correlação das incertezas nas eficiências cujos elementos:

$$\bar{V}_{z_{ij}} = \frac{\bar{V}_{e_{ij}}}{(\sigma_{e_i} \cdot \sigma_{e_j})}$$

O superescrito t indica matriz transposta.

Com esses valores foi possível calcular as incertezas nas eficiências para os diferentes valores de energia, interpolados pela curva de calibração e as correlações entre elas, por meio do programa EFFIC5^[39].

Este procedimento foi feito para o cálculo da incerteza na eficiência das ampolas padrões. Para o ¹²⁶I, o procedimento é o mesmo, considerando-se o resultado da incerteza nos parâmetros da curva de calibração e sua matriz de correlação e levando-se em consideração as incertezas nos fatores que influenciam na sua medida (os mesmos considerados na tabela 4.12), determinou-se a incerteza na sua eficiência, juntamente com sua matriz de covariância, por linha de energia, utilizando-se o programa EFFIC5^[39].

4.5.1.2. INCERTEZA NA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO

A metodologia de matriz de covariância foi aplicada também no cálculo das incertezas na atividade do ¹²⁶I, onde os elementos da matriz \bar{V}_A foram calculados pela equação 4.2.

Para obter-se a incerteza final na atividade, vários passos foram seguidos:

- Montou-se uma tabela de incertezas parciais dos parâmetros envolvidos na razão R_N (item 2.3, equação 2.11), discriminando-se as fontes de erros parciais que influenciam em cada sistema de medida ($4\pi\beta\text{-}\gamma$ e $X\text{-}\gamma$) considerando-se as duas

irradiações juntas, para cada amostra. Com isso pode-se determinar a matriz de covariância, por meio da equação 4.2, utilizando-se o programa CALCOV^[30], para a razão R_N . As incertezas não correlacionadas foram agrupadas, por propagação simples (somadas quadraticamente), em uma única incerteza total, uma para cada sistema de medida. Para o sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$ essas incertezas foram: estatística, na radiação de fundo para os raios gamas (388 keV e 666 keV) e a de correlação, todas estas obtidas com o programa ATIVIBG^[29]. Para o sistema X- γ as incertezas foram: estatística, devido a radiação de fundo para o raio gama e raio-X e a de correlação, obtidas pelo programa ATIVIXG^[29]. Estes resultados são apresentados na tabela 4.13.

Foi calculada uma matriz de covariância que envolvia as incertezas parciais no fator f_X (equação 2.11) utilizando-se o programa CALCOV^[30].

- As duas matrizes foram combinadas calculando-se a incerteza na diferença $R_N - f_X$ e sua matriz de covariância, obtida por meio das incertezas parciais apresentadas na tabela 4.13.
- Foram calculadas as incertezas e as matrizes de covariância nos coeficientes lineares A e B (equação 2.11), obtidos por meio do ajuste no programa LSSOLVER^[22].

Tabela 4.13: Incertezas parciais no parâmetro $R_{N-f_X}(\%)$

Amostras	$4\pi\beta-\gamma$	X- γ	$^a f_X \times 10^{-3}$	Tempo de resolução	Fator soma	Fator Compton X- γ	Fator Compton $4\pi\beta-\gamma$
1	1.38	1.48	1.65	0.11	1.10	0.17	0.61
2	0.84	1.69	1.59	0.11	1.10	0.17	0.61
3	0.54	0.61	0.95	0.11	1.10	0.17	0.61
4	0.49	0.63	0.80	0.11	1.10	0.17	0.61
5	0.75	0.85	0.98	0.11	1.10	0.17	0.61
6	0.40	0.66	0.86	0.11	1.10	0.17	0.61
7	0.91	1.69	0.88	0.11	1.10	0.17	0.61
8	0.63	1.09	0.71	0.11	1.10	0.17	0.61
9	1.58	2.63	2.51	0.11	1.10	0.17	0.61
10	1.31	0.61	0.57	0.11	1.10	0.17	0.61
11	0.45	0.45	1.08	0.11	1.10	0.17	0.61
12	0.34	0.62	0.57	0.11	1.10	0.17	0.61
13	0.56	0.45	0.41	0.11	1.10	0.17	0.61
14	0.60	0.48	0.72	0.11	1.10	0.17	0.61
15	0.61	0.56	0.53	0.11	1.10	0.17	0.61
Fator de Correlação	0	0	0	1	1	1	1

^a Absoluto

Tabela 4.14: Incerteza total e matriz de correlação para o parâmetro R_N-f_X

Amostra	Incerteza total absoluta (x 10 ⁻²)	Matriz de correlação														
1	1.94	100														
2	1.48	59	100													
3	1.50	58	78	100												
4	1.50	57	77	76	100											
5	1.53	56	76	75	74	100										
6	1.56	55	75	73	73	71	100									
7	2.47	35	47	46	46	45	44	100								
8	2.41	37	50	48	48	47	46	29	100							
9	1.59	55	75	73	73	72	70	45	47	100						
10	1.57	56	75	74	73	72	71	45	47	71	100					
11	1.78	49	67	65	65	64	62	40	41	62	63	100				
12	1.57	56	76	74	74	73	71	45	47	71	72	63	100			
13	2.38	36	49	48	48	47	46	29	30	46	46	41	47	100		
14	1.91	47	63	62	61	60	59	38	39	59	60	53	60	39	100	
15	3.49	25	34	33	33	33	32	20	21	32	32	28	32	21	27	100

A incerteza final na atividade foi estimada pela propagação simples da equação 2.10, dada por:

$$\sigma_{N_0}^2 = \sigma_A^2 + \sigma_X^2 + 2 \cdot \rho \cdot \sigma_A \cdot \sigma_X \quad (4.5)$$

onde:

σ_A é a incerteza no parâmetro A (valor extrapolado de R_N-f_X),

σ_X é a incerteza no lado direito da equação 2.10,

ρ é o coeficiente de correlação entre ambos parâmetros.

Todas as incertezas foram consideradas com nível de confiança de 68% (1σ).

O valor de ρ foi calculado pela seguinte equação:

$$\rho = \frac{\text{COV}(R_N, X)}{\sigma_{RN}\sigma_X} \quad (4.6)$$

onde:

$$\text{COV}(R_N, X) = E\left(\frac{N_\beta \cdot N_\gamma}{N_c}\right) - E\left(\frac{N_x \cdot N_\gamma}{N_c}\right) \cdot E(R_N)$$

E corresponde aos valores esperados (média) para cada irradiação, σ_{RN} e σ_X são os desvios padrões em $\left(\frac{N_\beta \cdot N_\gamma}{N_c}\right)$ e $\left(\frac{N_x \cdot N_\gamma}{N_c}\right)$, respectivamente.

4.5.1.3. INCERTEZA NA INTENSIDADE γ ABSOLUTA

A incerteza final na intensidade γ por decaimento, para cada linha de energia, levou em consideração os erros nos fatores de correção (item 3.3), nas áreas sob os picos de absorção total, na eficiência de detecção (determinada no item 4.2) e na atividade (item 4.1).

O procedimento para o cálculo das incertezas para cada irradiação e suas respectivas matrizes de covariância é o mesmo descrito no item 4.1 e 4.2. A incerteza final, considerando-se as duas irradiações, para cada linha de energia, foi obtida por:

$$\sigma_{i_\gamma}^2 = \frac{w_1^2 \sigma_1^2 + w_2^2 \sigma_2^2 + 2w_1 w_2 \sigma_1 \sigma_2 \rho}{(w_1 + w_2)^2} \quad (4.7)$$

onde :

σ_1 é a incerteza total da 1^a irradiação, que leva em consideração as incertezas parciais dos fatores que influenciam na medida do ^{126}I , (item 3.3), fornecida pelo programa CALCOV^[30], juntamente com sua matriz de correlação,

σ_2 é a incerteza total da 2^a irradiação, que também leva em consideração as incertezas parciais dos fatores item 3.3.

$w_1 = 1 / \sigma_1$ e $w_2 = 1 / \sigma_2$ (pesos),

ρ correlação entre as duas irradiações.

CONCLUSÕES

No presente trabalho foi desenvolvido um método de medida absoluta que emprega dois sistemas de coincidência distintos, $4\pi\beta\text{-}\gamma$ e $X_k\text{-}\gamma$, cujos resultados combinados de modo adequado e empregando-se a técnica de extrapolação linear da eficiência, possibilitaram a medida absoluta da taxa de desintegração ^{126}I .

Esta taxa de desintegração foi obtida com uma incerteza na faixa de 0,48% a 0,79%, dada predominantemente pela influência da radiação de fundo gama, interferência Compton e presença de impurezas.

Além desta medida, com este método foi possível a determinação de alguns parâmetros do esquema de decaimento do nuclídeo em estudo como: intensidade de emissão dos ramos β^- , β^+ e captura eletrônica.

Os valores obtidos para estes parâmetros foram: $b = (47,32 \pm 0,45)\%$, $p = (1,09 \pm 0,016)\%$ e $a = (52,68 \pm 0,45)\%$, que discordam com os da literatura^[19].

A taxa de emissão gama por decaimento para os fótons emitidos pelo ^{126}I foi determinada com boa exatidão. Para a transição de 388 keV, seu valor resultou 35,56% e para a transição de 666 keV em 32,90%, com incertezas de 1,35% e 1,22% respectivamente. Estas incertezas são bem inferiores quando comparadas àquelas da literatura (da ordem de 7%), demonstrando assim que os objetivos inicialmente propostos foram plenamente atingidos.

Deve-se destacar também que o emprego da metodologia de matriz de covariância na análise de incertezas é uma importante contribuição para a melhoria e aprimoramento da sistemática de determinação das incertezas que envolvem uma medida experimental, anteriormente sujeita a avaliações subjetivas, principalmente com relação às incertezas sistemáticas.

Algumas perspectivas futuras podem ser apontadas para o método de medida absoluta desenvolvido no presente trabalho, o qual poderá ser empregado na padronização de radionuclídeos com modo misto de desintegração (β^- , β^+ e CE) como é o caso do ^{192}Ir e ^{152}Eu .

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

01. KOSKINAS, M.F. e DIAS M.S. Measurement of the gamma-ray probability per decay of ^{31}Si , *Applied Radiat. Isot.*, 44, p. 1209-1211, 1993.
02. TAMURA, T, MIYANO K., OHYA S. *Nuclear Data Sheets*, vol. 36, n°2, p: 269-270, 1982.
03. NUGHABGHAB, S.F., DIVADEENAM, M. & HOLDEN, N.E. *Neutron Cross Section* . vol.1, Upton, New York. Academic Press, 1981.
04. HORROCKS, D.L. Qualitative and Quantitative Measurements of Radioiodines. *J. Radioanal. Chem.*, 65 ,p: 307, 1981.
05. SANTRY, D.C. The ^{127}I (n,2n) ^{126}I reaction as a fast neutron flux monitor. NBS- Special Publ., 594. *Proc. Int. Conf. on Nuclear Cross Sections for Technology*, 1979.
06. MIYAHARA, H.; MATUMOTO, H. ; MORI, CHIZUO. Precise Measurement of the gamma-ray emission probability for ^{175}Yb . *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 45, n° 2, p.: 219-223, 1994.
07. LAGOUTINE, F.; COURSOL, N. ; LEGRAND, J. *Table of radionucléides*. Laboratoire de Métrologie des Rayonnements Ionisants. Bureau National de Métrologie , 1982.
08. NATIONAL COUNCIL ON RADIATION PROTECTION AND MEASUREMENTS. *Handbook of radioactivity measurements procedures*. Report n° 58, nov. 1978.
09. COHEN, E. R. , TAYLOR, B. N. The 1986 adjustment of the fundamental physical constants. *Review of Modern Physic*, p. 1121-1148, out. 1987.
10. KNOLL, G. F. *Radiation Detection and Measurement*. Second Edition. Wiley, 1988.
11. BAERG, A.P. Absolute measurement of radioactivity. *Metrologia*, 3 (4), p: 105 - 108, 1967.
12. BAERG, A. P. Measurement of radioactive desintegration rate by the coincidence method. *Metrologia*, 2 (1), p: 23 - 32, 1966

13. CAMPION, P.J. The standardization of radioisotopes by the beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 4, p. 232-248, 1959.
14. MOURA, L.P. *Método de coincidência generalizado para medida absoluta de atividade de radionuclídeos. Aplicação na determinação do coeficiente de conversão interna da transição de 279 keV do ²⁰³Tl*. Campinas: 1969. Tese (Doutoramento) - Universidade de Campinas.
15. KOSKINAS, M. F. *Desenvolvimento de um sistema de coincidência para a medida absoluta da atividade de radionuclídeos empregando detectores de barreira de superfície*. São Paulo: 1988. Tese (Doutoramento) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
16. HOUTHERMANS, H. ; MIGUEL, M. $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence counting for the calibration of nuclides with complex decay schemes. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 13, p. 137 - 142, 1962.
17. BAERG, A.P. The efficiency extrapolation method in coincidence counting. *Nuclear Instruments and Methods*. 112, p. 143-150, 1973.
18. MOREL, J. *Etude des différents problèmes posés par l'étalonnage précis d'un spectromètre γ* . Saclay, Fr., C.E.A. Mars, 1975 (CEA-R 4656).
19. LEDERER, C.M. ; SHIRLEY, V.S. *Table of Isotopes*, 7th ed. :1978.
20. ZIJP, W. H. ; BAARD, J.H. Report EUR 7164 EN (1979).
21. COX, D.R. ; ISHAM, V. A bivariate point process connected with electronic counters. *Proc. Roy. Soc. A*, 356, p. 149 - 160, 1977.
22. TOKAI, I. *LSSOLVER*. Argone, III. Argone Nacional Laboratory, s.d. (ADP 314).
23. WILLIAMS, A. ; CAMPION, P.J. On the relative time distribution of the pulses in the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence technique. *Internatona J. Appl. Radiat. Isot.*, 16, p. 555-560, 1965.
24. BAERG, A.P. Variation on the paired source method of measuring dead time. *Metrologia*, 1 (3), p. 131-133, 1965.
25. CAMPION, P.J. *Procedures for accurately diluting and dispensing radioactive solutions*. Bureau International de Poids et Mesures, Monografie BIPM-1. 1975.

26. SMITH, D.L. Improved correction formulae for coincidence counting. *Nucl. Inst. Meth.*, 152, p: 505 - 519, 1978.
27. SMITH, D.L. Some developments in the Cox-Isham theory to coincidence corrections, including the extension to the computer- discrimination method. *Int. J. Appl. Radiat. Inst. Part A*, 38 (10), p: 813 - 822, 1987.
28. BRYANT, J. Coincidence counting corrections for dead-time loss and accidental coincidences. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 14, p: 143 - 151, 1963.
29. DIAS, M.S.; KOSKINAS, M. F. Comunicação Pessoal, 1993.
30. GERALDO, L.P. ; SMITH, D.L. *Least Square Methods and Covariance Matrix Applied to the Relative Efficiency Calibration of a Ge(Li) Detector*. São Paulo : 1989 (IPEN - Pub - 243).
31. KOKTA, L. Determination of Peak Area. *Nucl. Instrum. Methods*, 112, p.245-251, 1973.
32. DIAS, M.S. Comunicação Pessoal, 1992.
33. ATALLA, L.T. Interpretação Quantitativa de Resultados Experimentais, São Paulo, Instituto de Energia Atômica, 1978. (Inf. IEA 60).
34. BARR, A.J.; GOODNIGHT, J.H. ; SALL, J.P. *S.A.S. Institute Inc.*, Post Office Box 10066, Raleigh, North Carolina 27605, U.S.A.
35. DIAS, M.S. e RENNER, C. Si (Li) Efficiency Curve for X-ray parallel beam. *Nucl. Instrum. Methods*. 193, p: 91 - 93, 1982.
36. EVANS, R. *The Atomic Nucleus* . New York, McGraw-Hill, 1955.
37. NUCLEAR DATA TABLES, Section A, v.7, 1969/1970.
38. IAEA. *X-Ray and Gamma-Ray Standards for Detector Calibration*. Vienna, 1991 (IAEA - TECDOC-619).
39. DIAS, M.S. Comunicação Pessoal, 1993.
40. ANDERSON, G. , RUDSTAM, G. , SORENSEN, G. Decay Data on Some Xe, I and Te Isotopes. *Arkiv Fysik*, 28, p. 37-43, 1965
41. OK, A. und KIRSCHNER, H. γ - Intensitäten beim Zerfall des ^{126}I . *Z. Physik*, A 274, p. 373-375, 1975

42. GERALDO, L.P. ; SMITH, D.L. Covariance Analysis and Fitting of Germanium Gamma-Ray Detector Efficiency Calibration Data. *Nuclear Instrum. Methods Phys. Res.*, A 290 ,p. 499-508, 1990.
43. MANNHART, W. *A small guide to generating covariances of experimental data*. Braunschweig (Germany, F.R.). Physikalisch Technische Bundesanstalt, 1981. (PTB-FMRB-84).
44. SMITH, D.L. *Covariance matrices and applications to the field of nuclear data*. Idaho Falls, Argonne National Lab., 1981. (ANL/NDM-62).