



AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE  
DE SÃO PAULO

**MEDIDA ABSOLUTA DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO E DA  
PROBABILIDADE DE EMISSÃO GAMA DO  $^{42}\text{K}$**

**DENISE SIMÕES MOREIRA**

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

Orientadora:  
Dra. Marina Fallone Koskinas

**São Paulo  
2000**

**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**

**Autarquia Associada à Universidade de São Paulo**

**MEDIDA ABSOLUTA DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO E DA  
PROBABILIDADE DE EMISSÃO GAMA DO  $^{42}\text{K}$**

**DENISE SIMÕES MOREIRA**



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

**Orientador:**

**Dra. Marina Fallone Koskinas**

**São Paulo**

**2000**



*Nós temos uma antiga bênção de família:*

*“Quem ainda estiver acordado ao final de uma noite de histórias sem dúvida irá se tornar a pessoa mais sábia do mundo”.*

*Assim seja para vocês.*

*Assim seja para todos nós.*

*C.P. Estés*

## **Agradecimentos**

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

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

*À Eliane Pocobi pelo incentivo pessoal e auxílio técnico na preparação das amostras;*

*Às amigas Kátia A. Fonseca, Cláudia C. Braga e Aída M. Baccarelli pela amizade, incentivo e colaboração;*

*Aos colegas do LMN pelo apoio, incentivo e amizade oferecidos;*

*À Dra. Linda Caldas, Diretora da Diretoria de Segurança Nuclear, pela oportunidade oferecida para realização deste trabalho;*

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

*Aos colegas do Departamento de Metrologia das Radiações que de alguma forma colaboraram na execução deste trabalho;*

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

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

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

*Ao Conselho Nacional de Pesquisas pela concessão de bolsa de estudos;*

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

# MEDIDA ABSOLUTA DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO E DA PROBABILIDADE DE EMISSÃO GAMA DO $^{42}\text{K}$

**Denise Simões Moreira**

## RESUMO

O conhecimento exato da probabilidade de emissão gama por decaimento de radionuclídeos é importante em várias aplicações. No caso do  $^{42}\text{K}$ , sua importância está principalmente em aplicações médicas e também como um ponto de alta energia para calibração de espectrômetros gama. No presente trabalho foi medida a probabilidade de emissão gama por decaimento para a transição de 1524,7 keV do  $^{42}\text{K}$ . Esse radionuclídeo foi obtido por meio da reação  $^{41}\text{K}(n, \gamma)^{42}\text{K}$  em fluxo de nêutrons térmicos no reator de pesquisas IPEN 2 MW. Foi desenvolvida a metodologia para a padronização primária do  $^{42}\text{K}$ . A medida absoluta da atividade foi realizada em um sistema de coincidências  $4\pi(\text{PC})\beta-\gamma$  o qual é formado por um contador proporcional de geometria  $4\pi$  acoplado a dois cristais NaI(Tl) de 3" x 3". A medida dos raios  $\gamma$  foi feita em sistema com detector HPGe previamente calibrado de 121 keV a 1836 keV por meio de ampolas contendo soluções padrões de  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{152}\text{Eu}$ , padronizadas no Laboratório de Metrologia de Radionuclídeos do IPEN, e uma solução de  $^{88}\text{Y}$  padronizada no sistema de coincidências  $4\pi(\text{PC})\beta-\gamma$  como parte deste trabalho. Todas as incertezas envolvidas foram tratadas rigorosamente, por meio da análise de covariâncias.

# PRIMARY PADRONIZATION AND MEASUREMENT OF THE GAMMA-RAY PROBABILITY PER DECAY OF $^{42}\text{K}$

Denise Simões Moreira

## ABSTRACT

*The accurate knowledge of the gamma-ray emission probability per decay of radionuclides is important in several applications. In the case of  $^{42}\text{K}$ , its importance lies mainly in medical applications and also as a high energy calibration point for gamma-ray spectrometers. In the present work the gamma-ray emission probability per decay for the 1524 keV transition of  $^{42}\text{K}$  has been measured. This radionuclide has been obtained by means of the  $^{41}\text{K}(n, \gamma)^{42}\text{K}$  reaction in a thermal neutron flux at the IPEN 2 MW research reactor. The methodology for the primary standardisation of  $^{42}\text{K}$  is described. The activity 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) crystals. The gamma-ray measurement was performed in HPGe system, which was previously calibrated in the energy range from 121 keV to 1836 keV by means of standard sources of  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{152}\text{Eu}$ , previously standardised in the Nuclear Metrology Laboratory of IPEN, and with sources of  $^{88}\text{Y}$  standardised in the  $4\pi(\text{PC})\beta\text{-}\gamma$  coincidence system described in the present work. All the uncertainties involved were treated rigorously, by means of covariance analysis.*

## SUMÁRIO

	<b>Página</b>
<b>INTRODUÇÃO</b> .....	1
<b>1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS</b>	
1.1. Radioatividade.....	4
1.2. Medida Absoluta da Atividade.....	12
1.2.1. Método de Coincidências.....	12
1.2.2. Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência.....	13
1.3. Probabilidade de Emissão Gama por Decaimento.....	17
1.4. Metodologia de Análise de Covariâncias.....	18
<b>2. PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS NO SISTEMA <math>4\pi\beta-\gamma</math></b>	
2.1. Padronização do $^{88}\text{Y}$ .....	20
2.1.1. Esquema de Decaimento do $^{88}\text{Y}$ .....	21
2.1.2. Aplicação do Método de Coincidências na Medida da Taxa de Desintegração do $^{88}\text{Y}$ .....	23
2.2. Padronização do $^{42}\text{K}$ .....	25
2.2.1. Esquema de Decaimento do $^{42}\text{K}$ .....	27
2.2.2. Aplicação do Método de Coincidências na Determinação da Taxa de Desintegração do $^{42}\text{K}$ .....	28
<b>3. ARRANJO EXPERIMENTAL DO SISTEMA DE COINCIDÊNCIAS <math>4\pi\beta-\gamma</math></b>	
3.1. Detectores Utilizados.....	32
3.1.1. Detector Proporcional $4\pi(\text{PC})$ .....	32
3.1.2. Cristal Cintilador NaI(Tl).....	35
3.2. Sistema Eletrônico Associado.....	35
3.2.1. Sistemas Auxiliares.....	38
3.3. Preparação de Fontes para Medidas no Sistema de Coincidências.....	41

3.4. Correções Aplicadas.....	42
3.4.1. Tempo Morto.....	43
3.4.2. Tempo de Resolução.....	43
3.4.3. Decaimento Radioativo.....	44
3.4.4. Radiação de Fundo.....	45
3.5. Determinação Experimental de Tempo Morto e Tempo de Resolução	45
3.5.1. Medida do Tempo Morto.....	45
3.5.2. Medida do Tempo de Resolução.....	46
3.6. Medida das Amostras.....	49
<b>4. ESPECTROMETRIA GAMA COM DETECTOR HPGe</b>	
4.1. Detector Semicondutor de Germânio Hiperpuro (HPGe).....	51
4.2. Arranjo Experimental do Espectrômetro Gama com Detector HPGe...	52
4.3. Curva de Eficiência.....	55
4.4. Correções Aplicadas.....	57
4.4.1. Fator Geométrico e Fator de atenuação.....	57
4.4.2. Tempo Morto.....	57
<b>5. ANÁLISE DE DADOS E RESULTADOS OBTIDOS</b>	
5.1. Medida do $^{88}\text{Y}$ no Sistema de Coincidência $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$ .....	59
5.1.1. Preparação de Fontes.....	59
5.1.2. Medida da taxa de desintegração do $^{88}\text{Y}$ .....	59
5.2. Medida do $^{42}\text{K}$ no Sistema de Coincidência $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$ .....	65
5.2.1. Produção e Preparação de Fontes.....	65
5.2.2. Medida da taxa de desintegração do $^{42}\text{K}$ .....	66
5.3. Determinação da Curva de Calibração do Espectrômetro HPGe.....	79
5.4. Resultados da Probabilidade de Emissão Gama por Decaimento do $^{42}\text{K}$	83
<b>6. CONCLUSÕES.....</b>	<b>92</b>
<b>REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....</b>	<b>93</b>



## INTRODUÇÃO

A determinação da taxa de desintegração, isto é, a atividade de radionuclídeos e de seus parâmetros de decaimento com boa exatidão, é uma condição necessária para permitir que os usuários ou pesquisadores calibrem seus instrumentos com a mesma exatidão, influenciando diretamente nos resultados finais.

O conhecimento das probabilidades de emissão gama por decaimento é de grande interesse, não só para a compreensão da estrutura nuclear em geral como também para casos específicos de aplicações médicas, proteção radiológica e técnicas de medidas nucleares.

Para a maioria dos radionuclídeos, essas constantes são conhecidas com grande exatidão. Entretanto, em muitos casos ainda, os valores encontrados na literatura apresentam grandes discrepâncias entre si, requerendo novas medidas.

São encontrados na literatura inúmeros trabalhos sobre medidas de intensidades relativas gama com detectores de germânio<sup>[1, 2, 3, 4]</sup>. No entanto, são menos frequentes as medidas das probabilidades de emissão gama por decaimento pois nestes casos torna-se necessário o conhecimento simultâneo da taxa de desintegração da fonte empregada. O método comumente usado para a determinação dessa taxa é o método de coincidência  $4\pi\beta-\gamma$ .

A finalidade deste trabalho é o desenvolvimento do método de padronização do  $^{42}\text{K}$  e a determinação da probabilidade de emissão por decaimento da sua radiação gama de 1524 keV, cujo valor encontrado na literatura apresenta discrepâncias da ordem de 5%<sup>[1, 2, 3, 4]</sup>.

O  $^{42}\text{K}$  é um radionuclídeo produzido em reatores, utilizado em pesquisas na área biomédica, como, por exemplo, estudos de metabolismo, toxicologia e cinética de

radionuclídeos em animais, e que também pode ser empregado como auxiliar na calibração de espectrômetros gama no intervalo de energia de 300 a 1900 keV.

O método de coincidências é o mais utilizado na padronização de fontes radioativas, pois dispensa o conhecimento de dados auxiliares determinados por experimentos anteriores, fornecendo resultados mais exatos, e é aplicável a todos os radionuclídeos que se desintegram pela emissão de duas ou mais radiações coincidentes<sup>[5]</sup>.

O método de coincidência baseia-se no uso de dois detectores, um para cada tipo de radiação, e na determinação dos eventos coincidentes, isto é, detectados simultaneamente nos dois detectores. No caso de radionuclídeos com esquemas de desintegração complexos, foi desenvolvida por Baerg<sup>[6, 7]</sup> uma técnica de medida que permite a determinação da atividade absoluta sem o conhecimento prévio dos parâmetros do esquema de desintegração e eficiências de detecção. Esta técnica, conhecida como *Técnica de extrapolação linear da eficiência*, consiste na variação da eficiência de detecção beta pelo uso de absorvedores externos. A atividade absoluta é obtida pela extrapolação para eficiência unitária.

Para a medida da probabilidade de emissão gama, após a determinação da atividade da fonte no sistema de coincidência, utiliza-se um sistema de espectrometria gama com detector de HPGe previamente calibrado em eficiência no intervalo de energia de interesse, por meio de fontes padrões, obtendo-se uma curva de calibração de eficiência em função da energia gama.

No caso específico do  $^{42}\text{K}$ , a energia gama de interesse é a de 1524 keV, sendo o espectrômetro calibrado no intervalo de energia de 121 a 1836 keV. Para obtenção da eficiência nesta faixa de energia são empregadas fontes padrões de  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{133}\text{Ba}$  e  $^{88}\text{Y}$ , esta última padronizada no sistema de coincidências  $4\pi\beta-\gamma$ .

Após esta calibração, são medidas as fontes do radionuclídeo em estudo. A intensidade gama é determinada pela análise dos picos de absorção total dos raios gama de interesse.

As incertezas na atividade das fontes e nos parâmetros do ajuste são determinadas utilizando-se a metodologia de análise de covariâncias<sup>[8, 9, 10]</sup>.

O Capítulo 1 do presente trabalho apresenta os fundamentos teóricos dos métodos de padronização e medida utilizados assim como os conceitos da metodologia de análise de covariâncias aplicado no tratamento e determinação das incertezas envolvidas nas medidas efetuadas.

As padronizações do  $^{42}\text{K}$  e do  $^{88}\text{Y}$  no sistema de coincidências são apresentadas no Capítulo 2.

O Capítulo 3 apresenta o arranjo experimental, as técnicas de preparação das fontes e as correções aplicadas no método de coincidências  $4\pi\beta-\gamma$ .

No Capítulo 4 é descrita a metodologia de espectrometria gama empregada.

A análise e discussão dos resultados obtidos e conclusões são apresentadas no Capítulo 5.

## 1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS

### 1.1. Radioatividade

O fenômeno ou propriedade radioatividade é quantificado em termos do número de transições nucleares que ocorrem em uma unidade de tempo.

Ao estudar as propriedades do rádio no início do século, Marie Curie quantificou a radioatividade em termos de gramas desse elemento, cuja unidade foi denominada “curie” (Ci), correspondendo à atividade de 1 grama de Ra. Mais tarde, com o aumento no número de materiais radioativos conhecidos, o curie foi redefinido como a atividade de uma substância que se desintegrava a uma taxa de  $3,7 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$ . A definição atual para a atividade, em termos de unidades do Sistema Internacional, SI, recebe o nome de becquerel (Bq), sendo

$$1 \text{ Bq} = 1 \text{ s}^{-1}$$

e

$$1 \text{ Ci} = 3,7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

A quantidade atividade é usada como uma medida da radioatividade e é definida pelo NCRP<sup>[11]</sup> da seguinte forma: “A atividade da quantidade de um nuclídeo em um estado de energia específico em um dado instante de tempo é o valor esperado do número de transições nucleares espontâneas por unidade de tempo daquele estado de energia.”

Como a radioatividade é um fenômeno estocástico, não se pode prever quando o átomo radioativo irá decair e qual a maneira exata do decaimento será registrada em um dado intervalo de tempo. Mas, para um valor médio, ou, valor esperado, do número de átomos decaindo em um dado tempo, existe uma distribuição de probabilidade e o número de decaimentos ocorrendo nesse tempo pode ser calculado porque o processo de

## 1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS

### 1.1. Radioatividade

O fenômeno ou propriedade radioatividade é quantificado em termos do número de transições nucleares que ocorrem em uma unidade de tempo.

Ao estudar as propriedades do rádio no início do século, Marie Curie quantificou a radioatividade em termos de gramas desse elemento, cuja unidade foi denominada “curie” (Ci), correspondendo à atividade de 1 grama de Ra. Mais tarde, com o aumento no número de materiais radioativos conhecidos, o curie foi redefinido como a atividade de uma substância que se desintegrava a uma taxa de  $3,7 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$ . A definição atual para a atividade, em termos de unidades do Sistema Internacional, SI, recebe o nome de becquerel (Bq), sendo

$$1 \text{ Bq} = 1 \text{ s}^{-1}$$

e

$$1 \text{ Ci} = 3,7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

A quantidade atividade é usada como uma medida da radioatividade e é definida pelo NCRP<sup>[11]</sup> da seguinte forma: “A atividade da quantidade de um nuclídeo em um estado de energia específico em um dado instante de tempo é o valor esperado do número de transições nucleares espontâneas por unidade de tempo daquele estado de energia.”

Como a radioatividade é um fenômeno estocástico, não se pode prever quando o átomo radioativo irá decair e qual a maneira exata do decaimento será registrada em um dado intervalo de tempo. Mas, para um valor médio, ou, valor esperado, do número de átomos decaindo em um dado tempo, existe uma distribuição de probabilidade e o número de decaimentos ocorrendo nesse tempo pode ser calculado porque o processo de

decaimento radioativo segue, exceto para taxas de desintegração extremamente altas, a distribuição de probabilidades de Poisson.

Matematicamente, a atividade é definida como a taxa de decaimento do nuclídeo no tempo, dada pela lei do decaimento radioativo

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (1.1)$$

onde  $N$  é o número de núcleos radioativos e  $\lambda$  é definida como a constante de decaimento.

A atividade específica é a atividade por grama do elemento radioativo, dado em  $\text{Bq.g}^{-1}$ .

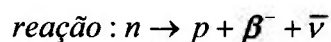
As diferentes propriedades da desintegração dos radionuclídeos e os parâmetros característicos de seu decaimento são normalmente descritos pelos esquemas de decaimento, que são diagramas com a energia total na ordenada e a carga nuclear como abscissa, sendo as transições entre estados de energia representadas por setas.

As transições nucleares envolvidas no processo de decaimento radioativo podem ser divididas entre transições de excitação onde os núcleos atômicos sofrem reações que os levam a estados de maior energia e transições de desexcitação que ocorrem de estados de maior energia para os de menor energia por meio da reorganização das partículas subatômicas no interior do átomo, com a intenção de levá-lo de volta ao estado fundamental. No primeiro caso, se destacam a emissão de partículas como partículas  $\alpha$ ,  $\beta^-$  (elétrons),  $\beta^+$  (positrons) e captura eletrônica, enquanto no segundo caso, a energia excedente é emitida na forma de radiação eletromagnética nuclear (raios  $\gamma$ ), elétrons de conversão interna, radiação eletromagnética atômica (raios X) e elétrons Auger<sup>[13]</sup>.

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

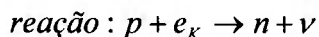
### Emissão $\beta^-$

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



### Captura Eletrônica (EC)

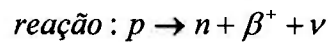
É uma forma de desintegração  $\beta$  onde um elétron do átomo é capturado pelo núcleo levando a conversão de um próton em um nêutron e à emissão de um neutrino, o qual carrega a energia da transição. Para decaimentos com energia maior que duas vezes a energia de ligação da camada K, o elétron capturado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



### Emissão $\beta^+$

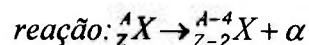
Decaimento  $\beta$  onde o núcleo emite um pósitron e um neutrino, convertendo um próton em um nêutron. Ocorre em competição com o processo de captura eletrônica, mas requer uma energia de  $2m_0c^2$  (ou 1022 keV). Em semelhança com a emissão  $\beta^-$ , as partículas emitidas apresentam espectro de energia contínuo, de zero a energia do

decaimento. Quando o pósitron emitido tem energia próxima de zero, ele interage com um elétron, levando a aniquilação de ambos e a consequente emissão de dois fótons de 511 keV cada um, o que caracteriza o processo de emissão  $\beta^+$ .



### Partículas $\alpha$

Ocorre espontaneamente para núcleos com número atômico  $Z > 82$ . Nesse processo, o núcleo emite uma partícula  $\alpha$ , ou um núcleo de hélio, com energias discretas, dadas pela energia do decaimento menos a energia de recuo do núcleo.



### Emissão gama

Os estados nucleares excitados se desexcitam por transições para estados de menor energia no mesmo núcleo. No processo, se dá a emissão de um raio  $\gamma$  ou a transferência da energia excedente para um elétron, conhecida como conversão interna. Pela emissão de uma série de raios  $\gamma$  ou de elétrons de conversão, o núcleo alcança o estado fundamental.

Pela lei de conservação da energia, temos que a energia do raio  $\gamma$  emitido será

$$E_\gamma = E_i - E_f - E_R \quad (1.2)$$

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

$$E_R = 0,5368 \times 10^{-6} \frac{E_\gamma^2}{A_f} \quad (1.3)$$



onde  $A_r$  é a massa atômica relativa e a energia é dada em keV<sup>[13]</sup>. Para conservação do momento, o núcleo recua em direção oposta à do raio  $\gamma$  emitido.

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

$$\lambda = \lambda_1 + \lambda_2 + \lambda_3 + \dots \quad (1.4)$$

e a meia-vida do estado excitado é dada por

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (1.5)$$

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

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

$$\alpha = \frac{I_{ec}}{I_\gamma} \quad (1.6)$$

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

$$\alpha_T = \alpha_K + \alpha_L + \alpha_M + \dots \quad (1.7)$$

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

$$I_{ec} = \frac{\alpha_T}{1 + \alpha_T} T \quad (1.8)$$

$$I_\gamma = \frac{1}{1 + \alpha_T} T_\gamma \quad (1.9)$$

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

### Rearranjo Eletrônico

Quando o átomo é levado a um estado excitado que provoca buracos na nuvem eletrônica, especialmente nos casos de captura eletrônica e conversão interna, a tendência natural é haver um rearranjo dos elétrons nas camadas com a intenção de preencher esse buraco. Esse preenchimento é acompanhado da emissão de raios X ou de elétrons Auger, com energias iguais a energia de ligação do elétron da camada que contém a vacância inicial.

- **Raios X**

Raios X são radiações eletromagnéticas emitidas em transições dos elétrons atômicos entre diferentes estados no átomo. As emissões ocorrem quando os elétrons mais externos preenchem os buracos deixados nas camadas internas. Cada transição possui uma energia característica, dada pela diferença entre as energias dos estados inicial e final.

- **Elétron Auger**

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

### Interação da radiação com a matéria

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

**Efeito fotoelétrico:** um fóton interage com um elétron orbital transferindo a este toda sua energia. O elétron é ejetado do átomo com energia  $E_e$  dada por

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

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

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

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

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

onde  $\alpha = E/m_0c^2$ , com  $m_0c^2$  correspondendo à energia de massa de repouso do elétron (511keV) e  $\theta$  o ângulo entre o fóton incidente e o fóton secundário. O elétron espalhado terá energia

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

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

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

**Produção de pares:** Neste processo, a energia do fóton incidente é convertida no campo Coulombiano do núcleo em um par pósitron-elétron. Para isso, a energia do fóton deve ser maior que duas vezes a massa de repouso de elétron, ou seja, 1022 keV. A energia excedente,  $E_\gamma - 2m_0c^2$ , é distribuída entre as duas partículas na forma de energia cinética.

## 1.2. Medida Absoluta da Atividade

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

Um dos métodos de medida absolutos largamente utilizado em padronizações de radionuclídeos é o método de coincidências, que possibilita a obtenção de resultados altamente precisos sem o conhecimento dos parâmetros inerentes ao processo de desintegração ou do equipamento utilizado, muito embora seu uso seja restrito a alguns casos especiais de desintegração radioativa, como descrito a seguir no item 1.2.1.

### 1.2.1. Método de Coincidências

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

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

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

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

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

onde

$N_0$	atividade da fonte
$N_\beta$	taxa de contagens na via beta
$N_\gamma$	taxa de contagens na via gama
$N_c$	taxa de contagens de coincidências
$\epsilon_\beta$	eficiência de detecção da via beta
$\epsilon_\gamma$	eficiência de detecção da via gama

Das equações acima pode-se concluir que

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

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

### 1.2.2. Técnica da Extrapolação Linear da Eficiência

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

Assim, as equações acima são alteradas e a taxa de desintegração passa a depender dos parâmetros do esquema como descrito nas equações abaixo para um emissor  $\beta$ - $\gamma$  com  $n$  ramos beta.

$$N_\beta = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[ \epsilon_{\beta r} + (1 - \epsilon_{\beta r}) \left( \frac{\alpha \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta \gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \right] \quad (1.17)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} \quad (1.18)$$

$$N_c = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[ \frac{\varepsilon_{\beta r} \varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \varepsilon_{cr} \right] \quad (1.19)$$

onde

- $\alpha$      coeficiente de conversão interna total da r-ésima transição gama
- $\varepsilon_{ec}$      eficiência do detector beta para elétrons de conversão interna
- $\varepsilon_{\beta\gamma}$      eficiência do detector beta para a radiação gama
- $\varepsilon_{cr}$      probabilidade de se registrar uma coincidência quando o ramo beta não é detectado, ou coincidências  $\gamma$ - $\gamma$
- $a_r$      coeficiente do r-ésimo ramo beta

A equação 1.16 passa a ser escrita como

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

Para contornar este problema foi desenvolvida a técnica de extrapolação linear da eficiência<sup>[6, 7, 14]</sup>.

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

A possibilidade de utilização da técnica de extrapolação no método de coincidência depende da existência de uma relação funcional entre a contagem no detector beta,  $N_{\beta}$ , e o

parâmetro de eficiência,  $N_c/N_\gamma$ , tal que  $N_\beta$  tenda para a atividade da fonte,  $N_0$ , quando o parâmetro de eficiência tender à unidade, ou seja, que

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

Esta condição ocorre quando a eficiência dos vários ramos beta,  $\varepsilon_{\beta r}$  puder ser representada como uma função de uma eficiência única  $\varepsilon_{\beta s}$ .

$$\varepsilon_{\beta r} = f_r(\varepsilon_{\beta s})$$

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

$$f_r \rightarrow 1 \text{ quando } \varepsilon_{\beta s} \rightarrow 1 \text{ para } r=1,2,\dots,n$$

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

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

onde  $F \rightarrow 1$  quando  $N_c/N_\gamma \rightarrow 1$ . Esta é a fórmula de coincidências generalizada<sup>[7]</sup>.

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

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



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

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} = N_0 G \left( \begin{array}{c} 1 - N_c/N_{\gamma} \\ N_c/N_{\gamma} \end{array} \right) \quad (1.22)$$

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

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

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

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

Variando-se  $(1-N_c/N_{\gamma})/(N_c/N_{\gamma})$ , obtém-se uma reta cujo coeficiente angular dará o valor de  $N_0K_{\varepsilon}$  e cuja ordenada inicial fornecerá o valor absoluto da atividade  $N_0$ .

Determina-se, desta forma, a constante da correção para o esquema de desintegração,  $K_{\varepsilon}$ , para um dado sistema de detecção e um dado radionuclídeo.

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

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

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

### 1.3. Probabilidade de Emissão gama por Decaimento

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

O segundo método foi adotado neste trabalho, sendo que a probabilidade de emissão por decaimento  $p(E_\gamma)$  é obtida das relações:

$$R(E_\gamma) = \frac{S(E_\gamma)}{\epsilon(E_\gamma)} \quad (1.24)$$

e

$$p(E_\gamma) = \frac{R(E_\gamma)}{A} \quad (1.25)$$

onde

$S(E_\gamma)$  taxa de contagens no pico de absorção total da radiação gama ( $E_\gamma$ ) em estudo por unidade de tempo, corrigida para decaimento, tempo morto, atenuação e geometria

$R(E_\gamma)$  taxa de emissão de fótons de energia gama da fonte

$\epsilon(E_\gamma)$  eficiência de pico, isto é, a eficiência no pico de absorção total da radiação gama determinada por meio da medida de padrões

$A$  atividade da fonte medida em sistema absoluto.

#### 1.4. Metodologia de Análise de Covariâncias

A análise de incertezas é fundamental em qualquer trabalho científico, adquirindo um papel ainda mais importante quando se trata de determinação de padrões, requerendo um cuidado especial no tratamento dos erros experimentais.

A metodologia de análise de covariâncias é a forma mais completa de cálculo e apresentação das incertezas em dados experimentais, pois além da incerteza total, ela fornece informações sobre a existência de um nível de correlação entre as incertezas de todos os parâmetros envolvidos no cálculo.

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

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

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

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

$$V_{xij} = \sum_{l=1}^L C_{ijl} e_{il} e_{jl} \quad (1.26)$$

sendo a incerteza total na i-ésima medida dada por<sup>[17]</sup>

$$\sigma_{xi} = (V_{xii})^{1/2} \quad (1.27)$$

## 2. PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS NO SISTEMA $4\pi\beta\text{-}\gamma$

### 2.1. Padronização do $^{88}\text{Y}$

Entre os radionuclídeos classificados como padrões primários o  $^{88}\text{Y}$  é muito importante na espectrometria gama pois emite duas radiações gama intensas, com energias de 898,05 e 1836,08 keV. Sua utilização permite ampliar o intervalo de energia de calibração dos espectrômetros gama, que geralmente é compreendido entre 120 e 1400 keV.

#### 2.1.1. Esquema de Decaimento do $^{88}\text{Y}$

O  $^{88}\text{Y}$  desintegra-se com uma meia-vida de 106,62 dias<sup>[4]</sup> pelo processo de captura eletrônica e emissão  $\beta^+$ , populando os níveis excitados do  $^{88}\text{Sr}$  (Figura 2.1), que decaem emitindo radiação gama de 898,05 e 1836,08 keV.

Na Tabela 2.1 são apresentadas as energias e intensidades mais intensas das radiações emitidas.

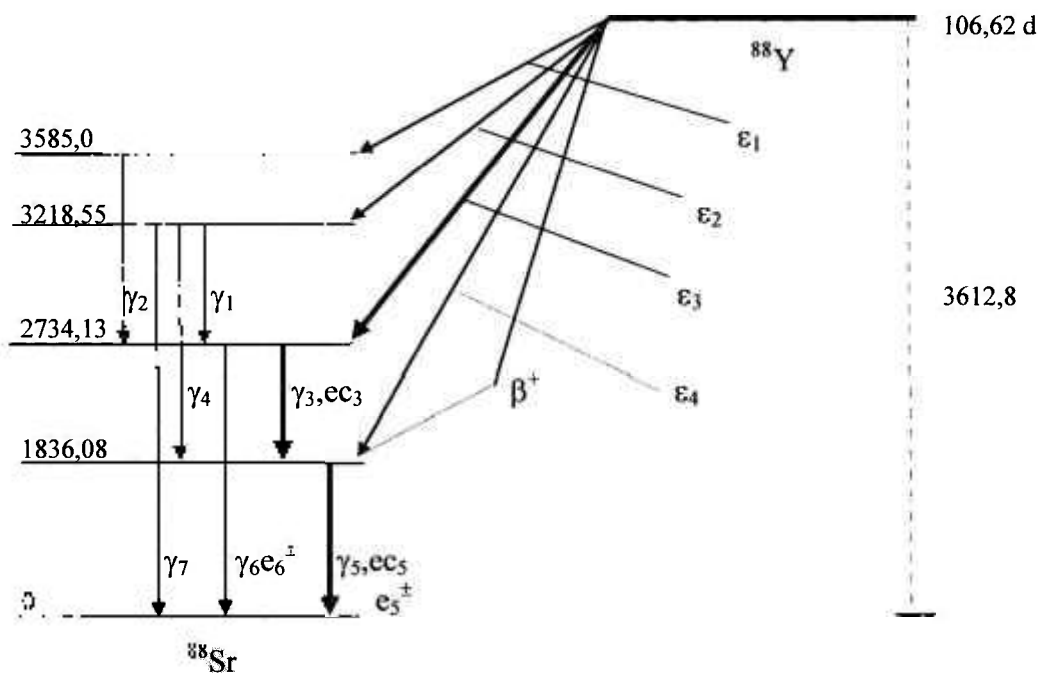


Figura 2.1: Esquema de decaimento do  $^{88}\text{Y}$ <sup>[2]</sup>. Todos os valores de energia são dados em keV.

Tabela 2.1. Modos de decaimento do  $^{88}\text{Y}^{121}$ .

Radiação emitida	Energia (keV)	Intensidade(%)
$\beta^+$	$754,7 \pm 3,4$	$0,20 \pm 0,02$
Captura eletrônica		
$\epsilon_1$	$27,8 \pm 3,4$	$0,05 \pm 0,02$
$\epsilon_2$	$394,3 \pm 3,4$	$0,027 \pm 0,04$
$\epsilon_3$	$878,7 \pm 3,4$	$94,7 \pm 0,05$
$\epsilon_4$	$1776,7 \pm 3,4$	$5,1 \pm 0,5$
Raios $\gamma$		
$\gamma_1$	$484,4 \pm 0,1$	$<9 \times 10^{-4}$
$\gamma_2$	$850,8 \pm 0,2$	$0,048 \pm 0,018$
$\gamma_3$	$898,05 \pm 0,01$	$94,1 \pm 0,5$
$\gamma_4$	$1382,46 \pm 0,05$	$0,019 \pm 0,003$
$\gamma_5$	$1836,08 \pm 0,02$	$99,40 \pm 0,05$
$\gamma_6$	$2734,13 \pm 0,02$	$0,61 \pm 0,02$
$\gamma_7$	$3218,55 \pm 0,05$	$0,007 \pm 0,002$
Raios X		
$X_{K\alpha 1}$	14,0979	52,0
$X_{K\alpha 2}$	14,1650	100
$X_{K\beta 1}$	15,83	24,4
$X_{K\beta 2}$	16,08	3,0
$X_L$	1,6 - 2,2	
Elétrons Auger		
$e_{KLL}$	11,59 - 12,13	100
$e_{KLX}$	13,50 - 14,01	35,9
$e_{KLY}$	15,56 - 15,94	4,1
$E_L$	1,2 - 2,1	

### 2.1.2. Aplicação do Método de Coincidências na Medida da Taxa de Desintegração do $^{88}\text{Y}$

O sistema de coincidências empregado para a padronização do  $^{88}\text{Y}$  utiliza o contador proporcional com geometria  $4\pi$  a gás fluente para detecção dos raios X característicos e elétrons Auger provenientes do processo de captura eletrônica e dois cintiladores de NaI(Tl) para detecção da radiação gama coincidente.

No Capítulo 3 é descrito o sistema eletrônico utilizado.

De acordo com o exposto no item 1.2, as equações que regem o método de coincidência para padronização do  $^{88}\text{Y}$  são apresentadas a seguir.

$$N_{X,A} = N_0 \left[ \varepsilon_{X,A} + (1 - \varepsilon_{X,A}) \frac{(\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma})}{1 + \alpha} \right] \quad (2.1)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \frac{\varepsilon_{\gamma 3}}{1 + \alpha} \quad (2.2)$$

$$N_c = N_0 \frac{\varepsilon_{\gamma 3}}{1 + \alpha} \varepsilon_{X,A} \quad (2.3)$$

onde  $N_{\gamma}$  é a taxa de contagem no detector gama já corrigida para radiação de fundo e tempo morto,  $N_c$  é a taxa de coincidências corrigida para tempo de resolução e  $N_{X,A}$  é a taxa de contagem para raios X, elétrons Auger e elétrons de conversão no contador  $4\pi$  já corrigida para radiação de fundo, tempo morto e decaimento sendo  $\varepsilon_{X,A} = \frac{N_c}{N_{\gamma}}$ .

Da combinação das três equações obtemos

$$\frac{N_{X,A} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left[ 1 + \frac{(1 - \varepsilon_{X,A})}{\varepsilon_{X,A}} \frac{(\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma})}{1 + \alpha} \right] \quad (2.4)$$



A medida na via gama é feita selecionando o pico 898,05 keV (em coincidência com os raios X e elétrons Auger provenientes do processo de captura eletrônica de 878,7 keV), de modo a tornar a coincidência  $\gamma$ - $\gamma$  por espalhamento Compton igual a zero.

Como a eficiência para elétrons de conversão é igual a 1 e a eficiência do detector proporcional para a radiação gama é muito pequena, podemos reescrever a equação 2.4 como

$$\frac{N_{X,A}N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left[ 1 + \left( \frac{1 - N_c/N_{\gamma}}{N_c/N_{\gamma}} \right) K_{\varepsilon} \right] \quad (2.5)$$

onde  $K_{\varepsilon} = \frac{\alpha_T \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_T}$  e  $\frac{N_{X,A}N_{\gamma}}{N_c} = N_0 G \left( \frac{1 - N_c/N_{\gamma}}{N_c/N_{\gamma}} \right)$ .

Desta equação podemos verificar que a função G, como citado no item 1.2.2 deverá ser uma função linear da eficiência de modo que  $G \rightarrow 1$  quando  $(1 - N_c/N_{\gamma}) / (N_c/N_{\gamma}) \rightarrow 0$ .

Podemos assim aplicar a técnica de extrapolação da eficiência de maneira a termos o valor de  $N_0$  quando o parâmetro de ineficiência  $(1 - N_c/N_{\gamma}) / (N_c/N_{\gamma})$  for zero.

## 2.2. Padronização do $^{42}\text{K}$

### 2.2.1. Esquema de Decaimento do $^{42}\text{K}$

O elemento K encontrado na natureza é composto de três isótopos :

isótopo	abundância natural	seção de choque
$^{39}\text{K}_{19}$	93,1%	2,2(2) barns
$^{40}\text{K}_{19}$	0,0118%	70(20) barns
$^{41}\text{K}_{19}$	6,88%	1,3(2) barns

O isótopo radioativo  $^{42}\text{K}$  é formado pela captura de um nêutron pelo  $^{41}\text{K}$  quando este é submetido a um fluxo de nêutrons térmicos, através da reação  $^{41}\text{K}(n,\gamma)^{42}\text{K}$ , tendo o radionuclídeo resultante a meia-vida de 12,359(3)<sup>[4]</sup> horas, decaindo pela emissão de partículas  $\beta$  e populando os níveis excitados do  $^{42}\text{Ca}$  (Figura 2.2).

Na Tabela 2.2 são apresentadas as energias e intensidades das radiações emitidas.

Tabela 2.2: Modos de decaimento do  $^{42}\text{K}^{[2]}$ 

Radiação emitida	Energia (keV)	Intensidade(%)
Emissão $\beta^-$		
$\beta^-_1$	$74,1 \pm 1,6$	$0,07 \pm 0,01$
$\beta^-_2$	$1096,8 \pm 1,6$	$0,05 \pm 0,01$
$\beta^-_3$	$1683,8 \pm 1,6$	$0,325 \pm 0,030$
$\beta^-_4$	$1996,4 \pm 1,6$	$17,5 \pm 0,5$
$\beta^-_5$	$3521,1 \pm 1,6$	$82,1 \pm 0,5$
Raios $\gamma$		
$\gamma_1$	$312,746 \pm 0,030$	$0,32 \pm 0,02$
$\gamma_2$	$694,0 \pm 1,5$	$0,0032 \pm 0,0008$
$\gamma_3$	$899,39 \pm 0,04$	$0,052 \pm 0,003$
$\gamma_4$	$1022,71 \pm 0,09$	$0,025 \pm 0,07$
$\gamma_5$	$1227,7 \pm 0,05$	$0,0023 \pm 0,0012$
$\gamma_6$	$1524,665 \pm 0,020$	$17,9 \pm 0,5$
$\gamma_7$	$1837,28 \pm 0,10$	$0,0097 \pm 0,0005$
$\gamma_8$	$1922,16 \pm 0,06$	$0,041 \pm 0,005$
$\gamma_9$	$2424,17 \pm 0,09$	$0,021 \pm 0,003$

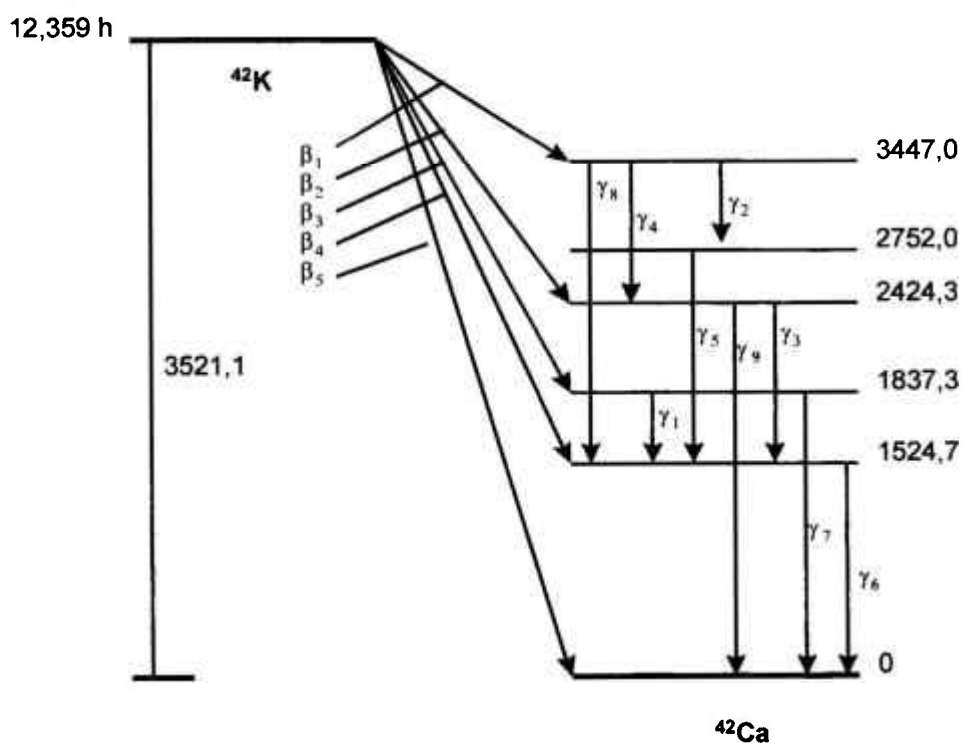


Figura 2.2: Esquema de decaimento do  $^{42}\text{K}$ . Todos os valores de energia são dados em keV<sup>[2]</sup>.

### 2.2.2. Aplicação do Método de Coincidências na Determinação da Taxa de Desintegração do $^{42}\text{K}$

O sistema de coincidências utilizado é o adotado na padronização do  $^{88}\text{Y}$  e descrito no Capítulo 3.

As equações que regem o método de coincidências descrito no item 1.2 aplicadas ao decaimento do  $^{42}\text{K}$ , considerando as transições  $\beta$  mais intensas, de 3521 e 1996 keV com intensidades de 82,1 % e 17,5 %, respectivamente, são escritas como segue:

$$N_{\beta} = N_0 \left[ a_1 \left[ \epsilon_{\beta_1} + (1 - \epsilon_{\beta_1}) \frac{(\alpha \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta\gamma})}{(1 + \alpha)_1} \right] + a_2 \left[ \epsilon_{\beta_2} + (1 - \epsilon_{\beta_2}) \frac{(\alpha \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta\gamma})}{(1 + \alpha)_2} \right] \right] \quad (2.6)$$

$$N_{\gamma} = N_0 a_1 \frac{\epsilon_{\gamma_1}}{(1 + \alpha)_1} \quad (2.7)$$

$$N_c = N_0 a_1 \left[ \epsilon_{\beta_1} \frac{\epsilon_{\gamma_1}}{(1 + \alpha)_1} + (1 - \epsilon_{\beta_1}) \epsilon_{\gamma\gamma} \right] \quad (2.8)$$

onde

o índice  $i=1$  representa os raios  $\beta_1$  e  $i=2$  representa os raios  $\beta_2$

$\epsilon_{\gamma\gamma}$  é a eficiência para coincidência  $\gamma$ - $\gamma$  ou  $\gamma$ - $\gamma_{\text{Compton}}$ . Quando se considera somente a janela do fotopico,  $\epsilon_{\gamma\gamma}=0$ .

Como a transição responsável pela emissão  $\beta_2$  não dá origem a elétrons de conversão interna e nem à emissão gama, o termo  $(1 - \epsilon_{\beta_2}) \frac{(\alpha \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta\gamma})}{(1 + \alpha)_2}$  é igual a zero.

Das três equações acima, segue que:

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} = \frac{N_0 \left\{ a_1 \left[ \varepsilon_{\beta_1} + (1 - \varepsilon_{\beta_1}) \frac{(\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma})}{(1 + \alpha)_1} \right] + a_2 \varepsilon_{\beta_2} \right\} N_0 a_1 \frac{\varepsilon_{\gamma_1}}{(1 + \alpha)_1}}{N_0 a_1 \left[ \varepsilon_{\beta_1} \frac{\varepsilon_{\gamma_1}}{(1 + \alpha)_1} + (1 - \varepsilon_{\beta_1}) \varepsilon_{\gamma\gamma} \right]} \quad (2.9)$$

Aplicando as considerações para  $\varepsilon_{c1}$  e agrupando os termos semelhantes, temos:

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left\{ \frac{a_1}{\varepsilon_{\beta_1}} \left[ \varepsilon_{\beta_1} + (1 - \varepsilon_{\beta_1}) \frac{(\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma})}{(1 + \alpha)_1} \right] + \frac{a_2}{\varepsilon_{\beta_1}} \varepsilon_{\beta_2} \right\} \quad (2.10)$$

Da equação 2.10 podemos verificar claramente que o emprego da técnica de extrapolação da eficiência para determinação de  $N_0$  depende da obtenção de uma relação entre as eficiências  $\beta$  que podem ser representadas por

$$\varepsilon_{\beta_r} = f(\varepsilon_{\beta_s})$$

No caso do  $^{42}\text{K}$ , as eficiências de detecção do contador proporcional empregado são da ordem de 90%, o que permite atribuir à função  $f$  uma forma linear sugerida por Baerg<sup>[7]</sup> dada por

$$\varepsilon_{\beta_r} = 1 - C_r(1 - \varepsilon_{\beta_s}) \quad (2.11)$$

onde  $C_r \approx \text{cte}$  para o intervalo de 75 a 100% na variação da eficiência.

A equação (2.11) pode ser facilmente demonstrada calculando a razão entre as ineficiências  $\frac{1 - \varepsilon_{\beta_1}}{1 - \varepsilon_{\beta_2}}$ , como segue.

$$\text{Seja } \varepsilon_{\beta_1} = e^{-\mu_1 x} \text{ e } \varepsilon_{\beta_2} = e^{-\mu_2 x}$$

$$\frac{1 - \varepsilon_{\beta_1}}{1 - \varepsilon_{\beta_2}} = \frac{1 - e^{-\mu_1 x}}{1 - e^{-\mu_2 x}} \quad (2.12)$$

$$\varepsilon_{\beta_1} = 1 - \frac{(1 - \varepsilon_{\beta_2})(1 - e^{-\mu_1 x})}{1 - e^{-\mu_2 x}} \quad (2.13)$$

$$\varepsilon_{\beta_1} = 1 - \left[ \frac{1}{1 - e^{-\mu_2 x}} - \frac{e^{-\mu_1 x}}{1 - e^{-\mu_2 x}} + \frac{\varepsilon_{\beta_2}(1 - e^{-\mu_1 x})}{1 - e^{-\mu_2 x}} \right] \quad (2.14)$$

$$\varepsilon_{\beta_1} = 1 - \left[ \frac{1 - e^{-\mu_1 x}}{1 - e^{-\mu_2 x}} - \varepsilon_{\beta_2} \frac{1 - e^{-\mu_1 x}}{1 - e^{-\mu_2 x}} \right] \quad (2.15)$$

Sendo  $C_{1/2} = \frac{1 - e^{-\mu_1 x}}{1 - e^{-\mu_2 x}}$ , temos finalmente que

$$\varepsilon_{\beta_1} = 1 - C_{1/2}(1 - \varepsilon_{\beta_2}) \quad (2.16)$$

como queríamos demonstrar.

Considerando, portanto,  $\varepsilon_{\beta_2} = 1 - C_{1/2}(1 - \varepsilon_{\beta_1})$  a equação 2.10 passa a ser escrita como:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left\{ a_1 + a_2 + \left[ a_1 \frac{(\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma})}{(1 + \alpha)_1} + a_2 C_{1/2} \left[ \frac{(1 - \varepsilon_{\beta_1})}{\varepsilon_{\beta_1}} \right] \right\} \quad (2.17)$$

Sendo  $\varepsilon_{\beta_1} = \frac{N_c}{N_{\gamma}}$  teremos:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left[ a_1 + a_2 + a_1 \frac{(\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma})}{(1 + \alpha)_1} + a_2 C_{1/2} \left[ \frac{(1 - N_c / N_{\gamma})}{N_c / N_{\gamma}} \right] \right] \quad (2.18)$$

Considerando, finalmente,  $a_1 \frac{(\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma})}{(1+\alpha)_1} + a_2 C_{1/2} = K_\varepsilon$  e, como  $a_1 + a_2 = 1$ ,

chegamos a

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_0 \left[ 1 + K_\varepsilon \frac{(1 - N_c/N_\gamma)}{N_c/N_\gamma} \right] \quad (2.19)$$

semelhante à equação 1.23, com  $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}$  em função do parâmetro de ineficiência

$\frac{(1 - N_c/N_\gamma)}{N_c/N_\gamma}$ , que tende a zero quando  $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \rightarrow N_0$ .



### 3. ARRANJO EXPERIMENTAL DO SISTEMA DE COINCIDÊNCIAS $4\pi\beta\text{-}\gamma$

O sistema de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  utilizado neste trabalho é constituído por um contador proporcional a gás fluente com geometria  $4\pi$  para detecção da radiação  $\beta$  e raios X e dois cristais cintiladores de NaI(Tl) para a detecção da radiação  $\gamma$ . Os eventos coincidentes são registrados quando detectados simultaneamente nos dois contadores.

#### 3.1. Detectores Utilizados

##### 3.1.1. Contador Proporcional $4\pi$ (PC)

O contador utilizado é composto por duas partes simétricas de latão, com formato interno semi-cilíndrico. Cada uma das partes possui um anodo, formado por um fio de aço inoxidável, com diâmetro de  $25\mu\text{m}$ , preso por isoladores de teflon.

O conjunto formado pelas duas partes justapostas apresenta um formato interno aproximadamente cilíndrico, com diâmetro e comprimento de 3 cm e 7,5 cm, respectivamente, e é apresentado nas Figuras 3.1 e 3.2. Entre as duas metades é encaixada um placa deslizante para o posicionamento da fonte no interior do detector sem a necessidade de abri-lo. A vedação é feita com anéis de borracha.

O interior do contador é preenchido com gás de alta pureza constituído de 90% de argônio e 10% de metano, operado à pressão de 0,1 MPa.

As partículas emitidas pela fonte ionizam as moléculas do gás. Os elétrons livres assim formados são acelerados pelo campo elétrico no interior do detector em direção ao anodo, ganhando energia no percurso e ionizando outras moléculas do gás, originando uma

avalanche, conhecida como avalanche Townsend. Essa avalanche termina quando todos os elétrons livres são coletados no anodo, sendo a corrente formada proporcional ao número de elétrons, que por sua vez, é proporcional à energia da partícula incidente, uma vez que o detector é operado na região proporcional apresentando um fator de multiplicação de aproximadamente  $10^4$ .

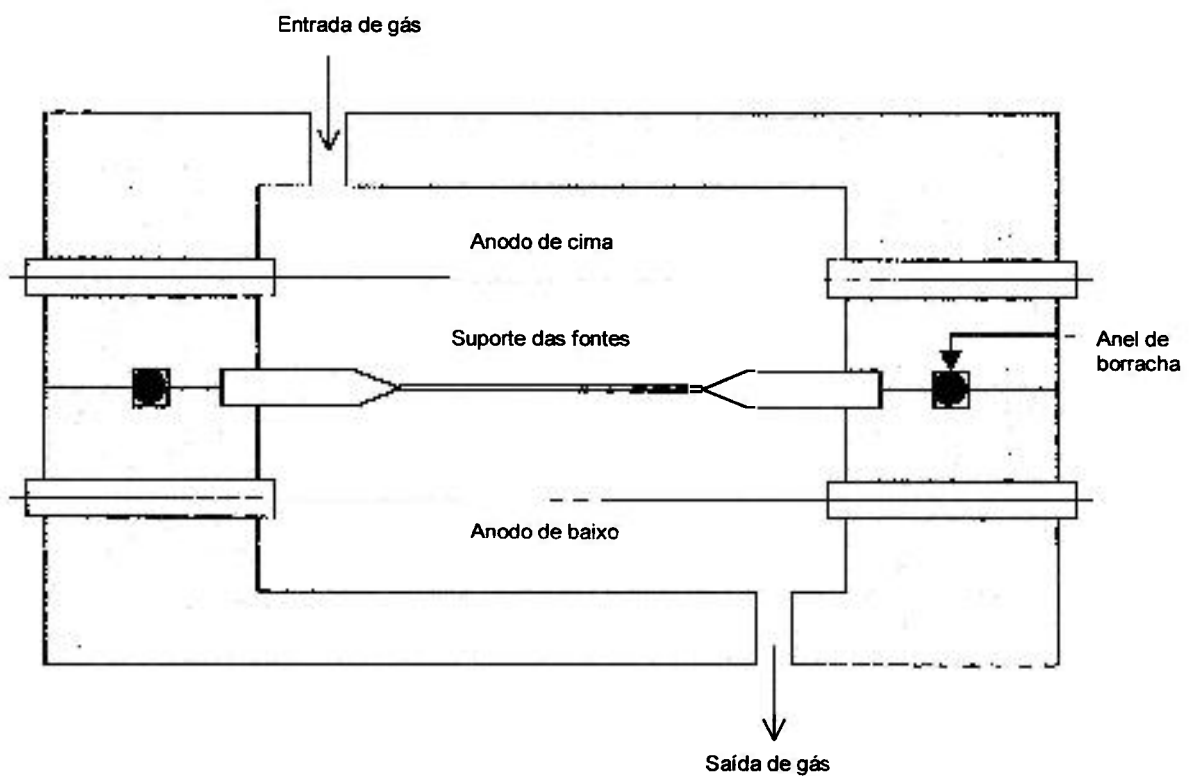


Figura 3.1: Desenho esquemático do contador proporcional, em corte transversal

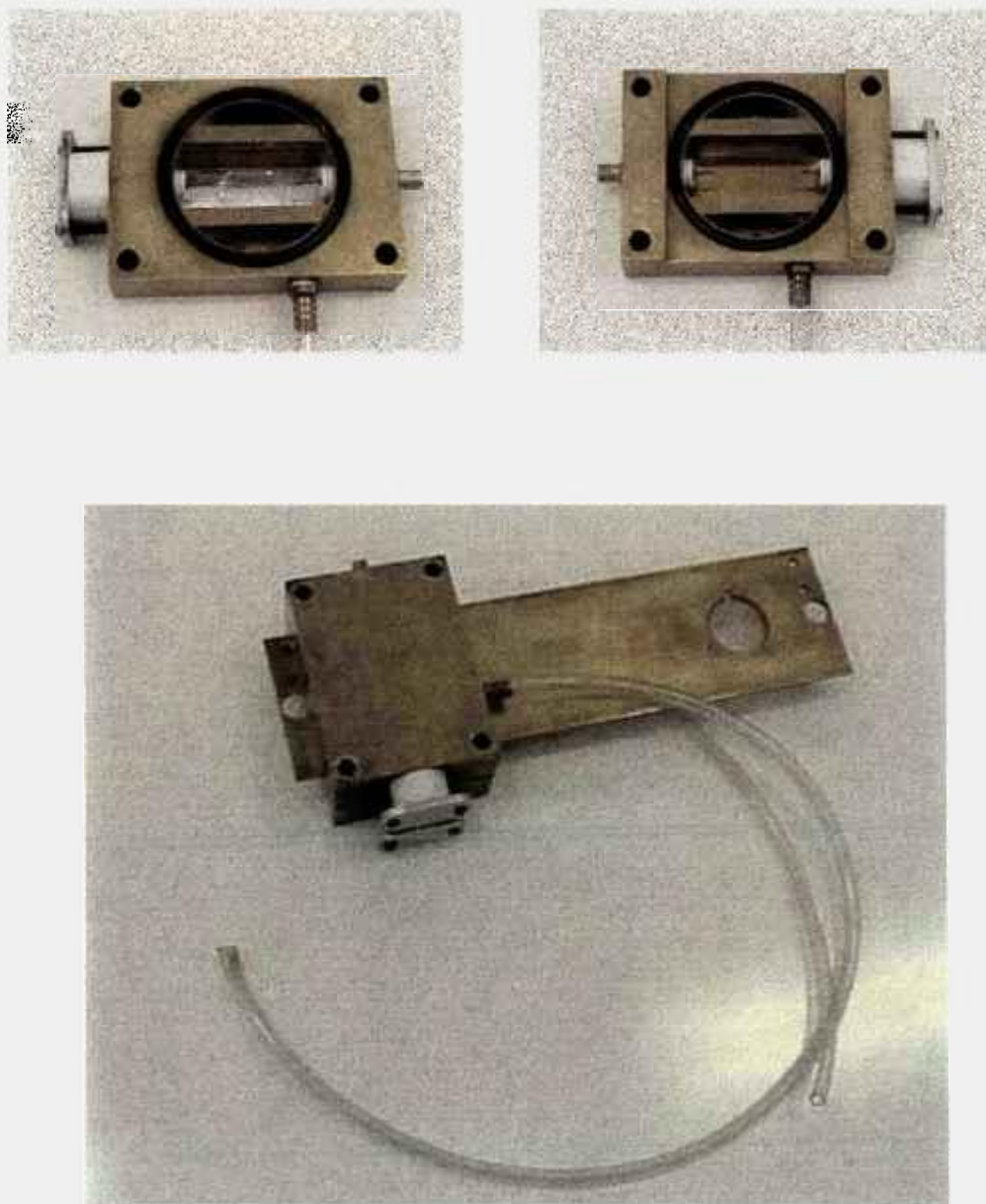


Figura 3.2: Contador proporcional do Laboratório de Metrologia Nuclear. Nas fotos menores, as duas metades separadas mostram o interior do contador, enquanto na foto maior tem-se o conjunto montado, com a lingueta que sustenta a fonte entre as duas metades.

### 3.1.2. Cristal Cintilador NaI(Tl)

Foram utilizados dois cristais cintiladores de NaI com impurezas de Tálcio (Tl), com dimensões de 76mm x 76mm, posicionados nas faces superior e inferior do detector proporcional.

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

### 3.2. Sistema Eletrônico Associado

A cada um dos detectores são acoplados equipamentos eletrônicos que permitem a medida e aquisição de dados.

O sistema eletrônico utilizado é apresentado na Figura 3.3.

Este sistema é composto por duas vias distintas,  $\beta$  e  $\gamma$ , cada uma destinada a um tipo de detector, e uma via de coincidências.

- a) *Via  $\gamma$  - Detectores NaI:* Os pulsos provenientes dos dois detectores distintos passam por amplificadores e são depois somados gerando um único sinal. A medida nesta via é feita selecionando-se a região do espectro gama referente ao pico de absorção total; para isso faz-se a discriminação deste por meio de um analisador monocanal com atrasador (Single Channel Analyser-Timing, ou simplesmente SCA-Timing) que permite selecionar a energia de interesse (janela). Após esta seleção os pulsos são

enviados a um módulo de porta e atraso (Gate and Delay Generator) que permite fixar o tempo morto do sistema assim como o tempo de resolução, sendo posteriormente os pulsos enviados ao módulo de coincidências e ao contador denominado contador gama

- b) *Via  $\beta$  - Detector proporcional  $4\pi$* : O pulso proveniente do detector proporcional sofre o mesmo processo de ajuste descrito para a via  $\gamma$ , com a diferença de usar o discriminador apenas para cortar o ruído eletrônico, uma vez que a medida é feita no modo integral.
  
- c) *Via de coincidências*: A via de coincidências é constituída de um módulo de coincidências (Universal Coincidence) onde são coletados os sinais provenientes das duas vias  $\beta$  e  $\gamma$  originados na mesma desintegração, sendo estabelecido um intervalo de tempo, conhecido como tempo de resolução, onde os sinais são considerados coincidentes, e um contador para o registro desses eventos.

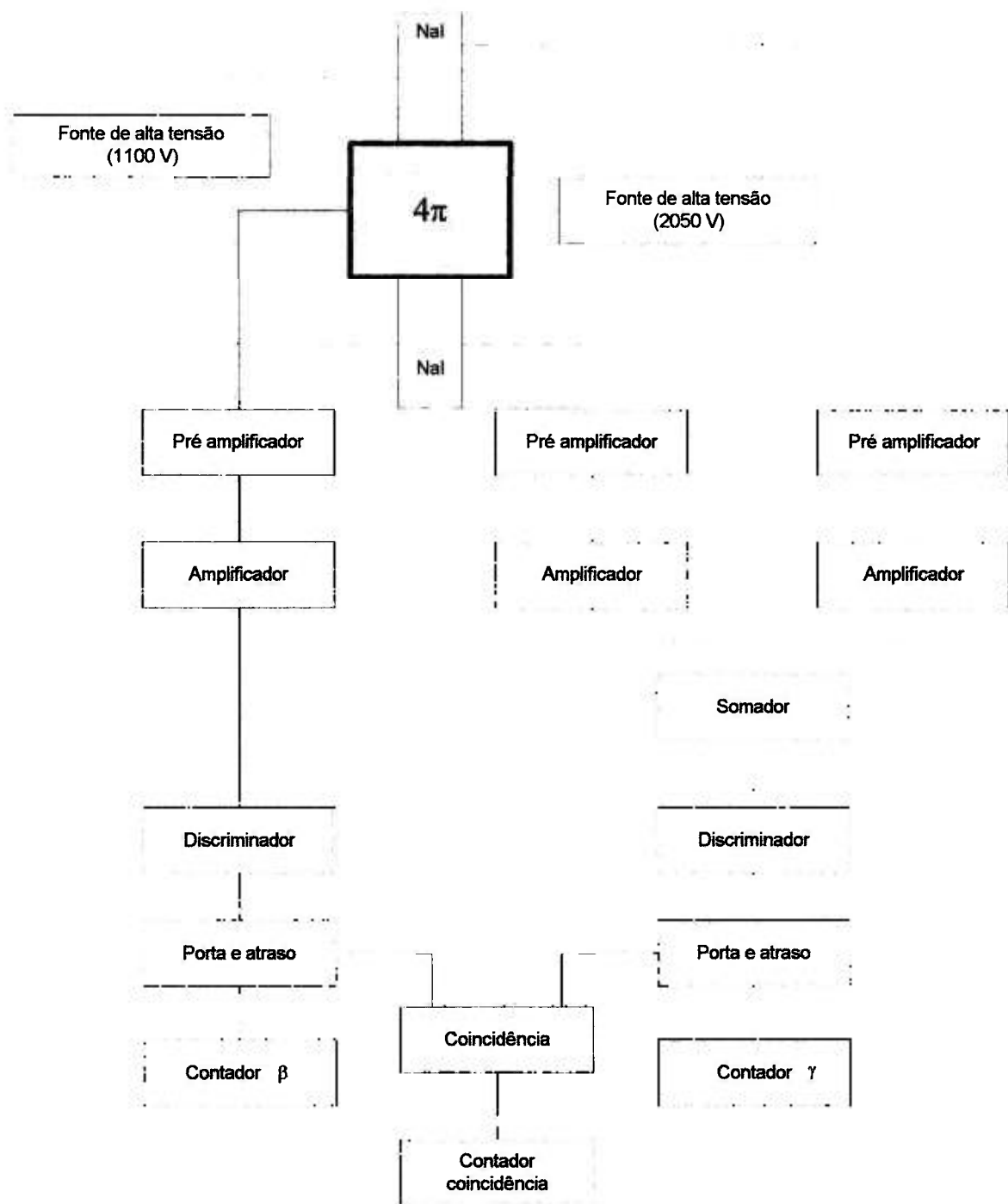


Figura 3.3: Sistema eletrônico para medidas no sistema de coincidências  $4\pi\beta\text{-}\gamma$

### 3.2.1. Sistemas Auxiliares

Para o ajuste dos módulos eletrônicos são utilizados dois sistemas auxiliares A-1 e A-2, esquematizados nas Figuras 3.4 e 3.7.

O sistema auxiliar A-1 é utilizado para visualização do espectro gama e seleção dos intervalos de energia de interesse a serem discriminados.

O sinal proveniente do módulo Soma é enviado a um módulo de atraso que por sua vez dá origem ao sinal de entrada no módulo Porta Linear (Linear Gate), ao mesmo tempo que é enviado ao módulo SCA e ao Linear Gate no modo Gate. O sinal do L.G. é finalmente acoplado a um analisador multicanal que registrará o espectro gama em estudo. O módulo L.G. permite através de uma chave seletora analisar o espectro de saída direto do módulo Soma ou após o módulo SCA, o que mostra o intervalo de energia selecionado. Na Figura 3.5 é apresentado um espectro típico gama e o intervalo de energia selecionado (entre setas) que corresponde aos picos de absorção total.

A visualização do espectro beta é feita de modo semelhante com a verificação do nível de ruído a ser discriminado, na Figura 3.6 é apresentado um histograma beta típico e a região de ruído discriminada.

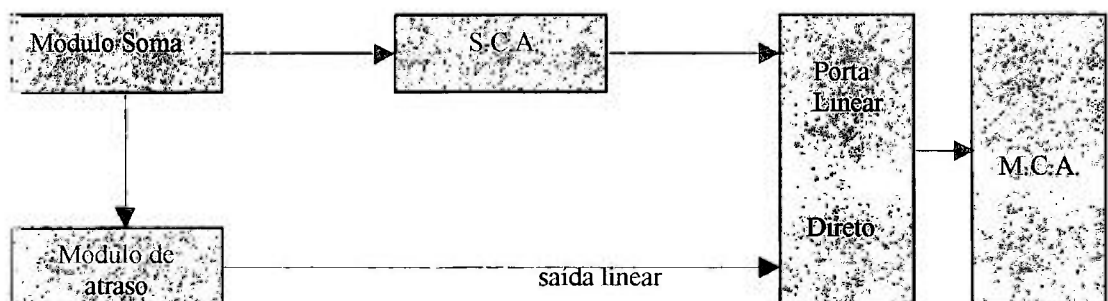


Figura 3.4: Sistema auxiliar A-1.

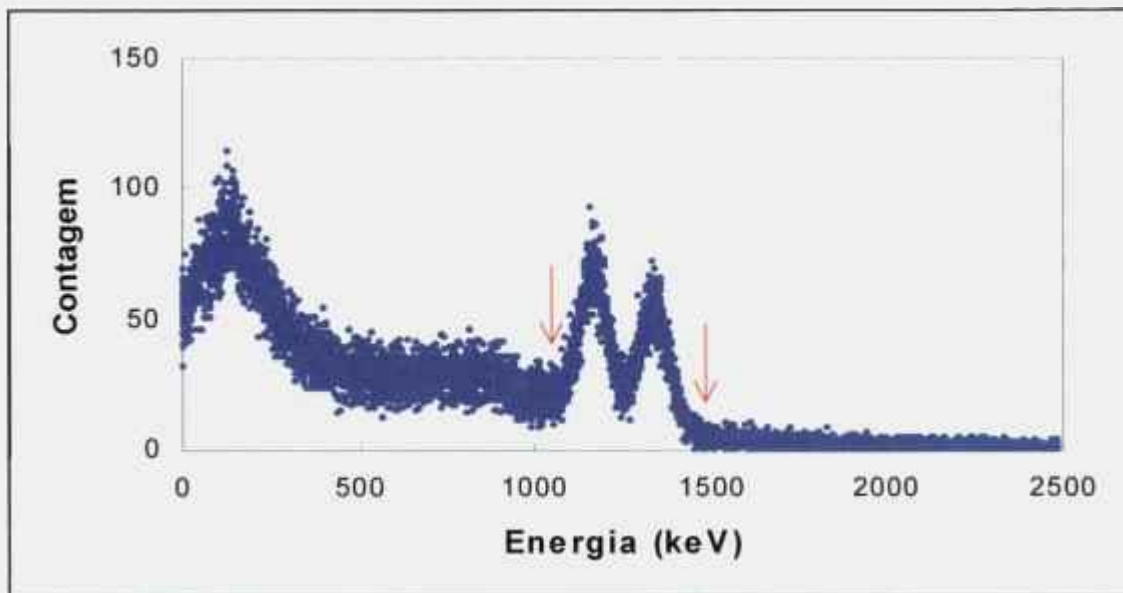


Figura 3.5: Espectro gama típico ( $^{60}\text{Co}$ ) proveniente do detector NaI(Tl).

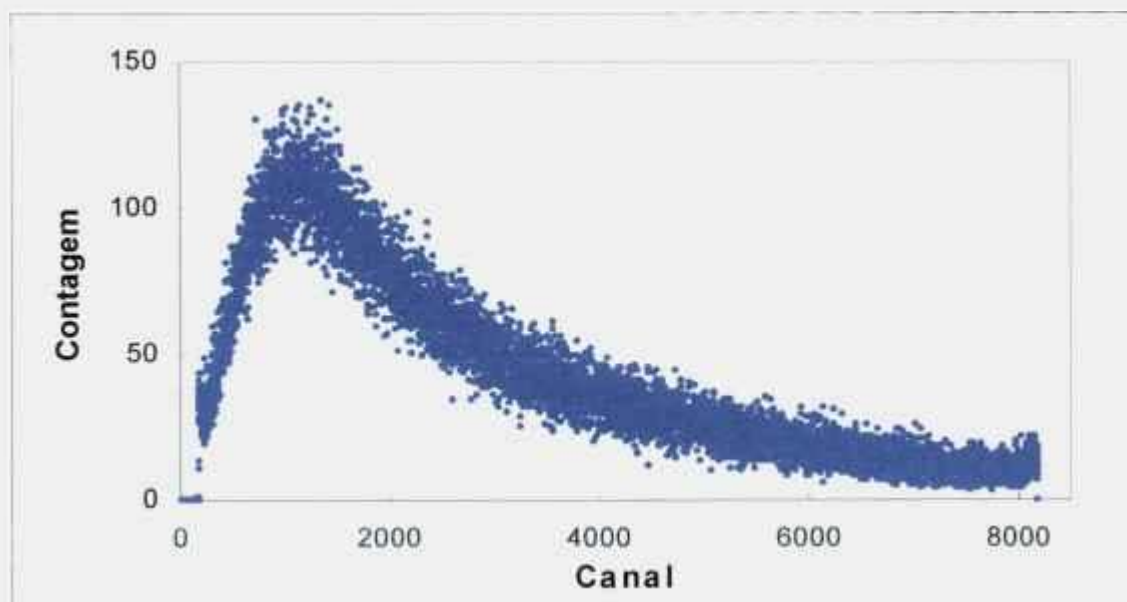


Figura 3.6: Histograma beta proveniente do detector proporcional.



O sistema auxiliar A-2 é utilizado para o ajuste do tempo de chegada dos pulsos beta e gama na unidade de coincidência.

O método de coincidências é baseado na detecção de eventos que ocorrem simultaneamente. Estes eventos podem ser reais ou acidentais. No primeiro caso, a coincidência registrada é proveniente de uma mesma desintegração (coincidência  $\beta$ - $\gamma$ ), enquanto no segundo caso os eventos individuais observados em cada um dos contadores não têm origem comum. Para se ter certeza de registrar eventos coincidentes reais é necessário que as diferenças intrínsecas de cada detector sejam compensadas eletronicamente.

A fim de ajustar os tempos de chegada dos pulsos beta e gama na unidade de coincidências, mede-se a distribuição de tempo relativa dos pulsos gama em relação aos pulsos beta. Tal distribuição é obtida usando um conversor tempo-amplitude (TAC) acoplado ao analisador multicanal. Sob estas circunstâncias, para obter um valor médio igual a zero para o tempo de chegada entre os canais beta e gama, os tempos de atraso individuais devem ser ajustados para que o tempo de chegada dos pulsos beta no contador de coincidências seja o mesmo que o tempo médio de chegada dos pulsos gama.

Um diagrama de blocos do circuito utilizado é mostrado na Figura 3.7.

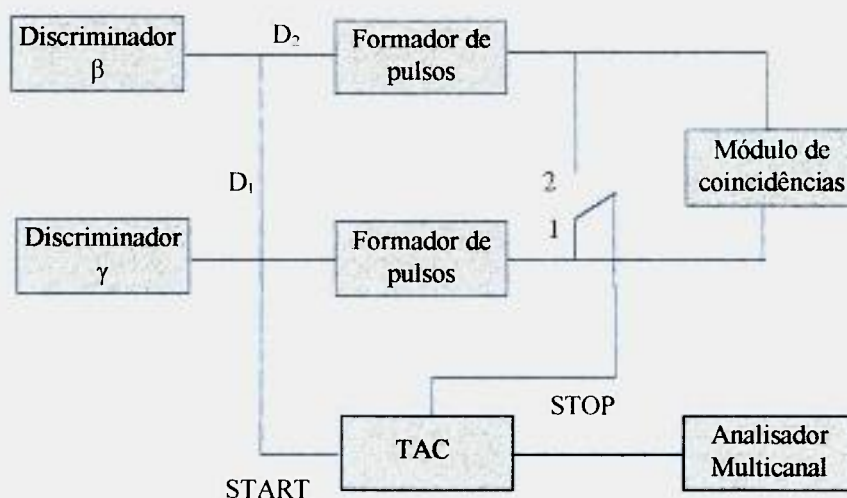


Figura 3.7: Diagrama de blocos esquemático do sistema eletrônico A-2 para ajuste do tempo de chegada dos pulsos nos canais beta e gama do sistema de coincidências  $4\pi\beta$ - $\gamma$

Inicialmente com a chave na posição 2, determina-se a distribuição de tempo  $\beta$ - $\beta$  verificando-se a sua posição no multicanal. Esta distribuição é muito estreita, uma vez que o mesmo pulso beta dá o comando para o início e termino da contagem (*start* e *stop*). Após a identificação da posição do pico (canal), muda-se a chave para a posição 1 e registra-se a distribuição de tempo de chegada entre os pulsos beta (*start*) e os pulsos gama (*stop*). Se houver diferença entre os tempos, ajusta-se os atrasos  $D_1$  e  $D_2$  para que as duas distribuições tenham sua centróide no mesmo canal do multicanal, obtendo-se assim a distribuição de tempo propriamente dita.

### 3.3. Preparação de Fontes para Medidas no Sistema de Coincidências

As fontes radioativas para medida no sistema de coincidências, devem ser preparadas em substratos de plástico bem finos (filmes) para evitar a auto-absorção das partículas beta.

Os substratos utilizados na confecção das fontes para medida no sistema de coincidências  $4\pi\beta$ - $\gamma$ , são filmes finos de Collodion (nitrato de celulose, com espessura de  $\sim 10 \mu\text{g cm}^{-2}$ ) montados sobre arandelas de aço inoxidável com 0,2 mm de espessura, diametro interno de 2 cm e externo de 4 cm. O conjunto é metalizado em ambos os lados com Au (espessura final de  $20 \mu\text{g cm}^{-2}$ ) para torná-los condutores, uma vez que são colocados no interior do detector proporcional. Na Figura 3.9 é apresentado um desenho esquemático dos substratos utilizados na preparação das fontes.

As fontes são preparadas depositando-se sobre o centro do substrato alíquotas conhecidas da solução radioativa. Para evitar a formação de cristais quando da secagem da solução, garantindo a homogeneidade do conjunto, adiciona-se uma gota de Cyastat, um agente que rompe a tensão superficial do líquido e faz-se a secagem com jato aquecido de nitrogênio ( $45^\circ\text{C}$ ), impedindo a formação de cristais grandes com a secagem rápida.

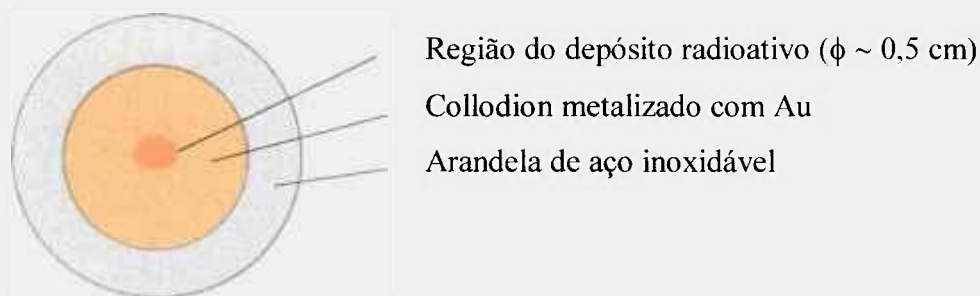


Figura 3.9: Desenho esquemático das fontes para as medidas no sistema de coincidências  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ .

A massa das fontes é determinada pelo método do picnômetro<sup>[19]</sup>, que consiste na pesagem do picnômetro que contém a solução radioativa em balança analítica de precisão (Mettler 5SA) antes e depois da deposição das alíquotas sobre o substrato, sendo a sua massa determinada pela diferença entre pesagens consecutivas. No cálculo da massa são feitas correções para temperatura, pressão atmosférica e correções dos pesos da balança.

### 3.4. Correções Aplicadas

As taxas de contagens observadas devem ser corrigidas para perdas devidas ao tempo morto dos detectores e do sistema eletrônico, para radiação de fundo e decaimento, assim como as coincidências devem ser corrigidas para coincidências acidentais ou fortuitas que ocorrem no tempo de resolução pré-estabelecido.

### 3.4.1. Tempo morto

O tempo morto de um detector é o intervalo de tempo que este leva para registrar dois eventos distintos. Portanto, os eventos que chegarem ao detector neste intervalo não serão contados, acarretando um erro na taxa de contagem, que aumenta proporcionalmente à atividade da fonte.

No sistema de coincidência, o tempo morto é fixado eletronicamente e o valor utilizado nas correções é dado pela equação

$$N = \frac{N'}{1 - N'\tau} \quad (3.1)$$

onde  $N'$  é a taxa de contagens registrada no contador e  $\tau$  o tempo morto.

O tempo morto é medido experimentalmente pelo Método do Pulsador<sup>[20]</sup> descrito no item 3.5.1.

### 3.4.2. Tempo de Resolução (Correção para Coincidências Acidentais)

No cálculo da atividade, o número de coincidências registradas são corrigidas para as coincidências acidentais devidas ao tempo de resolução do sistema de acordo com o formalismo desenvolvido por Cox e Isham<sup>[21]</sup> e adaptado por Smith<sup>[22, 23]</sup>, permitindo assim a sua aplicação diretamente às taxas de contagem observadas.

O formalismo de Cox e Isham considera todos os possíveis casos de coincidências acidentais. Sua fórmula é exata para tempos mortos fixos e iguais nas duas vias, como no caso do presente trabalho.

Sob essas considerações, a taxa de coincidências corrigida para coincidências espúrias será exatamente<sup>[5]</sup>:

$$N_c = \frac{[N_c'(\rho_1 e^{\rho_1 \tau} - \rho_2 e^{\rho_2 \tau})]}{[\rho_1 e^{\rho_1 \tau} e^{(\rho_2 - \rho_1)(\tau_r - \delta)} - \rho_2 e^{\rho_2 \tau} e^{(\rho_1 - \rho_2)(\tau_r + \delta)} + \frac{N_c'}{\rho_1 \rho_2} (e^{\rho_1 \tau} - e^{\rho_2 \tau})]} \quad (3.2)$$

onde

$\tau$  tempo morto das vias beta e gama

$\tau_r$  tempo de resolução

$\delta$  delay mismatch positivo se o pulso chega antes

$$\rho_1 = \frac{N_\beta''}{1 - \tau N_\beta''} - Bg_\beta$$

$$\rho_2 = \frac{N_\gamma''/t}{1 - \tau N_\gamma''/t} - Bg_\gamma$$

$$\rho_1 = 1 - \tau N_\beta'$$

$$\rho_2 = 1 - \tau N_\gamma'$$

$$N_c' = N_c'' - 2\tau_r N_\beta'' N_\gamma''$$

$N_\beta'', N_\gamma'', N_c''$  são as taxas de contagem observadas nas vias beta, gama e coincidência, respectivamente.

### 3.4.3. Decaimento Radioativo

Essa correção é necessária devido ao decaimento radioativo das amostras durante o tempo de medida, sendo essa variação mais sensível para radionuclídeos com meias-vidas curtas. As taxas de desintegração observadas  $N$  são corrigidas por meio da equação 3.3.

$$N_r = N \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}} e^{\lambda(t_m - t_r)} \quad (3.3)$$

onde

$N_r$	taxa de desintegração na data de referência
$N$	taxa de desintegração na data da medida
$t$	tempo de medida
$t_r$	data de referência
$t_m$	data da medida
$\lambda$	constante de decaimento

#### **3.4.4. Radiação de Fundo**

A radiação de fundo é proveniente de eventos externos que incidem no detector, acarretando contagens que não são devidas ao decaimento da amostra.

Essa radiação de fundo é medida sem a presença de fonte no detector, mas mantendo todos os ajustes e condições do sistema. Os contadores registram os eventos nas vias beta, gama e coincidência em uma série de medidas a fim de se obter uma boa estatística, uma vez que essas contagens em geral são muito baixas.

### **3.5. Determinação de Tempo Morto e Tempo de Resolução**

#### **3.5.1. Medida do Tempo Morto nas Vias beta e gama**

O método utilizado para medir-se o tempo morto do sistema de aquisição de dados foi o Método do Pulsador<sup>[20]</sup>, que consiste em utilizar um gerador de pulsos, cuja taxa de contagem é fixa (20.000 cps), e uma fonte radioativa. O tempo morto do sistema pode então ser calculado pela equação

$$\tau = \frac{1}{n_f} \left[ 1 - \left( \frac{n_{fp} - n_f}{n_p} \right)^{1/2} \right] \quad (3.4)$$

onde

- $n_f$       número de contagens da fonte
- $n_p$       número de contagens do pulsador
- $n_{fp}$      número de contagens fonte + pulsador

Fixando-se a taxa do pulsador (Time Mark Generator Tektronic 2901) em  $50\mu\text{s}$ , ou 20.000 cps, e utilizando uma fonte radioativa de  $^{42}\text{K}$  com aproximadamente 12.000 cps, delimitando-se apenas o fótico de 1524 keV, mediu-se as taxas de contagem  $n_f$ ,  $n_p$  e  $n_{fp}$  nas vias beta e gama do sistema.

Os resultados obtidos foram

Via beta:  $\tau = 3,04 \pm 0,17 \mu\text{s}$

Via gama:  $\tau = 2,94 \pm 0,17 \mu\text{s}$

### 3.5.2. Medida do Tempo de Resolução

Conforme já exposto na descrição do método de coincidências, a taxa de coincidências é obtida pela detecção de duas radiações distintas consideradas simultâneas em relação ao tempo de resolução do sistema de detecção, sendo, portanto, considerados coincidentes dois eventos que chegam na via de coincidência em um intervalo de tempo igual ao dobro do tempo de resolução fixado eletronicamente. No entanto, como este intervalo de tempo tem um valor finito, podem ser considerados coincidentes eventos não relacionados. Estes eventos são chamados de coincidências espúrias ou acidentais.

O tempo de resolução pode ser determinado pela contagem da taxa de coincidências acidentais produzidas por fontes não correlacionadas no tempo, por meio da equação<sup>[5]</sup>

$$\tau_r = \frac{n_a}{2n_\beta n_\gamma} \quad (3.5)$$

onde

- $n_a$       número de coincidências acidentais
- $n_\beta$       taxa de contagens na via beta
- $n_\gamma$       taxa de contagens na via gama

A medida foi realizada utilizando uma fonte de  $^{90}\text{Sr}$  e uma de  $^{137}\text{Cs}$ , sendo registrado no canal beta os eventos devidos ao decaimento beta do  $^{90}\text{Sr}$  e no canal gama os fótons emitidos pelo decaimento do  $^{137}\text{Cs}$ .

Variando as taxas de contagem através de discriminação eletrônica na via beta, é possível construir um gráfico, como o apresentado na Figura 3.10, que relaciona as taxas de contagem medidas por meio de uma reta, cujo coeficiente angular permite calcular diretamente o valor do tempo de resolução procurado.

Por meio de um ajuste linear pelo método dos mínimos quadrados, obteve-se o valor

$$\tau_r = 1,026 \pm 0,018 \mu\text{s}$$



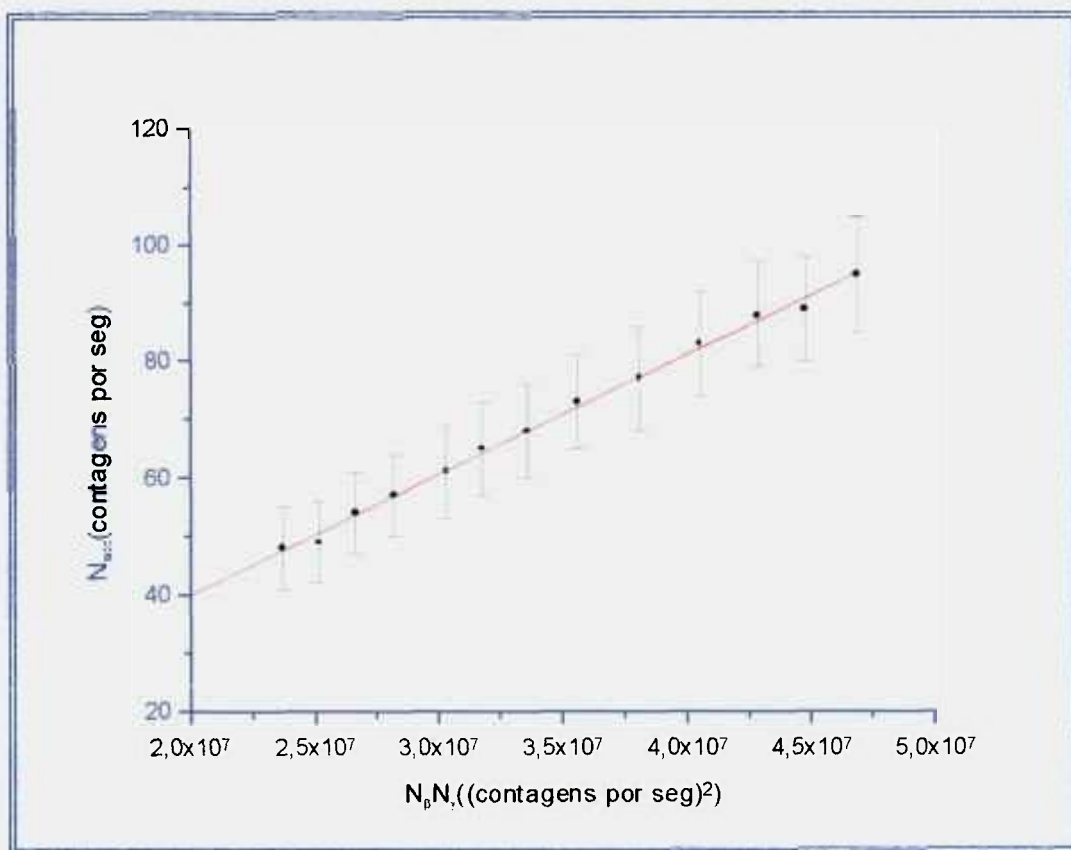


Figura 3.10: Curva para cálculo do tempo de resolução no sistema de coincidências  $4\pi\beta-\gamma$ .

### 3.6. Medida das Amostras

As medidas foram efetuadas, colocando-se as fontes no interior do detector proporcional, após ajuste do sistema eletrônico e estabilização da tensão dos detectores e da circulação de gás no interior do contador proporcional.

Cada uma das fontes foi medida durante um tempo pré determinado, definido pela taxa de desintegração inicial e limitado pelo número de dígitos do contador, para que se tenha uma boa estatística de contagens, sendo que cada série consiste geralmente de, no mínimo, dez medidas individuais.

A variação no parâmetro de ineficiência do detector foi feita repetindo as séries de medidas acrescentando filmes de Collodion e/ou folhas de alumínio de espessuras variadas sobre a fonte, em suas faces superior e inferior, com a intenção de absorver os raios beta de menor energia. A quantidade e espessura dos absorvedores utilizados depende diretamente da energia dos elétrons emitidos, sendo a variação na intensidade dada pela equação

$$I = I_0 e^{-\mu x} \quad (3.6)$$

onde  $x$  é a espessura do material absorvedor e  $\mu$  o coeficiente de absorção, dependente da energia.

O acréscimo dos absorvedores é feito de duas maneiras diferentes:

- para os absorvedores de Collodion, a adesão destes à fonte é definitiva, sendo feita em ambiente com vapor de acetona, o que provoca a aderência dos filmes, evitando a presença de bolhas de ar entre eles, o que causaria heterogeneidade na fonte e na emissão da radiação.
- para os absorvedores de alumínio, foram feitas arandelas absorvedoras, colando folhas de alumínio em arandelas iguais às que servem de suporte aos filmes. Para efetuar as medidas, essas arandelas são sob e sobrepostas à fonte no interior do detector. O

acrécimo na espessura é feito colando-se mais folhas na arandela, tendo o cuidado de deixá-las sempre bem esticadas e bem aderidas umas as outras, para garantir a homogeneidade do conjunto.

Após cada série de medidas, a fonte é retirada do interior do detector, e, mantendo todas as condições iniciais, é feita uma série de medidas da radiação de fundo.

## **4. ESPECTROMETRIA GAMA COM DETECTOR DE HPGe**

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

### **4.1. Detector Semicondutor de Germânio Hiperpuro (HPGe)**

Os fótons emitidos pela fonte radioativa interagem com o cristal semicondutor produzindo pares elétron-lacuna na camada reduzida de uma junção pn do mesmo. Os elétrons e as lacunas são coletados em terminais opostos por causa da voltagem através da junção, da mesma forma que elétrons e íons são coletados em detectores a gás<sup>[25, 26]</sup>. Essa coleta gera pulsos cuja amplitude é proporcional à energia liberada na interação.

Os pulsos coletados no detector são amplificados e distribuídos pelo ADC em um histograma que representa o número de fótons absorvidos em função de suas energias. O resultado final mostrará o espectro gama do radionuclídeo em estudo com um ou mais picos em distribuição aproximadamente normal (ou gaussiana) correspondentes aos fótons que depositaram toda sua energia no interior do cristal, ou seja, os picos de absorção total, montados sobre o espectro contínuo proveniente das interações com perda parcial de energia.

A identificação de um radionuclídeo é feita a partir da calibração do espectro em energia localizando os picos de absorção total. Essa calibração é feita pela medida de várias fontes padrões com energias bem conhecidas, localizando os picos e relacionando suas

centróides (canal) à energia correspondente, construindo uma reta com os parâmetros definidos por meio de um ajuste linear.

#### **4.2. Arranjo Experimental**

O sistema eletrônico para as medidas no espectrômetro de HPGe é apresentado na Figura 4.1.

O detector de HPGe utilizado é do tipo coaxial, com volume sensível de  $99,7 \text{ cm}^3$ , área sensível de  $20,6 \text{ cm}^2$ , diâmetro de 51,2 mm e comprimento de 50,2 mm. Junto ao cristal está posicionado o pré-amplificador e o filtro de alta tensão. Para manter a temperatura necessária para o funcionamento do detector, essa peça está montada sobre um “dewar” cheio de nitrogênio líquido, sendo o contato feito por um pequeno cano conhecido como dedo-frio.

Os pulsos provenientes no detector passam pelo amplificador e são registrados no Analisador Multicanal, placa ACE da Ortec, inserida em um microcomputador e gerenciada pelo programa MAESTRO.

Na Figura 4.2 é apresentado um esquema do detector utilizado, com indicação do posicionamento das fontes em relação ao detector. Para minimizar o efeito bremsstrahlung é utilizado um bloco de lucite de 1,6 cm sobre o detector.

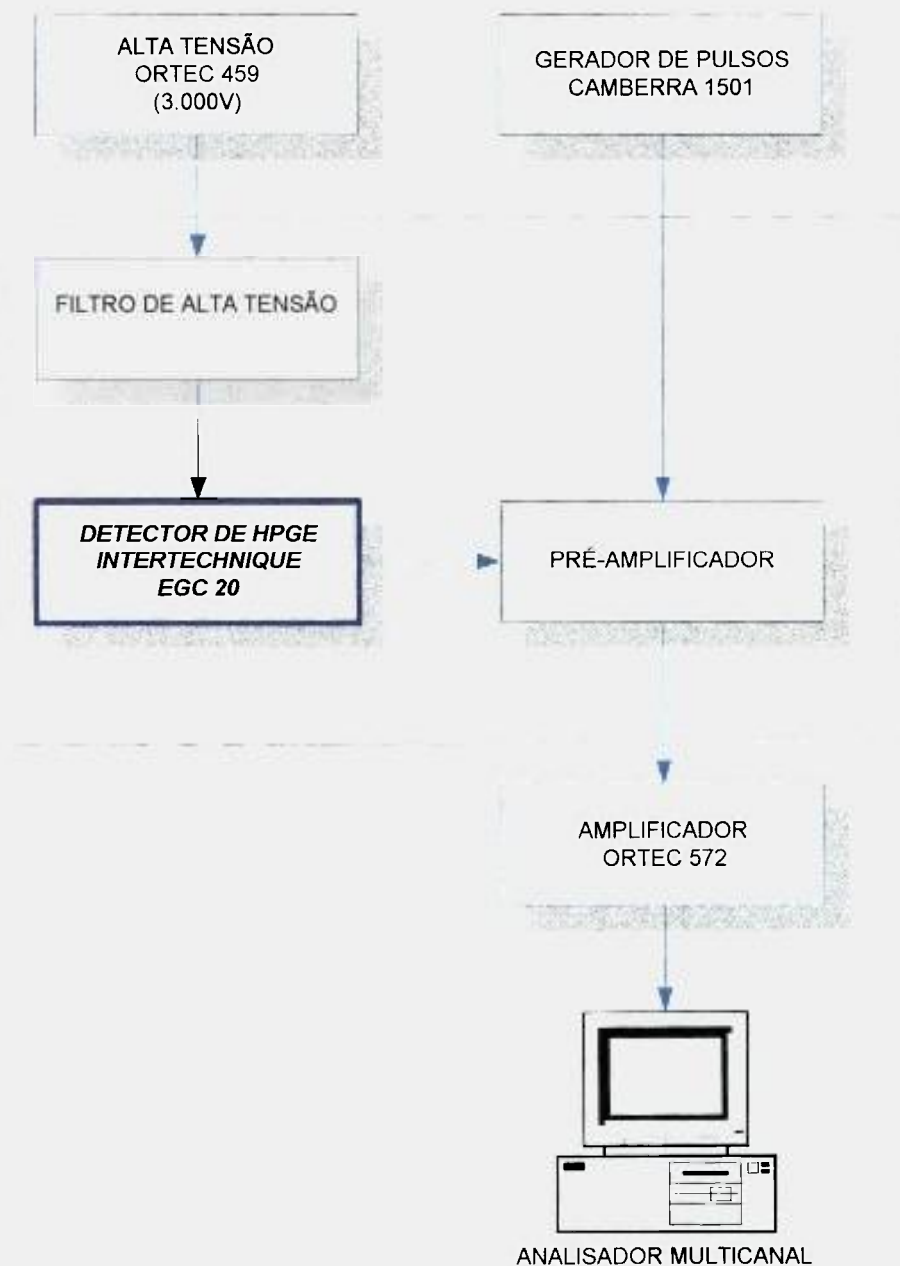


Figura 4.1: Sistema eletrônico para medidas no espectrômetro HPGe.

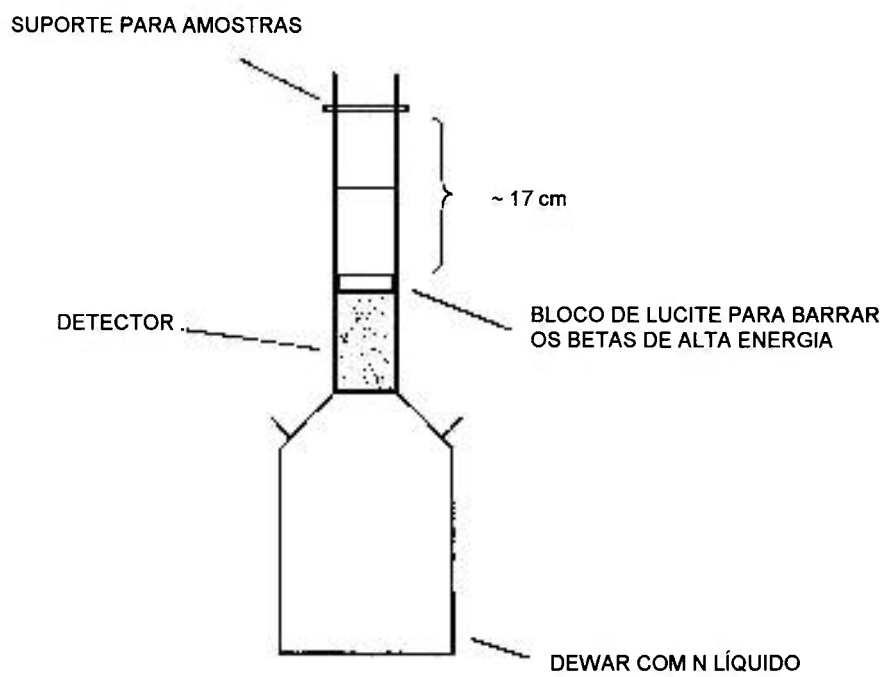


Figura 4.2: Esquema do detector HPGe utilizado.

### 4.3. Curva de Eficiência

Vários fatores podem afetar a qualidade das medidas feitas em espectrômetro gama como preparação das fontes, geometria do arranjo experimental, etc. Entretanto a precisão dessas medidas depende invariavelmente da precisão da curva de calibração da eficiência em função da energia e também da precisão dos parâmetros de decaimento dos núclídeos utilizados, sejam aqueles referentes aos padrões, seja aquele em estudo.

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

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

A calibração em eficiência do espectrômetro é feita por meio da medida de fontes padrões com atividade, energia e intensidade gama bem conhecidas e meia-vida longa o bastante para não interferir na taxa de contagem obtida. A eficiência é determinada pela equação 4.1.

$$\varepsilon(E_{\gamma_i}) = \frac{S(E_{\gamma_i})}{Ap(E_{\gamma_i})Tf_{\tau}f_a f_g} \quad (4.1)$$

onde

$\varepsilon(E_{\gamma_i})$	eficiência para o i-ésimo gama de energia E
$S(E_{\gamma_i})$	área sob o pico de absorção total do i-ésimo gama de energia E
A	atividade absoluta da fonte na data da medida
T	tempo de medida
$f_{\tau}$	fator de correção para tempo morto



- $f_a$  fator de atenuação  
 $f_g$  fator geométrico de correção  
 $p(E_{\gamma_i})$  probabilidade de emissão do i-ésimo gama de energia E

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

$$\ln \varepsilon(E)_{\gamma_i} = \sum_{j=0}^n c_j (\ln E_{\gamma_i})^j \quad (4.2)$$

onde

- $c_j$  coeficientes do ajuste  
 $n$  grau do polinômio ajustado

A área sob o fotopico de absorção total é determinada por integração numérica<sup>[26]</sup> de acordo com a equação<sup>[27]</sup>:

$$S(E_{\gamma}) = \sum_{K_2+1}^{K_3-1} C_i - S_B F_K \quad (4.3)$$

onde

- $C_i$  contagem no canal i  
 $F_K$  fator que leva em consideração o número de canais do pico de absorção total e o número de canais da região de fundo  
 $S_B$  área do espectro da radiação de fundo dada por<sup>[27]</sup>

$$S_B = \sum_{K_1}^{K_2} C_i + \sum_{K_3}^{K_4} C_i \quad (4.4)$$

- $K_i$  canais considerados na soma, dados por

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

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

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

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

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

#### **4.4. Correções Aplicadas**

##### **4.4.1. Fator Geométrico e de Atenuação**

Considerando-se que foram utilizadas soluções preparadas em ampolas de vidro semelhantes e com soluções aquosas de mesmo volume, os fatores de correção para efeito geométrico e de atenuação foram considerados iguais a 1, introduzindo-se apenas as incertezas devidas à variação na espessura do vidro das ampolas e na altura do líquido utilizado, sendo estas incertezas fornecidas diretamente no programa para cálculo da atividade em função da eficiência (UNITGAM<sup>[27]</sup>).

##### **4.4.2. Tempo Morto**

O fator de correção para tempo morto é determinado pelo método do pulsador, efetuado durante a medida das amostras.

Um pulsador envia pulsos ao sistema eletrônico a intervalos de tempo regulares, com frequência conhecida (60 hertz) juntamente com os pulsos enviados pelo detector,

sendo seu pico posicionado no final do espectro para não interferir na medida. O fator de correção é dado pela equação

$$f_{\tau} = \frac{S_{pm}}{S_{pr}} \quad (4.6)$$

onde

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

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

## **5. ANÁLISE DE DADOS E RESULTADOS OBTIDOS**

### **5.1. Medida do $^{88}\text{Y}$ no sistema de coincidências $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$**

#### **5.1.1. Preparação de Amostras**

Para a padronização do  $^{88}\text{Y}$  foi utilizada uma alíquota de uma matriz solução, adquirida da Amersham International PLC, diluída em HCl 0,16 N para a preparação das fontes.

Desta solução foram preparadas 6 fontes em substrato de Collodion para as medidas no sistema de coincidências, e também ampolas e fontes em substrato de polietileno (0,4mm) seladas a quente para as medidas no espectrômetro de HPGe.

As fontes em Collodion foram preparadas de acordo com o procedimento descrito no item 3.3.

#### **5.1.2. Medida da taxa de desintegração do $^{88}\text{Y}$**

A padronização do  $^{88}\text{Y}$  no sistema de coincidências  $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$  foi feita medindo-se os raios X e elétrons Auger provenientes do processo de captura eletrônica no contador proporcional  $4\pi$  em coincidência com os raios  $\gamma$  de 898,05 keV.

O parâmetro  $N_c/N_\gamma$  foi medido no intervalo de 38 a 17% pela adição de absorvedores externos de Collodion perfazendo um total de 13 medidas. O tempo de medida variou de 2000 a 4000 segundos.

Na Figura 5.1 é apresentado um espectro típico obtido em Analisador Multicanal dos raios  $\gamma$  medidos. A região em vermelho destaca o pico de absorção gama de 898,05 keV selecionado.

As medidas foram analisadas pelo programa DILUI<sup>[28]</sup>, desenvolvido no LMN em linguagem Basic, determinando a atividade das fontes e a eficiência dos detectores, aplicando as correções para radiação de fundo, tempo morto, tempo de resolução e decaimento, de acordo com os métodos descritos no Capítulo 3.

Na Tabela 5.1 são apresentados a razão das contagens por unidade de massa, o parâmetro de eficiência e o parâmetro de ineficiência com as respectivas incertezas.

Na Figura 5.2 é apresentada a curva obtida de  $\frac{N_{A,x}N_\gamma}{N_c}$  versus  $\frac{(1-N_c/N_\gamma)}{N_c/N_\gamma}$ . Os pontos cheios correspondem aos dados experimentais com as respectivas barras de erros e a linha contínua corresponde à reta ajustada. O ajuste foi feito pelo método de mínimos quadrados pelo programa LINFIT<sup>[30]</sup> desenvolvido no laboratório em linguagem FORTRAN e que utiliza a metodologia de análise de covariâncias.

Na Tabela 5.2 são apresentados as incertezas parciais na razão das contagens por unidade de massa e os fatores de correlação considerados no ajuste.

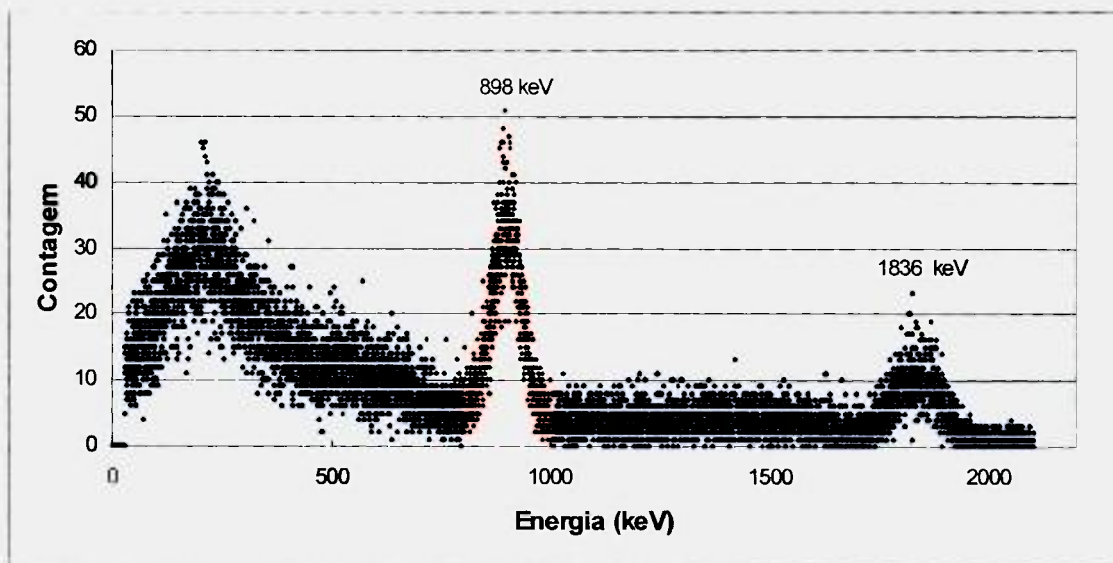


Figura 5.1: Espectro do  $^{88}\text{Y}$  registrados no multicanal para a via gama.

Tabela 5.1. Variação da eficiência do detector proporcional para o  $^{88}\text{Y}$ .

Medida	$N_{X,A}N_{\gamma}/N_c$ ( $\times 10^5$ cps $\text{g}^{-1}$ )	$N_c/N_{\gamma}$	$(1-N_c/N_{\gamma})/N_c/N_{\gamma}$
1	$2,255 \pm 0,009$	$0,379 \pm 0,003$	$1,638 \pm 0,001$
2	$2,276 \pm 0,012$	$0,366 \pm 0,004$	$1,727 \pm 0,002$
3	$2,255 \pm 0,014$	$0,362 \pm 0,005$	$1,178 \pm 0,003$
4	$2,285 \pm 0,015$	$0,310 \pm 0,006$	$2,219 \pm 0,002$
5	$2,263 \pm 0,015$	$0,283 \pm 0,005$	$2,527 \pm 0,002$
6	$2,285 \pm 0,010$	$0,273 \pm 0,003$	$2,661 \pm 0,001$
7	$2,276 \pm 0,009$	$0,246 \pm 0,003$	$3,055 \pm 0,001$
8	$2,279 \pm 0,011$	$0,207 \pm 0,003$	$3,826 \pm 0,001$
9	$2,294 \pm 0,014$	$0,204 \pm 0,005$	$3,901 \pm 0,130$
10	$2,309 \pm 0,015$	$0,195 \pm 0,005$	$4,114 \pm 0,129$
11	$2,335 \pm 0,021$	$0,173 \pm 0,007$	$4,769 \pm 0,160$
12	$2,299 \pm 0,017$	$0,165 \pm 0,007$	$5,032 \pm 0,154$
13	$2,311 \pm 0,019$	$0,165 \pm 0,007$	$5,039 \pm 0,141$

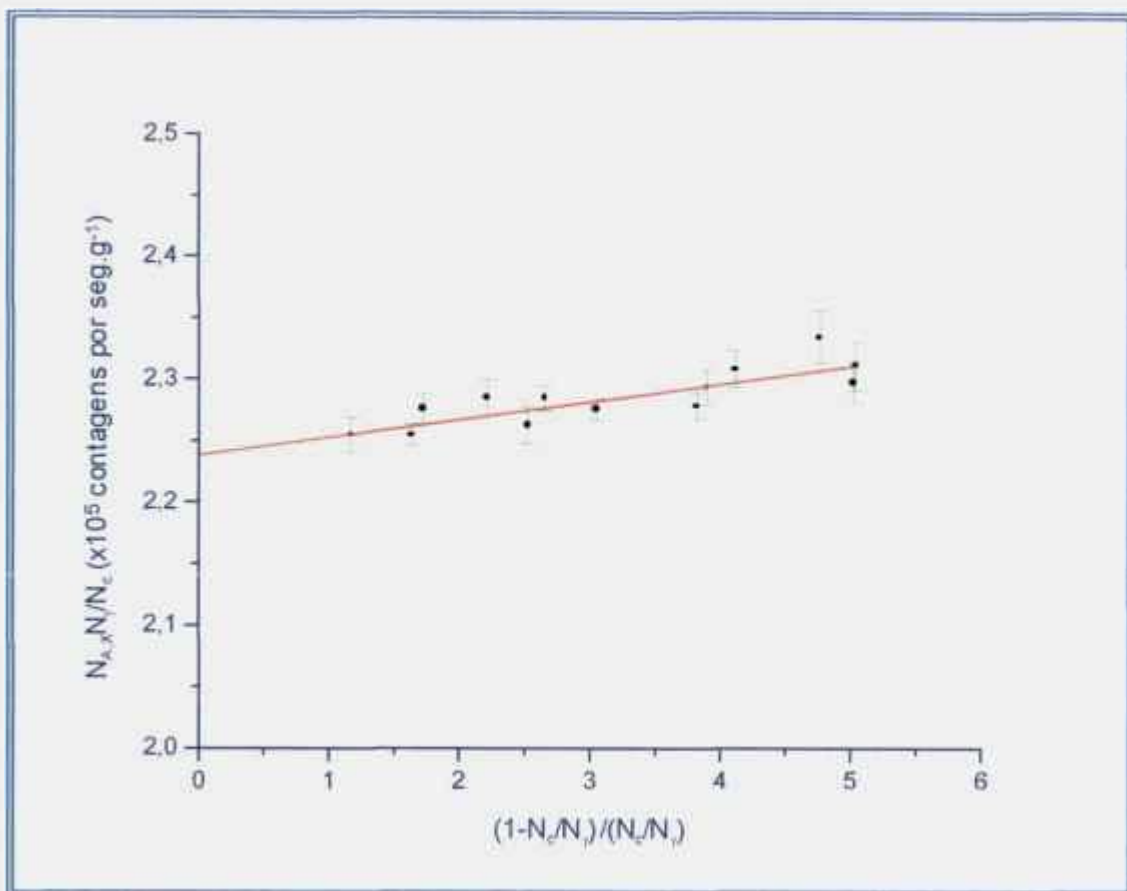


Figura 5.2: Curva de extrapolação da eficiência para o  $^{88}\text{Y}$ .

**Tabela 5.2. Incertezas parciais consideradas no ajuste da curva de extrapolação para o  $^{88}\text{Y}$ .**

Medida	$\sigma_{\text{Bg}\gamma}(\%)$	$\sigma_m(\%)$	$\sigma_{\text{estat}}(\%)$	$\sigma_{\text{correl}}(\%)$	$\sigma_T(\%)$
1	0,10	0,12	0,25	0,41	0,02
2	0,08	0,12	0,39	0,40	0,02
3	0,10	0,12	0,46	0,43	0,02
4	0,07	0,12	0,53	0,45	0,02
5	0,11	0,12	0,52	0,48	0,02
6	0,05	0,12	0,31	0,36	0,02
7	0,08	0,12	0,28	0,48	0,02
8	0,08	0,12	0,36	0,58	0,02
9	0,04	0,12	0,49	0,53	0,02
10	0,10	0,12	0,50	0,54	0,02
11	0,08	0,12	0,75	0,72	0,02
12	0,08	0,12	0,60	0,62	0,02
13	0,06	0,12	0,70	0,61	0,02
Correlação	1	1	0	0	1

Onde:

$\sigma_{\text{Bg}\gamma}$	Incerteza na radiação de fundo da via gama
$\sigma_{\text{estat}}$	Incerteza estatística nas contagens
$\sigma_{\text{correl}}$	Incerteza na correlação entre as taxas de contagem X-A, $\gamma$ e coincidências
$\sigma_T$	Incerteza no tempo de medida
$\sigma_{\text{massa}}$	Incerteza na determinação da massa da fonte
fator de correlação	1 = correlacionado, 0 = não correlacionado



**Tabela 5.3. Parâmetros do ajuste da curva de extrapolação da eficiência para o  $^{88}\text{Y}$  com respectiva matriz de covariância**

Parâmetro		Matriz de covariância dos parâmetros( $\times 10^5$ )	
A	$(2,238 \pm 0,011) \times 10^5$	12,74	
B	$(1,457 \pm 0,038) \times 10^3$	-3,56	1,27

A matriz de correlação dos erros parciais envolvidos é apresentada na Tabela 5.4.

**Tabela 5.4. Matriz de correlação dos erros parciais para ajuste da curva de extrapolação da eficiência para o  $^{88}\text{Y}$  ( $\sigma_{\text{total}}$  em porcentagem)**

Medida	$\sigma_{\text{total}}$	Matriz de correlação												
1	0,51	1000												
2	0,58	78	1000											
3	0,65	76	61	1000										
4	0,71	61	50	47	1000									
5	0,73	70	56	55	44	1000								
6	0,49	79	66	62	52	57	1000							
7	0,57	79	64	61	50	57	66	1000						
8	0,70	65	53	50	41	47	55	53	1000					
9	0,73	51	43	40	34	36	46	43	35	1000				
10	0,75	65	52	51	41	47	53	53	43	34	1000			
11	1,05	43	35	33	27	31	36	35	29	23	29	1000		
12	0,87	52	42	40	33	37	44	42	35	28	35	23	1000	
13	0,94	44	36	34	29	31	38	36	30	25	29	20	24	1000

## 5.2. Medida do $^{42}\text{K}$ no Sistema de Coincidências $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$

### 5.2.1. Produção e Preparação de Amostras

O  $^{42}\text{K}$  foi produzido por meio de amostras com 4 mg de  $\text{K}_2\text{CO}_3$  em pó encapsuladas em tubos de quartzo e irradiadas no reator IEA-R1 em um fluxo de nêutrons térmicos de aproximadamente  $1,5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  por um período de 8 horas.

Este tempo foi determinado a partir da equação

$$A = \frac{mN_0}{M} \sigma \phi a (1 - e^{-\lambda t}) \quad (5.1)$$

onde

- A atividade ao final da irradiação,
- m massa da amostra,
- M peso atômico do elemento,
- $\sigma$  seção de choque da reação,
- $\phi$  fluxo de nêutrons,
- $\lambda$  constante de decaimento,
- t tempo de irradiação,
- $N_0$  número de Avogadro,

considerando-se a porcentagem de K presente na amostra (~56,58%) e a necessidade de se ter uma atividade ao final da irradiação que possibilitasse a utilização da solução por no mínimo três dias, ou de seis a sete meias-vidas.

Após a irradiação, o pó foi dissolvido em 15 ml de HCl 0,16 N e com esta solução preparou-se fontes sobre substratos de Collodion para as medidas no sistema de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  e ampolas para as medidas no espectrômetro HPGe, conforme o procedimento descrito no item 3.3.

### 5.2.2. Medida da taxa de desintegração do $^{42}\text{K}$

Foram medidas um total de 14 fontes, provenientes de três irradiações distintas, selecionando-se na via gama o fotopico de 1524 keV.

Na Figura 5.3 é apresentado um histograma típico proveniente do detector proporcional obtido no Analisador Multicanal para a radiação  $\beta$ . A seta indica a região de discriminação do ruído eletrônico.

Na Figura 5.4 é apresentado um espectro típico proveniente do detector NaI(Tl) obtido no Analisador Multicanal para a radiação gama. As setas delimitam a região do pico de absorção total utilizado na medida de coincidência que compreende o intervalo de energia de 1401 a 1667 keV.

A variação da eficiência  $\beta$  foi de 99,7 a 97,9 % obtida pelo uso de absorvedores externos de Collodion metalizado com ouro (com espessura de  $20 \mu\text{g cm}^{-2}$ ) e alumínio (com espessura de  $200 \mu\text{g cm}^{-2}$ ). Estes foram acrescidos às fontes um a um, seguindo o procedimento descrito no item 3.6; para cada absorvedor acrescido efetuou-se uma série de medidas.

Os dados de cada medida foram analisados pelo programa DILUI<sup>[28]</sup>, determinando a atividade das fontes e a eficiência dos detectores, fazendo as correções para radiação de fundo, tempo morto, tempo de resolução e decaimento, de acordo com os modelos descritos no Capítulo 3.

A atividade absoluta das soluções foi determinada pela técnica de extrapolação linear da eficiência para cada uma das três irradiações.

Nas Tabelas 5.5, 5.6 e 5.7 são apresentados os valores das taxas de contagem por unidade de massa, parâmetro de eficiência e parâmetro de ineficiência obtidos para cada irradiação com respectivas incertezas.

Nos gráficos das Figuras 5.5, 5.6 e 5.7 são apresentadas as curvas obtidas. Os pontos cheios correspondem aos dados experimentais com as respectivas barras de erro e a linha contínua corresponde à reta ajustada.

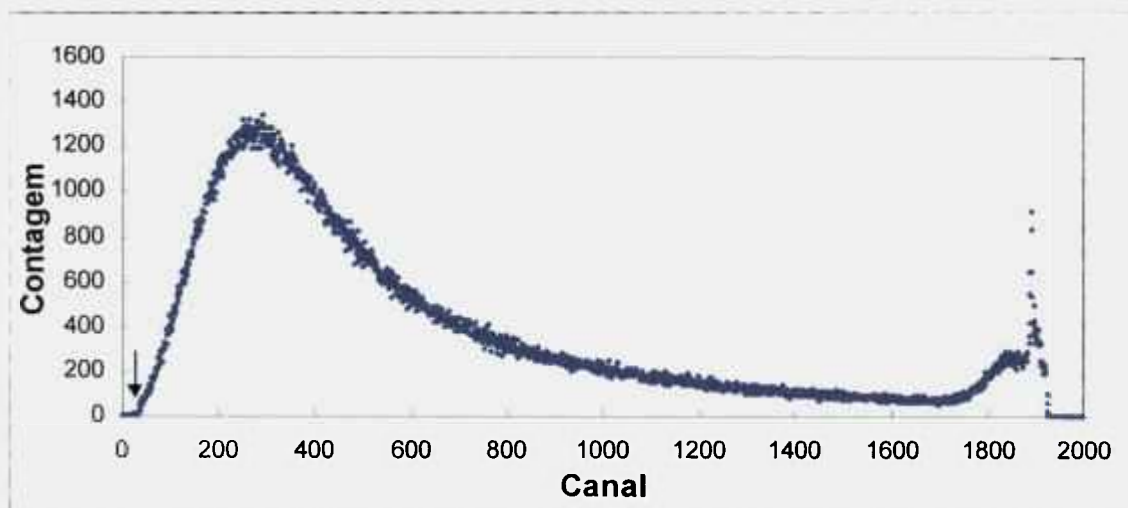


Figura 5.3: Histograma do  $^{42}\text{K}$  registrado no multicanal para a via beta.

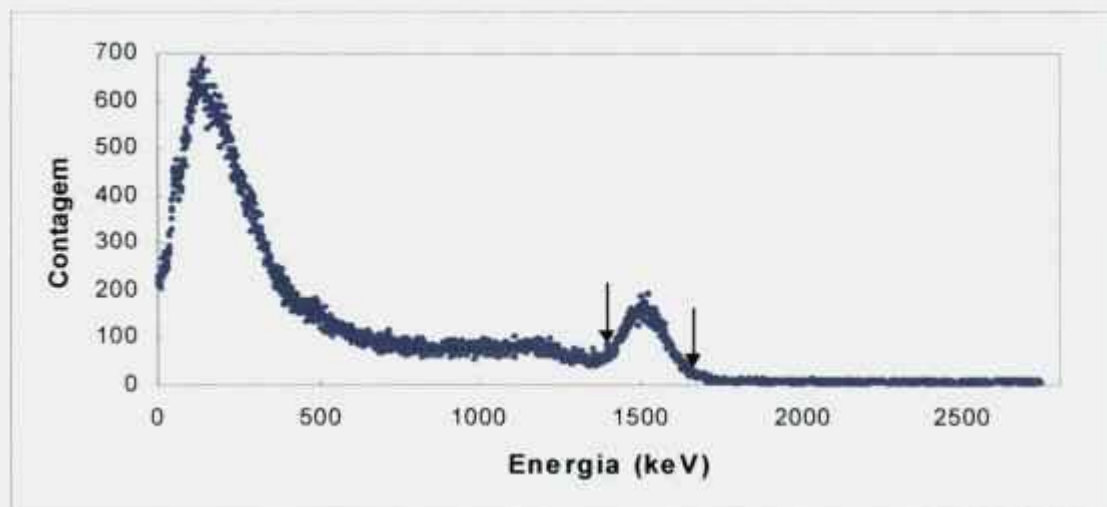


Figura 5.4: Espectro do  $^{42}\text{K}$  registrado no multicanal para a via gama. A janela  $\gamma$  foi escolhida delimitando o pico mais a direita do espectro, correspondente ao fotopico de 1524,7 keV.

**Tabela 5.5: Variação na atividade e eficiência com a adição de absorvedores externos – Primeira irradiação**

<b>Medida</b>	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$ ( $\times 10^5$ cps $g^{-1}$ )	$N_c/N_{\gamma}$	$(1-N_c/N_{\gamma})/N_c/N_{\gamma}$
1	8,796 $\pm$ 0,101	0,954 $\pm$ 0,005	0,0472
2	8,709 $\pm$ 0,109	0,965 $\pm$ 0,008	0,0359
3	8,554 $\pm$ 0,101	0,984 $\pm$ 0,008	0,0162
4	8,496 $\pm$ 0,093	0,989 $\pm$ 0,007	0,0112
5	8,584 $\pm$ 0,068	0,983 $\pm$ 0,007	0,0167
6	8,516 $\pm$ 0,037	0,995 $\pm$ 0,004	0,0048
7	8,482 $\pm$ 0,051	0,981 $\pm$ 0,007	0,0189
8	8,474 $\pm$ 0,037	0,990 $\pm$ 0,005	0,0100
9	8,592 $\pm$ 0,044	0,993 $\pm$ 0,004	0,0073
10	8,494 $\pm$ 0,033	0,993 $\pm$ 0,003	0,0072
11	8,498 $\pm$ 0,041	0,991 $\pm$ 0,003	0,0085
12	8,538 $\pm$ 0,051	0,987 $\pm$ 0,003	0,0129
13	8,648 $\pm$ 0,043	0,939 $\pm$ 0,003	0,0645
14	8,855 $\pm$ 0,080	0,892 $\pm$ 0,006	0,1210

**Tabela 5.6: Variação na atividade e eficiência com a adição de absorvedores externos – Segunda irradiação**

Medida	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$ ( $\times 10^5$ cps g $^{-1}$ )	$N_c/N_{\gamma}$	$(1-N_c/N_{\gamma})/ N_c/N_{\gamma}$
1	1,128 $\pm$ 0,011	0,989 $\pm$ 0,003	0,0102
2	1,121 $\pm$ 0,016	0,995 $\pm$ 0,011	0,0049
3	1,127 $\pm$ 0,012	0,990 $\pm$ 0,007	0,0100
4	1,124 $\pm$ 0,010	0,993 $\pm$ 0,005	0,0071
5	1,130 $\pm$ 0,009	0,986 $\pm$ 0,004	0,0138
6	1,131 $\pm$ 0,006	0,979 $\pm$ 0,005	0,0206
7	1,126 $\pm$ 0,005	0,984 $\pm$ 0,005	0,0158
8	1,126 $\pm$ 0,004	0,984 $\pm$ 0,004	0,0159
9	1,122 $\pm$ 0,004	0,988 $\pm$ 0,004	0,0118
10	1,127 $\pm$ 0,003	0,983 $\pm$ 0,004	0,0175
11	1,128 $\pm$ 0,003	0,984 $\pm$ 0,004	0,0155
12	1,125 $\pm$ 0,004	0,987 $\pm$ 0,004	0,0133
13	1,130 $\pm$ 0,005	0,983 $\pm$ 0,004	0,0172
14	1,126 $\pm$ 0,003	0,986 $\pm$ 0,003	0,0134
15	1,127 $\pm$ 0,003	0,985 $\pm$ 0,003	0,0152

**Tabela 5.7: Variação na atividade e eficiência com a adição de absorvedores externos – Terceira irradiação**

<b>Medida</b>	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$ ( $\times 10^5$ cps g <sup>-1</sup> )	$N_c/N_{\gamma}$	$(1-N_c/N_{\gamma})/ N_c/N_{\gamma}$
1	9,498 ± 0,053	0,989 ± 0,005	0,0104
2	9,588 ± 0,057	0,991 ± 0,006	0,0085
3	9,595 ± 0,092	0,992 ± 0,007	0,0080
4	9,563 ± 0,101	0,993 ± 0,007	0,0070
5	9,532 ± 0,051	0,994 ± 0,004	0,0052
6	9,585 ± 0,050	0,986 ± 0,004	0,0140
7	9,600 ± 0,056	0,984 ± 0,004	0,0162
8	9,562 ± 0,038	0,989 ± 0,004	0,0103
9	9,510 ± 0,035	0,995 ± 0,004	0,0051
10	9,568 ± 0,027	0,991 ± 0,005	0,0092
11	9,575 ± 0,039	0,991 ± 0,004	0,0087
12	9,569 ± 0,031	0,992 ± 0,004	0,0078
13	9,598 ± 0,023	0,990 ± 0,003	0,0094
14	9,538 ± 0,036	0,997 ± 0,003	0,0022

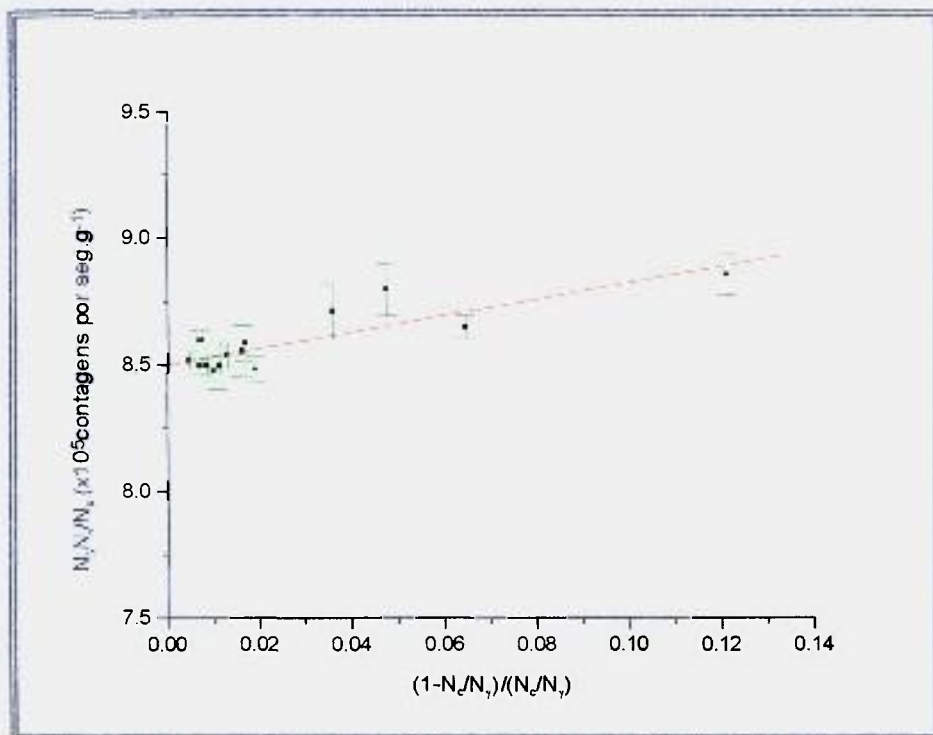


Figura 5.5: Curva de extrapolação da eficiência para o  $^{42}\text{K}$  – primeira irradiação

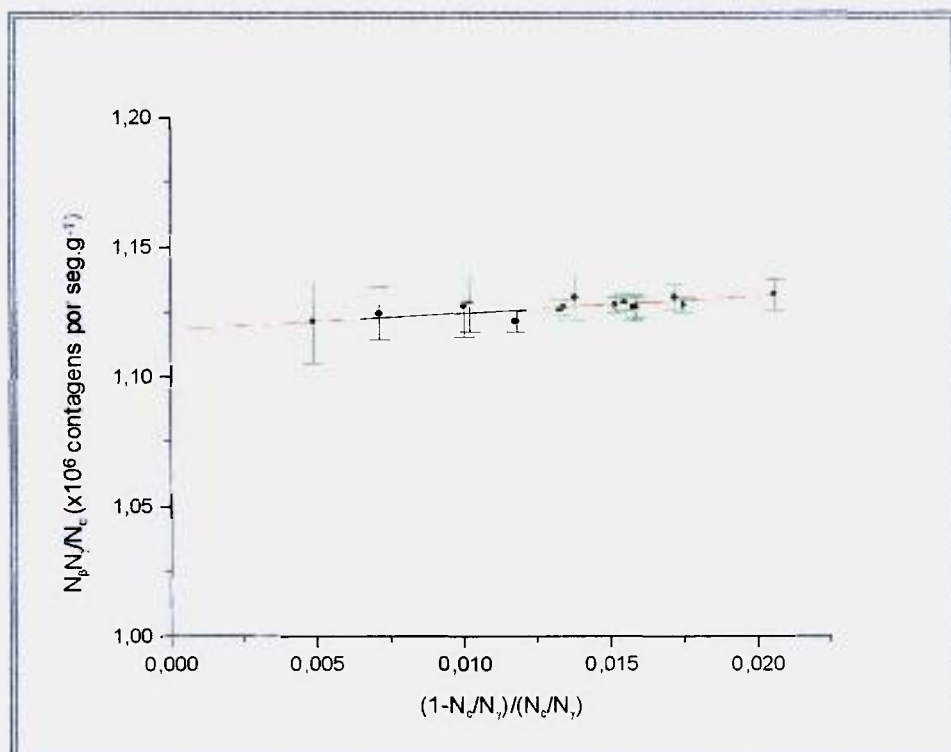


Figura 5.6: Curva de extrapolação da eficiência para o  $^{42}\text{K}$  – segunda irradiação



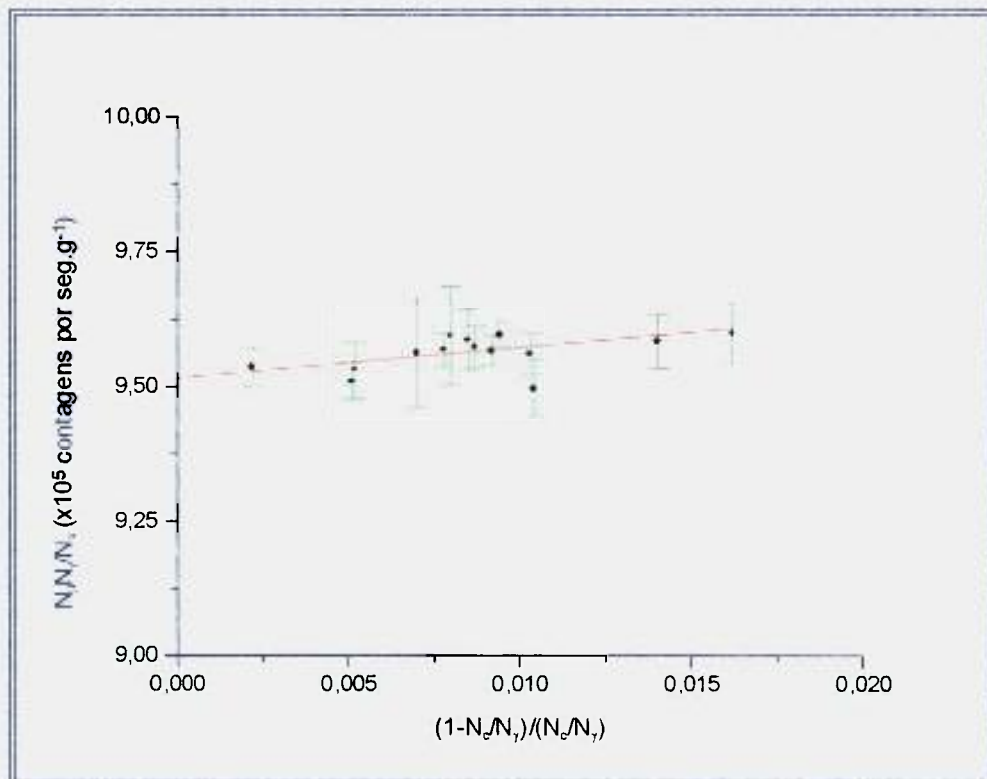


Figura 5.7: Curva de extrapolação da eficiência para o  $^{42}\text{K}$  – terceira irradiação

Nas Tabelas 5.8, 5.9 e 5.10 são apresentados os erros parciais utilizados no ajuste; foram considerados erros da ordem de  $10^{-4}$  ou maior, sendo desprezados os valores inferiores a estes por não influírem no cálculo de modo significativo.

Nas Tabelas 5.11 a 5.16 são apresentados os parâmetros do ajuste com sua respectiva matriz de correlação e a matriz de covariância dos erros parciais considerados no ajuste para cada uma das três irradiações.

**Tabela 5.8: Incertezas parciais para o ajuste da curva de extrapolação da eficiência do  $^{42}\text{K}$  – Primeira irradiação**

Medida	$\sigma_{\text{BG}\gamma}(\%)$	$\sigma_{\text{estat}}(\%)$	$\sigma_{\text{correl}}(\%)$	$\sigma_{\text{corr.dec}}(\%)$	$\sigma_{\text{massa}}(\%)$
1	0,57	0,58	0,23	0,11	0,04
2	0,56	0,68	0,19	0,11	0,04
3	0,51	0,67	0,12	0,11	0,04
4	0,58	0,50	0,09	0,11	0,04
5	0,39	0,39	0,09	0,10	0,04
6	0,16	0,20	0,04	0,01	0,18
7	0,42	0,16	0,07	0,06	0,09
8	0,21	0,16	0,06	0,02	0,18
9	0,22	0,24	0,07	0,02	0,18
10	0,24	0,20	0,06	0,03	0,19
11	0,25	0,18	0,08	0,03	0,19
12	0,26	0,28	0,09	0,03	0,19
13	0,26	0,18	0,24	0,03	0,19
14	0,27	0,57	0,33	0,03	0,19
Correlação	0	0	0	1	1

Onde :

$\sigma_{\text{BG}\gamma}$  Incerteza na radiação de fundo da via gama

$\sigma_{\text{estat}}$  Incerteza estatística

$\sigma_{\text{correl}}$  Incerteza na correlação entre as taxas de contagem das vias beta, gama e coincidência

$\sigma_{\text{corr.dec}}$  Incerteza devido à correção para esquema de decaimento

$\sigma_{\text{massa}}$  Incerteza na determinação da massa da fonte

**Tabela 5.9: Incertezas parciais para o ajuste da curva de extrapolação da eficiência do  $^{42}\text{K}$  – Segunda irradiação**

<b>Medida</b>	$\sigma_{BG\gamma}(\%)$	$\sigma_{estat}(\%)$	$\sigma_{correl}(\%)$	$\sigma_{corr.dec}(\%)$	$\sigma_{massa}(\%)$
1	0,57	0,43	0,13	0,14	0,02
2	0,53	0,95	0,10	0,14	0,02
3	0,72	0,39	0,10	0,14	0,02
4	0,49	0,46	0,08	0,10	0,04
5	0,46	0,32	0,10	0,09	0,04
6	0,20	0,35	0,10	0,07	0,07
7	0,17	0,28	0,08	0,07	0,07
8	0,18	0,19	0,08	0,06	0,07
9	0,18	0,19	0,07	0,06	0,07
10	0,16	0,11	0,08	0,06	0,07
11	0,16	0,14	0,06	0,06	0,07
12	0,14	0,17	0,07	0,06	0,07
13	0,21	0,26	0,07	0,06	0,08
14	0,11	0,12	0,06	0,03	0,14
15	0,12	0,09	0,06	0,03	0,13
<b>Correlação</b>	0	0	0	1	1

**Tabela 5.10: Incertezas parciais para o ajuste da curva de extrapolação da eficiência do  $^{42}\text{K}$  – Terceira irradiação**

<b>Medida</b>	$\sigma_{\text{BG}\gamma}(\%)$	$\sigma_{\text{estat}}(\%)$	$\sigma_{\text{correl}}(\%)$	$\sigma_{\text{corr.dec}}(\%)$	$\sigma_{\text{massa}}(\%)$
1	0,25	0,29	0,09	0,10	0,04
2	0,31	0,27	0,06	0,10	0,04
3	0,30	0,64	0,09	0,09	0,04
4	0,42	0,62	0,09	0,09	0,04
5	0,30	0,22	0,06	0,07	0,06
6	0,28	0,23	0,09	0,07	0,06
7	0,39	0,18	0,08	0,07	0,06
8	0,18	0,19	0,07	0,06	0,06
9	0,18	0,17	0,05	0,06	0,06
10	0,15	0,12	0,04	0,06	0,06
11	0,14	0,25	0,06	0,06	0,06
12	0,14	0,16	0,05	0,06	0,06
13	0,2	0,10	0,06	0,06	0,06
14	0,19	0,16	0,04	0,03	0,10
<b>Correlação</b>	0	0	0	1	1

**Tabela 5.11: Parâmetros do ajuste da curva de extrapolação da eficiência do  $^{42}\text{K}$  com respectiva matriz de covariância – Primeira irradiação**

	Parâmetro( $\times 10^5$ )	Matriz de covariância dos parâmetros( $\times 10^7$ )	
A	$8,490 \pm 0,013$	0,18	
B	$3,029 \pm 0,430$	-2,8	185

**Tabela 5.12: Matriz de correlação dos parâmetros do ajuste da curva de extrapolação da eficiência para o  $^{42}\text{K}$  - Primeira irradiação**

	$\sigma_{\text{total}}$	Matriz de correlação													
1	0,85	1000													
2	0,91	18	1000												
3	0,86	19	18	1000											
4	0,78	21	19	20	1000										
5	0,57	26	24	26	28	1000									
6	0,32	0	0	0	0	0	1000								
7	0,47	0	0	0	0	0	0	1000							
8	0,33	0	0	0	0	0	0	0	1000						
9	0,38	0	0	0	0	0	0	0	266	1000					
10	0,31	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1000				
11	0,37	0	0	0	0	0	0	0	0	0	317	1000			
12	0,44	0	0	0	0	0	0	0	0	0	270	228	1000		
13	0,44	0	0	0	0	0	0	0	0	0	268	226	192	1000	
14	0,74	0	0	0	0	0	0	0	0	0	160	135	115	114	1000





### 5.3. Determinação da Curva de Calibração do Espectrômetro HPGe

A curva de calibração em eficiência de pico do espectrômetro gama para ampolas foi determinada utilizando-se soluções padrões de  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{133}\text{Ba}$  e  $^{152}\text{Eu}$  previamente calibradas no laboratório<sup>[29]</sup> e uma ampola de  $^{88}\text{Y}$  calibrada como descrito no capítulo 2 deste trabalho, no intervalo de energia de 121 a 1836 keV. Na Tabela 5.17 são apresentados os radionuclídeos, meia-vida, energias empregadas, juntamente com a atividade das fontes, respectivas incertezas e data de referência.

Na Figura 5.8 é apresentada a curva de calibração em eficiência versus energia gama. Esta curva foi ajustada por um polinômio de grau quatro do tipo  $y=A_4x^4+A_3x^3+A_2x^2+A_1x+A_0$ , pelo programa LOGFIT<sup>[30]</sup>, considerando os erros parciais em todos os fatores envolvidos (Equação 4.1) e utilizando a metodologia de matriz de covariância. A escolha do grau do polinômio foi baseada no valor do  $\chi^2$  reduzido com 14 graus de liberdade.

Na Tabela 5.18 são apresentados os valores de eficiência, o erro total e os erros parciais com os fatores de correlação. Os parâmetros da curva ajustada e sua respectiva matriz de covariância são apresentados na Tabela 5.19.



**Tabela 5.17: Parâmetros dos radionuclídeos e soluções padrões utilizadas na determinação da curva de calibração em eficiência do espectrômetro gama**

Radionuclídeo	Meia Vida (dias)	Energia (keV)	$I_{\gamma}(\%)^{[35]}$	Atividade (kBq)	Data de Referência
$^{60}\text{Co}$	$1925,5 \pm 0,5$	1173,20	$99,86 \pm 0,02$	$345,0 \pm 2,5$	01/03/93 às 0:00h
		1332,50	$99,98 \pm 0,01$		
$^{88}\text{Y}$	$102,62 \pm 0,02$	898,04	$94,0 \pm 0,3$	$226,4 \pm 1,2$	30/06/95 às 0:00h
		1836,10	$99,36 \pm 0,03$		
$^{133}\text{Ba}$	$3862 \pm 15$	276,40	$7,15 \pm 0,42$	$46,55 \pm 0,60$	01/03/93 às 0:00h
		302,85	$18,30 \pm 0,33$		
		356,02	$61,94 \pm 0,22$		
		383,85	$8,91 \pm 0,32$		
$^{137}\text{Cs}$	$11020 \pm 6$	661,66	$85,1 \pm 0,23$	$521,1 \pm 5,6$	01/03/93 às 0:00h
$^{152}\text{Eu}$	$4933 \pm 11$	121,78	$61,5 \pm 0,06$	$401,3 \pm 6,5$	01/03/93 às 0:00h
		244,70	$7,53 \pm 0,53$		
		344,28	$26,58 \pm 0,41$		
		411,13	$2,24 \pm 0,45$		
		443,96	$3,12 \pm 0,45$		
		778,90	$12,97 \pm 0,46$		
		867,39	$4,21 \pm 0,59$		
		964,05	$14,63 \pm 0,41$		
1112,10	$13,54 \pm 0,44$				
		1408,00	$20,85 \pm 0,43$		

**Tabela 5.18: Eficiência do detector HPGe para cada linha de energia considerada e os erros totais e parciais percentuais com respectivo fator de correlação.**

<b>Energia (keV)</b>	<b>Eficiência</b>	$\sigma_{total}$	$\sigma_{fg}$	$\sigma_{\tau}$	$\sigma_{fat}$	$\sigma_A$	$\sigma_S$	$\sigma_{\gamma}$
121,78	$2,51 \times 10^{-3}$	1,89	0,25	0,36	1,12	1,42	0,13	0,28
244,70	$1,70 \times 10^{-3}$	1,92	0,25	0,36	0,86	1,53	0,36	0,53
276,40	$1,54 \times 10^{-3}$	2,36	0,25	0,36	0,82	1,82	1,10	0,42
302,85	$1,43 \times 10^{-3}$	1,91	0,25	0,36	0,79	1,54	0,58	0,33
344,28	$1,28 \times 10^{-3}$	1,76	0,25	0,36	0,77	1,46	0,17	0,41
356,02	$1,24 \times 10^{-3}$	1,72	0,25	0,36	0,75	1,44	0,31	0,22
383,85	$1,16 \times 10^{-3}$	2,09	0,25	0,36	0,74	1,67	0,86	0,32
411,13	$1,02 \times 10^{-3}$	2,42	0,25	0,36	0,72	1,88	1,18	0,45
443,96	$1,01 \times 10^{-3}$	2,13	0,25	0,36	0,70	1,70	0,87	0,45
661,66	$7,36 \times 10^{-4}$	1,61	0,25	0,36	0,59	1,00	1,00	0,23
778,90	$6,35 \times 10^{-4}$	1,77	0,25	0,36	0,55	1,51	0,38	0,46
867,39	$5,74 \times 10^{-4}$	2,19	0,25	0,36	0,52	1,77	0,93	0,59
898,04	$5,48 \times 10^{-4}$	1,63	0,25	0,36	0,51	1,43	0,28	0,30
964,05	$5,31 \times 10^{-4}$	1,72	0,25	0,36	0,50	1,49	0,37	0,41
1112,10	$4,86 \times 10^{-4}$	1,74	0,25	0,36	0,46	1,51	0,40	0,44
1173,20	$4,64 \times 10^{-4}$	1,54	0,25	0,36	0,45	1,40	0,17	0,02
1332,50	$4,18 \times 10^{-4}$	1,54	0,25	0,36	0,42	1,40	0,18	0,01
1408,00	$3,96 \times 10^{-4}$	1,69	0,25	0,36	0,40	1,49	0,32	0,43
1836,10	$3,03 \times 10^{-4}$	1,58	0,25	0,36	0,36	1,43	0,36	0,03
<b>correlação</b>			1	1	0	1	0	0

Onde:

- $\sigma_{\tau}$  Incerteza no tempo morto obtido pelo programa UNITGAM<sup>[27]</sup>
- $\sigma_{fg}$  Incerteza no fator geométrico obtida por propagação de erros
- $\sigma_{fat}$  Incerteza no fator de atenuação obtida por propagação de erros
- $\sigma_A$  Incerteza na atividade obtida no certificado das fontes padrões
- $\sigma_S$  Incerteza na área determinada pelo programa UNITGAM<sup>[27]</sup>
- $\sigma_{\gamma}$  Incerteza na probabilidade de emissão gama por decaimento

**Tabela 5.19: Parâmetros do ajuste da curva de eficiência do detector HPGe e sua matriz de covariância associada**

Parâmetro	Matriz de covariância dos parâmetros					
$A_0$	$-109,3 \pm 10,2$	103,2				
$A_1$	$67,9 \pm 6,7$	-68,2	45,1			
$A_2$	$-16,4 \pm 1,6$	16,7	-11,1	2,7		
$A_3$	$1,720 \pm 0,178$	-1,8	1,2	-0,3	0,03	
$A_4$	$-0,06 \pm 0,007$	0,07	-0,04	0,01	-0,001	0,00005

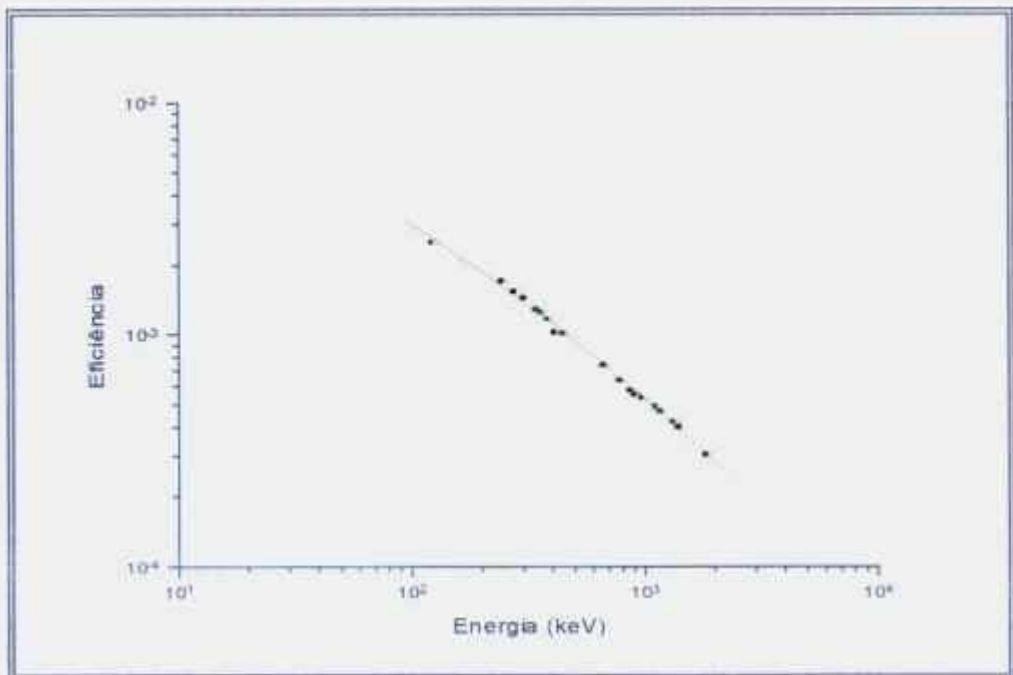


Figura 5.8: Curva de calibração do espectrômetro HPGe para ampolas.

#### 5.4. Resultados da Probabilidade de Emissão gama por Decaimento do $^{42}\text{K}$

A probabilidade de emissão gama foi determinada como descrito no item 1.3 pela equação 1.13.

O tempo de medida de cada espectro foi de 5000 a 50000 segundos, dependendo da atividade da amostra. O tempo de medida da radiação de fundo foi de 50.000 segundos. Na Figura 5.9 é apresentado um espectro do  $^{42}\text{K}$  obtido.

A eficiência foi obtida dos parâmetros da curva de eficiência de pico apresentados na Tabela 5.19.

Na Tabela 5.20 são apresentadas as energias medidas com respectiva eficiência de pico e a taxa de emissão de fótons da fonte para as três irradiações.

As Tabelas 5.21 a 5.28 mostram os valores da probabilidade de emissão gama por decaimento determinados para cada irradiação com respectivos erros parciais e as matrizes de correlação associadas.

O valor médio foi calculado por meio de ajuste pelo método dos mínimos quadrados, utilizando o programa LINFIT<sup>[30]</sup>.

Por meio do espectro do  $^{42}\text{K}$  obtido verificou-se a presença de uma impureza, identificando um pico de 1368 keV do  $^{24}\text{Na}$ . Este pico foi analisado pelo programa UNITGAM<sup>[27]</sup> e sua atividade calculada, resultando em 0,1 % relativamente à atividade do  $^{42}\text{K}$ , sendo então subtraída dos valores obtidos para a atividade absoluta determinada no sistema de coincidências. Não foi possível aguardar o decaimento da impureza antes de efetuar as medidas pois sua meia-vida tem a mesma ordem de grandeza que a meia-vida do  $^{42}\text{K}$ . ( $T_{1/2}$  do  $^{24}\text{Na}$ =14,960 horas<sup>[2]</sup>)

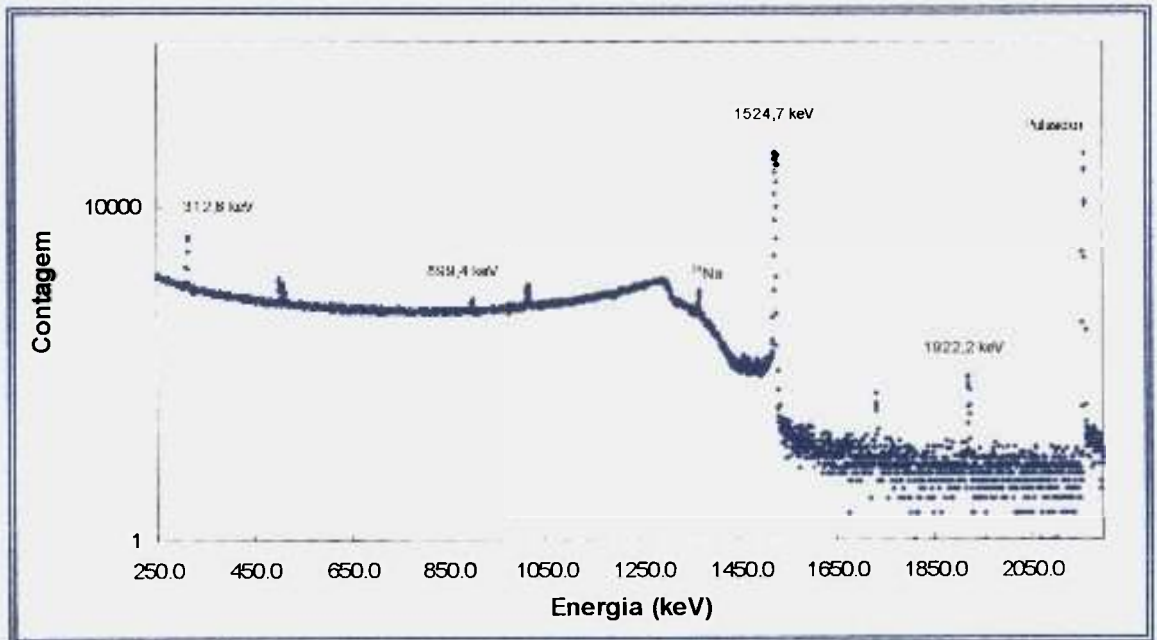


Figura 5.9. Espectro gama do decaimento do  $^{42}\text{K}$  obtido em espectrômetro HPGe, destacando os fotopicos mais intensos e o pico com 1368 keV devido à impureza de  $^{24}\text{Na}$ .

**Tabela 5.20. Valores de  $R(E_\gamma)$  determinados para algumas energias gama do decaimento do  $^{42}\text{K}$ .**

<b>Energia(keV)</b>	<b>Eficiência(<math>\times 10^{-3}</math>)</b>	<b>Irradiação</b>	<b><math>R(E_\gamma)</math></b>
312,6	$13,92 \pm 0,13$	1	$2,65 \times 10^3 \pm 2,69 \%$
		2 a	$3,53 \times 10^3 \pm 1,42 \%$
		2 b	$3,54 \times 10^3 \pm 3,04 \%$
		3 a	$2,98 \times 10^3 \pm 1,31 \%$
		3 b	$2,94 \times 10^3 \pm 3,05 \%$
899,4	$5,682 \pm 0,047$	1	$5,10 \times 10^2 \pm 15,68 \%$
		2 a	$6,18 \times 10^2 \pm 7,46 \%$
		2 b	$6,52 \times 10^2 \pm 19,99 \%$
		3 a	$5,18 \times 10^2 \pm 7,30 \%$
		3 b	$5,73 \times 10^2 \pm 18,10 \%$
1524,7	$3,727 \pm 0,031$	1	$1,52 \times 10^5 \pm 1,31 \%$
		2 a	$2,05 \times 10^5 \pm 1,12 \%$
		2 b	$2,03 \times 10^5 \pm 1,19 \%$
		3 a	$1,72 \times 10^5 \pm 1,03 \%$
		3 b	$1,73 \times 10^5 \pm 1,09 \%$
1922,2	$2,986 \pm 0,028$	2 a	$4,88 \times 10^2 \pm 3,93 \%$
		2 b	$4,68 \times 10^2 \pm 11,45 \%$
		3 a	$3,81 \times 10^2 \pm 4,00 \%$

Obs: Os índices a e b referem-se a diferentes ampolas de uma mesma irradiação.

**Tabela 5.21: Probabilidade de emissão gama para a energia de 312,6 keV do  $^{42}\text{K}$**

<b>Irradiação</b>	<b><math>p(E_\gamma)(\times 10^{-3})</math></b>	<b>Matriz de Correlação</b>				
1	3,12	1000				
2 a	3,16	204	1000			
2 b	3,17	87	239	1000		
3 a	3,13	227	449	191	1000	
3 b	3,10	89	177	76	207	1000
<b>Média</b>		$(3,14 \pm 0,03) \times 10^{-3}$				

**Tabela 5.22: Incertezas parciais consideradas no cálculo do valor médio de  $p(E_\gamma)$  da energia de 312,6 keV do  $^{42}\text{K}$  com fatores de correlação considerados**

<b>Irradiação</b>	<b><math>\sigma_{4\pi}(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_{fg}(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_{fat}(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_S(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_\tau(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_\varepsilon(\%)</math></b>
1	0,16	0,25	0,40	2,34	0,35	0,65
2 a	0,50	0,25	0,40	0,78	0,31	0,65
2 b	0,50	0,25	0,40	2,79	0,34	0,65
3 a	0,18	0,25	0,40	0,72	0,31	0,65
3 b	0,18	0,25	0,40	2,74	0,33	0,65
<b>Correlação</b>	1	1	1	0	0	1

**Tabela 5.23: Probabilidade de emissão gama para a energia de 899,4 keV do  $^{42}\text{K}$**

<b>Irradiação</b>	<b><math>p(E_\gamma)(\times 10^{-4})</math></b>	<b>Matriz de Correlação</b>				
1	6,01	1000				
2 a	5,53	5	1000			
2 b	5,83	2	5	1000		
3 a	5,44	5	10	4	1000	
3 b	6,02	2	4	2	4	1000
<b>Média</b>	$(5,57 \pm 0,26) \times 10^{-4}$					

**Tabela 5.24: Incertezas parciais consideradas no cálculo do valor médio de  $p(E_\gamma)$  da energia de 899,4 keV do  $^{42}\text{K}$  com fatores de correlação considerados**

<b>Irradiação</b>	<b><math>\sigma_{4\pi}(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_{fg}(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_{fat}(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_S(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_r(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_\varepsilon(\%)</math></b>
1	0,16	0,25	0,40	15,63	0,35	0,57
2 a	0,50	0,25	0,40	7,39	0,31	0,57
2 b	0,50	0,25	0,40	19,97	0,34	0,57
3 a	0,18	0,25	0,40	7,23	0,31	0,57
3 b	0,18	0,25	0,40	18,07	0,33	0,57
<b>Correlação</b>	1	1	1	0	0	1



Tabela 5.25: Probabilidade de emissão gama para a energia de 1524,7 keV do  $^{42}\text{K}$ 

Irradiação	$p(E_\gamma)(\times 10^{-1})$	Matriz de Correlação				
		1	2 a	2 b	3 a	3 b
1	1,790	1000				
2 a	1,833	656	1000			
2 b	1,816	608	819	1000		
3 a	1,807	750	702	651	1000	
3 b	1,818	695	651	603	786	1000
<b>Média</b>	$(1,807 \pm 0,014) \times 10^{-1}$					

Tabela 5.26: Incertezas parciais consideradas no cálculo do valor médio de  $p(E_\gamma)$  da energia de 1524,7 keV do  $^{42}\text{K}$  com fatores de correlação considerados

Irradiação	$\sigma_{4\pi}(\%)$	$\sigma_{fg}(\%)$	$\sigma_{fat}(\%)$	$\sigma_S(\%)$	$\sigma_\tau(\%)$	$\sigma_\varepsilon(\%)$
1	0,16	0,25	0,40	0,31	0,35	0,59
2 a	0,50	0,25	0,40	0,11	0,31	0,59
2 b	0,50	0,25	0,40	0,38	0,34	0,59
3 a	0,18	0,25	0,40	0,11	0,31	0,59
3 b	0,18	0,25	0,40	0,34	0,33	0,59
<b>Correlação</b>	1	1	1	0	0	1

**Tabela 5.27: Probabilidade de emissão gama para a energia de 1922,2 keV do  $^{42}\text{K}$**

<b>Irradiação</b>	<b><math>p(E_\gamma)(\times 10^{-4})</math></b>	<b>Matriz de Correlação</b>		
1	4,36	1000		
2 a	4,18	20	1000	
2 b	4,00	42	14	1000
<b>Média</b>	$(4,17 \pm 0,11) \times 10^{-4}$			

**Tabela 5.28: Incertezas parciais consideradas no cálculo do valor médio de  $p(E_\gamma)$  da energia de 1922,2 keV do  $^{42}\text{K}$  com fatores de correlação considerados**

<b>Irradiação</b>	<b><math>\sigma_{4\pi}(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_{fg}(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_{fat}(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_S(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_\tau(\%)</math></b>	<b><math>\sigma_E(\%)</math></b>
1	0,16	0,25	0,40	3,77	0,35	0,65
2 a	0,50	0,25	0,40	11,40	0,31	0,65
2 b	0,50	0,25	0,40	3,84	0,34	0,65
<b>Correlação</b>	1	1	1	0	0	1

Na Tabela 5.29 o resultado de  $p(E_\gamma)$  para a transição de 1524,7 keV obtido neste trabalho é comparado com os dados de outros autores.

**Tabela 5.29: Probabilidade de emissão gama por decaimento do  $^{42}\text{K}$  para a transição de 1524 keV em comparação com outros autores**

Este trabalho	Browne <sup>[36]</sup>	Lagoutine <sup>[21]</sup>	Mackin <sup>[3]</sup>	Miyahara <sup>[1]</sup> e Firestone <sup>[4]</sup>
$0,1807 \pm 0,0014$	$0,188 \pm 0,006$	$0,179 \pm 0,005$	$0,184 \pm 0,005$	$0,1808 \pm 0,0009$

Como pode ser visto, este resultado concorda com os dados da literatura, especialmente com o valor de Miyahara<sup>[1]</sup>, que é também um valor obtido em medida absoluta e é o valor adotado pela Tabela de Radionuclídeos<sup>[4]</sup>.

As probabilidades de emissão gama dos demais fótons emitidos medidas neste trabalho não apresentaram boa estatística por serem de baixa intensidade ou estarem afetadas pelo continuum Compton do pico de 1524,7 keV e também pela interferência dos picos de simples e duplo escape com energias de 502 e 1013 keV, provenientes do processo de produção de pares da interação do gama principal.

Na Tabela 5.30 são comparados os valores das intensidades relativas destes fótons, obtidas neste trabalho, com os dados obtidos por Kawada<sup>[31]</sup>.

Como podemos verificar, nossos resultados são concordantes dentro da incerteza experimental, no entanto uma medida em coincidência  $\gamma$ - $\gamma$ , como desta última referência, seria mais indicada pois eliminaria as interferências citadas.

**Tabela 5.30: Comparação dos resultados da probabilidade de emissão gama para as energias menos intensas do decaimento do  $^{42}\text{K}$  determinados neste trabalho com dados da literatura**

<b>Energia ( keV)</b>	<b>Este trabalho</b>	<b>Kawada<sup>[31]</sup></b>
312,6	$1,732 \pm 0,016$	$1,86 \pm 0,11$
899,4	$0,303 \pm 0,011$	$0,285 \pm 0,014$
1922,2	$0,226 \pm 0,005$	$0,228 \pm 0,022$

## 6. CONCLUSÕES

No presente trabalho foram desenvolvidos os métodos de padronização do  $^{88}\text{Y}$  e  $^{42}\text{K}$  no sistema de coincidências  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  capacitando assim o Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN a produzir fontes padrões desses radionuclídeos.

Principalmente no caso do  $^{88}\text{Y}$  este desenvolvimento é de grande importância pois permite ao Laboratório produzir os seus próprios padrões evitando a importação de fontes calibradas, processo este muito demorado e de custo elevado.

A probabilidade de emissão gama por decaimento para fótons de 1524,7 keV do  $^{42}\text{K}$  foi determinada com boa exatidão, apresentando o resultado de 18,07% com incerteza de 0,7% confirmando o resultado de Miyahara<sup>[1]</sup> e demonstrando que os objetivos inicialmente propostos foram plenamente atingidos.

Uma sugestão que poderia ser incluída em um trabalho futuro é a determinação das probabilidades de emissão gama relativa utilizando um sistema de coincidências  $\gamma\text{-}\gamma$  para eliminar as interferências encontradas no espectro direto e diminuir a incerteza estatística, uma vez que todos os dados encontrados na literatura são referenciados no trabalho de Kawada<sup>[3]</sup> que data de 1970.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. MIYAHARA, H. et al. Precision measurement of emission probability for the 1,52 MeV gamma ray of  $^{42}\text{K}$ . *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, A, 286, p. 519-525, 1990.
2. LAGOUTINE, F.; COURSOLO, N.; LEGRAND, J. *Table of radionucléides*, CEA, 1984.
3. MACKIN, J., LOVE, D. Branching Fraction and Half-Life of Potassium-42. *J. Inorg. Nucl. Chem.*, v. 10, p. 17-22, 1958.
4. FIRESTONE, R.B. and SHIRLEY, V.S. *Table of Isotopes*. 8.ed, 1996.
5. KOSKINAS, M.F. *Desenvolvimento de um sistema de coincidência para a medida absoluta da atividade de radionucléidos empregando detectores de barreira de superfície*. São Paulo, Tese (Doutoramento), Universidade de São Paulo, 1988.
6. BAERG, A.P. Absolute measurement of radioactivity. *Metrologia*, v. 3, n. 4, p. 105-108, 1967.
7. BAERG, A.P. The efficiency extrapolation method in coincidence counting. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 112, p. 143-150, 1973.
8. GERALDO, L.P., and SMITH, D.L., *Least square methods and covariance matrix applied to the relative efficiency calibration of a Ge(Li) detector*. São Paulo, Pub. IPEN 243, 1989.
9. SMITH, D.L. Generation of the covariance matrix for a set of nuclear data produced by collapsing a larger parent set through the weighted averaging of equivalent data points. *Nuclear Instruments and Methods*, A257, p. 361-364, 1987.
10. FIRESTONE, R.B. Analysis of  $\alpha$ ,  $\beta$  and  $\gamma$ -ray emission probabilities. *Nuclear Instruments and Methods*, A286, p. 584-588, 1990.

11. NATIONAL COUNCIL ON RADIATION PROTECTION AND MEASUREMENTS.  
*Handbook of radioactivity measurements procedures*. Report n. 58, Nov. 1978.
12. MANN, W.B., RYTZ, A. SPERNOL, A. Radioactivity Measurements Principles and Practice. *App. Rad. Isotopes*, v. 39, 1988.
13. DEBERTIN, K. and HELMER, R.G. *Gamma and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*, North-Holland, 1988.
14. 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.
15. MOURA, L.P. *Método de coincidência generalizado para a medida absoluta da atividade de radionuclídeos - Aplicação na determinação do coeficiente de conversão interna da transição de 279 keV do Tl-203.*, Campinas, Tese (Doutoramento), Universidade de Campinas, 1969.
16. *Particle counting in radioactivity measurements*. (ICRU, report; 52 ), Nov. 1994.
17. GERALDO, L.P., and SMITH, D.L. Covariance analysis and fitting of germanium gamma-ray detector efficiency calibration data. *Nuclear Instruments and Methods*, A290, p. 499-508, 1990.
18. WILLIAMS, A., CAMPION, P.J. On the relative time distribution of pulses in the  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  coincidence technique. *Int. J. Appl. Rad. Iso.*, vol. 16, p. 555-560, 1965.
19. CAMPION, P.J., *Procedures for accurately diluting and dispersing radioactive solutions*. Bureau International de Poids et Mesures, (Monografie BIPM-1), 1975.
20. BAERG, A. P. Variation on the paired source method of measuring dead time. *Metrologia*, v. 1, n. 3, p. 131-133, 1965.

21. COX, D.R., ISHAM, V. A bivariate point process connected with electronic counters. *Proc. Roy. Soc., A*, 356, p.149-160, 1977.
22. SMITH, D.L. Improved correction formulae for coincidence counting. . *Nuclear Instruments and Methods.*, v. 152, p. 505-519, 1978.
23. SMITH, D.L. Some developments in the Cox-Isham theory to coincidence correction, including the extension to the computer-discrimination method. *Int. J. Appl. Radiat. Instit. Part.*, A, 38(10), p. 813-822, 1987.
24. KNOLL, G.F. *Radiation detection and measurements*. 2. ed., Wiley, 1989.
25. PRICE, W.J. *Nuclear radiation detection*. 2. ed., 1964.
26. KOKTA, L. Determination of peak area. *Nucl. Instrum. Methods.* v. 112, p. 245-251, 1973.
27. DIAS, M.S. Comunicação Pessoal, 1992.
28. KOSKINAS, M. F. Comunicação Pessoal, 1991.
29. FONSECA, K.A., *Medida absoluta da atividade e determinação da taxa de emissão gama por decaimento do <sup>126</sup>I*, São Paulo, Dissertação de Mestrado, Universidade de São Paulo, 1997.
30. DIAS, M.S. Comunicação Pessoal, 1997.
31. KAWADA, K et all. Gamma-Ray spectroscopy of K-42. *J. Phis. Soc. Of Japan*, v. 29, n. 1, p. 43-46, 1970.
32. *Radiological Health Handbook*, 1970.
33. *Nuclear Data Table*, A, vol. 7, 1969/1970.



34. AMERSHAM INTERNATIONAL PLC. *Certificate of calibration of radioactive reference solution*. Calibration n. 0146,  $^{88}\text{Y}$ .
35. IAEA. *X-Ray and Gamma-ray Standards for Detector Calibration*. Vienna, 1991 (IAEA –TECDOC-619).
36. BROWNE, E., FIRESTONE, R.B. *Table of radioactive isotopes*. Lawrence Berkeley Laboratory, University of California, 1986.