



**AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE
DE SÃO PAULO**

**DESENVOLVIMENTO DE MÉTODOS DE MEDIDA DE
ATIVIDADE DE RADIONUCLÍDEOS UTILIZADOS EM
MEDICINA NUCLEAR - APLICAÇÃO NA
PADRONIZAÇÃO DO ^{51}Cr E ^{153}Sm**

WILSON DE OLIVEIRA LAVRAS

**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**

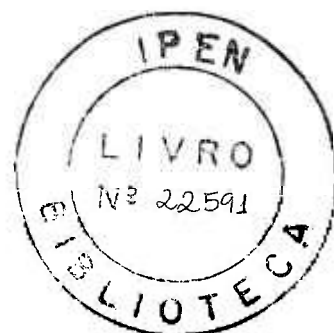
**São Paulo
2002**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia Associada à Universidade de São Paulo

**DESENVOLVIMENTO DE MÉTODOS DE MEDIDA DE ATIVIDADE DE
RADIONUCLÍDEOS UTILIZADOS EM MEDICINA NUCLEAR – APLICAÇÃO NA
PADRONIZAÇÃO DO ^{51}Cr E ^{153}Sm**

WILSON DE OLIVEIRA LAVRAS



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

Orientador:

Dra. MARINA FALLONE KOSKINAS

São Paulo

2002

Ao meu pai, Geraldo

(em memória)

***À minha mãe Ana
À minha esposa Ana***

Agradecimentos:

A Deus, por tornar-me parte de sua grandiosa obra.

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

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

Aos amigos Mauro Noriaki Takeda e Franco Brancaccio pelas preciosas informações e sugestões de informática além do apoio, incentivo e amizade.

Ao amigo Marcos Rodrigues de Carvalho pelas informações técnicas sobre fotos digitais

Às amigas Denise Simões Moreira e Kátia Aparecida Fonseca por discussões e colaborações para o auxílio do desenvolvimento deste trabalho

Aos amigos Vanderley Cardoso, Maurício Marques, Cláudia Cristina Braga, Aída M. Baccarelli, Carla Costa Cardoso Zoppe e Cláudia Regina Ponte-Ponge Ferreira, pelo apoio incentivo e amizade.

Aos colegas do LMN pela amizade.

Aos colegas do centro de Radiofarmácia pelo fornecimento das soluções radioativas necessárias para o desenvolvimento deste trabalho.

Aos colegas do Departamento de Metrologia Nuclear que de alguma forma colaboraram para o desenvolvimento deste trabalho.

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

Ao meu Pai Geraldo Benedito Lavras por ter me concedido a honra de ser seu filho.

Às Anas da minha vida; Ana de Oliveira Lavras – por ter me dado a vida
Ana Cristina de Lima Azedias – por me manter vivo.

Aos amigos Marcelo de Amaral Almeida, Eliane F. Almeida, Celso Fernandes de Moraes e Jorge Luís de Souza Mota; por simplesmente existirem.

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

DESENVOLVIMENTO DE MÉTODOS DE MEDIDA DE ATIVIDADE DE RADIONUCLÍDEOS UTILIZADOS EM MEDICINA NUCLEAR – APLICAÇÃO NA PADRONIZAÇÃO DO ^{51}Cr E ^{153}Sm

Wilson de Oliveira Lavras

RESUMO

Este trabalho descreve a metodologia desenvolvida para a padronização dos radionuclídeos ^{51}Cr e ^{153}Sm . Estes radionuclídeos são de grande interesse na área de medicina nuclear, cuja necessidade de padrões bem conhecidos é sempre crescente. As soluções radioativas foram fornecidas pelo Centro de Radiofarmácia do IPEN. O sistema primário utilizado para padronização foi o sistema de coincidências 4π (PC)-NaI(Tl) o qual é formado por um contador proporcional em geometria 4π acoplado a dois cristais de NaI(Tl), tendo sido aplicada a técnica de extrapolação linear da eficiência. Para a padronização do ^{51}Cr foram utilizados dois sistemas eletrônicos; o sistema eletrônico convencional, no qual o registro das contagens é feito por meio de contadores temporizadores; e o sistema eletrônico desenvolvido no Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do IPEN, que utiliza um analisador multicanal para registro das contagens observadas. Para as medidas no sistema convencional a eficiência foi variada pela adição de absorvedores externos de Collodium sobre e sob a fonte. Na medida com sistema TAC, a eficiência foi variada pelo uso de absorvedores externos e pelo método de discriminação eletrônica. A padronização do ^{153}Sm foi feita utilizando-se o sistema TAC variando-se a eficiência pelo uso de absorvedores externos. Neste trabalho foi medida a probabilidade de emissão gama por decaimento da radiação gama de 103 keV do ^{153}Sm , a medida da radiação gama foi feita no espectrômetro gama com detector de HPGe, previamente calibrado por meio de ampolas contendo soluções padrões de ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs e ^{152}Eu , padronizadas no LMN. As incertezas envolvidas foram tratadas por meio da metodologia de análise de covariâncias.

DEVELOPMENT OF METHODS FOR MEASURING THE ACTIVITY OF RADIONUCLIDES, USED IN NUCLEAR MEDICINE – APPLICATION TO THE STANDARDIZATION OF ^{51}Cr AND ^{153}Sm

Wilson de Oliveira Lavras

ABSTRACT

The present work describes the methodology developed for primary standardization of ^{51}Cr and ^{153}Sm radionuclides. These radionuclides are of great interest in nuclear medicine because standards of good accuracy are necessary in this field. The radioactive solutions were given by Radiopharmacy Center of IPEN. The primary standardization was performed in a 4π (PC)-NaI(Tl) coincidence system consisting of a 4π proportional counter, coupled to a pair of NaI(Tl) crystals. The extrapolation efficiency technique was applied. For two electronic systems ^{51}Cr were used: a conventional system which makes use of scalers and timer, and a second one novel system developed at the Nuclear Metrology Laboratory of IPEN, which makes use of a Time to Amplitude Converter (TAC) associated with a Multichannel Analyser. The efficiency in the conventional system was changed by using external absorbers over and under the sources. For measurements with this system, the efficiency was changed by using electronic threshold discrimination and external absorbers. The ^{153}Sm standardization was performed by using this new system, changing the efficiency by using external absorbers. The gamma-ray emission probability per decay of 103 keV transition of ^{153}Sm has also been measured. The gamma-ray measurements were performed in a HPGe system, previously calibrated by means of ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs and ^{152}Eu sources, previously standardized at the Nuclear Metrology Laboratory. All uncertainties involved were treated rigorously, by means of covariance analysis.

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO	1
2	FUNDAMENTOS TEÓRICOS	4
2.1	Processos de desintegração radioativa	4
2.1.1	Decaimento β^-	4
2.1.2	Decaimento β^+	6
2.1.3	Decaimento por Captura Eletrônica	7
2.1.4	Radiação γ	8
2.1.5	Conversão Interna	10
2.1.6	Radiação $-X$	10
2.1.7	Eletron Auger	11
2.2	Medida absoluta da atividade	11
2.2.1	Método de coincidências	13
2.3	Probabilidade de Emissão gama por decaimento	20
2.3.1	Curva de calibração do sistema de espectrometria gama com detetor semi-condutor HPGE	21
2.3.2	Correções aplicadas para medidas no HPGE	23
2.3.3	Correções aplicadas para medidas no sistema $4\pi(PC)$ - NaI(Tl)	24
2.3.3.1	Correção para o tempo morto	24
2.3.3.2	Correção para coincidências acidentais	25
2.3.3.3	Correção para decaimento radioativo	26
2.3.3.4	Correção para radiação de fundo	27
2.4	Análise estatística levando em consideração as covariâncias	27
3	ARRANJO EXPERIMENTAL DO SISTEMA $4\pi(PC)$ -NaI(Tl)	30
3.1	Sistemas eletrônicos associados	34
3.1.1	Sistema eletrônico convencional	35
3.1.2	Sistema eletrônico TAC	37
3.2	Sistemas auxiliares	39
3.2.1	Sistema Para Selecionar a Energia γ de Interesse	39
3.2.2	Sistema auxiliar para distribuição de tempo	42
3.3	Sistema de espectrometria gama com detetor semicondutor HPGE	44
4	PADRONIZAÇÃO DOS RADIONUCLÍDEOS ^{51}Cr E ^{153}Sm	46
4.1	Padronização do ^{51}Cr	46
4.1.1	Esquema de decaimento do ^{51}Cr	46
4.1.2	Aplicação do método de coincidências para padronização do ^{51}Cr	48
4.2	Padronização do ^{153}Sm	51
4.2.1	Esquema de Decaimento do ^{153}Sm	51
4.2.2	Aplicação do método de coincidências para padronização do ^{153}Sm	55

5 ANÁLISE DE DADOS E RESULTADOS.....	59
5.1 Medidas obtidas na padronização do ^{51}Cr	59
5.1.1 Preparação de fontes.....	59
5.1.2 Medidas no sistema $4\pi(\text{PC}) - \text{NaI}(\text{TI})$	60
5.1.3 Análise estatística dos resultados obtidos para o ^{51}Cr	73
5.1.4 Comparação dos resultados obtidos na padronização do ^{51}Cr	77
5.2 Resultados obtidos para a padronização do ^{153}Sm	78
5.2.1 Preparação das fontes.....	78
5.2.2 Medida no Sistema $4\pi(\text{PC}) - \text{NaI}(\text{TI})$	78
5.2.3 Calibração do espectrometro gama.....	82
5.2.4 Resultados da probabilidade de emissão gama por decaimento do ^{153}Sm	88
6 CONCLUSÕES.....	91
REFERÊNCIAS.....	92

1 INTRODUÇÃO

Metrologia de Radionuclídeos é a ciência que se ocupa de medidas precisas do valor da atividade de fontes radioativas as quais apresentam diversos aspectos tanto na sua forma física como no tipo de emissão e na energia da radiação emitida. Estas diversidades naturais impõem dispor de instrumentos e métodos específicos para as radiações consideradas [Baerg,1967].

Desde 1964, o Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN desenvolve métodos e sistemas de padronização de radionuclídeos visando qualificar o laboratório na padronização de uma vasta gama de radionuclídeos que são utilizados em pesquisa básica e aplicada, na indústria, na medicina e em controle ambiental.

Atualmente o objetivo principal do desenvolvimento de métodos de medida está direcionado ao estudo de radionuclídeos de uso em medicina nuclear, principalmente nos radionuclídeos produzidos no IPEN, de modo a garantir uma melhor qualidade nas padronizações assim como sua rastreabilidade com relação aos padrões internacionais.

Neste trabalho foi feita a padronização do ^{51}Cr e do ^{153}Sm . Estes radionuclídeos são de grande interesse tanto na área de medicina nuclear, cuja necessidade de padrões bem conhecidos é sempre crescente, como do ponto de vista metrológico, pois a medida cuidadosa destes radionuclídeos possibilita uma melhor compreensão das particularidades dos seus esquemas de desintegração.

O interesse no ^{51}Cr na área de medicina nuclear reside na sua utilização para marcação de células vermelhas no sangue, a fim de determinar o volume específico sangüíneo em determinada região do corpo humano [Saha, 1997].

O interesse no ^{153}Sm em medicina nuclear reside no fato de ele depositar-se em regiões dos ossos atingidas por células cancerosas no caso de metástases ósseas, ajudando a aliviar as dores por elas causadas [Marques, 2002; Saha, 1997]. Os estudos com este radionuclídeo começaram no IPEN em 1992 e em 1995 ele já estava aprovado para uso em seres humanos. Para os alívios para das dores causadas por metástases ósseas eram utilizados ^{89}Sr e a morfina, porém a desvantagem apresentada pelo ^{89}Sr é a sua alta meia vida ($\approx 50,53$ dias), o que pode potencializar efeitos colaterais ao paciente. O baixo custo do ^{153}Sm é também uma outra vantagem por ele apresentada em relação ao ^{89}Sr . Quanto à morfina as suas desvantagens eram a causa de dependência, e a sua menor permanência no organismo, o que neste caso implicam no uso de doses cada vez maiores no paciente.

O método escolhido para a padronização destes radionuclídeos foi o método de coincidências proposto por Baerg e Campion [Baerg, 1967; Campion, 1975]. Este método foi desenvolvido para medida de atividade de radionuclídeos que decaem por emissão beta-gama ou raio-X –gama simultâneas.

O método quando aplicado faz uso de dois tipos de detetores; um para radiações corpusculares como é o caso de partículas alfa e beta e outro para radiações eletromagnéticas, fótons.

A probabilidade de emissão gama foi determinada por espectrometria gama com o detetor de HPGE.

O interesse no ^{51}Cr na área de medicina nuclear reside na sua utilização para marcação de células vermelhas no sangue, a fim de determinar o volume específico sangüíneo em determinada região do corpo humano [Saha, 1997].

O interesse no ^{153}Sm em medicina nuclear reside no fato de ele depositar-se em regiões dos ossos atingidas por células cancerosas no caso de metástases ósseas, ajudando a aliviar as dores por elas causadas [Marques, 2002; Saha, 1997]. Os estudos com este radionuclídeo começaram no IPEN em 1992 e em 1995 ele já estava aprovado para uso em seres humanos. Para os alívios para das dores causadas por metástases ósseas eram utilizados ^{89}Sr e a morfina, porém a desvantagem apresentada pelo ^{89}Sr é a sua alta meia vida ($\approx 50,53$ dias), o que pode potencializar efeitos colaterais ao paciente. O baixo custo do ^{153}Sm é também uma outra vantagem por ele apresentada em relação ao ^{89}Sr . Quanto à morfina as suas desvantagens eram a causa de dependência, e a sua menor permanência no organismo, o que neste caso implicam no uso de doses cada vez maiores no paciente.

O método escolhido para a padronização destes radionuclídeos foi o método de coincidências proposto por Baerg e Campion [Baerg, 1967; Campion, 1975]. Este método foi desenvolvido para medida de atividade de radionuclídeos que decaem por emissão beta-gama ou raio-X –gama simultâneas.

O método quando aplicado faz uso de dois tipos de detetores; um para radiações corpusculares como é o caso de partículas alfa e beta e outro para radiações eletromagnéticas, fótons.

A probabilidade de emissão gama foi determinada por espectrometria gama com o detetor de HPGE.

O presente trabalho é apresentado na seguinte ordem;

Neste capítulo 1 foram apresentadas as motivações para estudo dos dois radionuclídeos bem como a apresentação dos métodos de medida absoluta de atividade.

No capítulo 2 são apresentados os fundamentos teóricos, aonde são discutidos os principais tipos de radiações estudados e a formulação do método de coincidências.

No capítulo 3 são apresentados os arranjos experimentais utilizados.

No capítulo 4 são apresentadas as equações de padronização para o ^{51}Cr e para o ^{153}Sm .

No capítulo 5 são apresentados e discutidos os resultados experimentais obtidos para o ^{51}Cr e para o ^{153}Sm .

No capítulo 6 são apresentadas as conclusões.

2 FUNDAMENTOS TEÓRICOS

2.1 Processos de desintegração radioativa

A desintegração radioativa é a forma que um radionuclídeo possui para atingir o seu estado fundamental. Em razão deste fato é importante o conhecimento e estudo dos processos nucleares e atômicos que levam este a se desintegrar.

Abaixo são descritos os principais processos de desintegração radioativa.

2.1.1 Decaimento β

O decaimento beta é caracterizado pela desintegração do nêutron em um próton, um elétron e um antineutrino, Neste processo, que é descrito pela reação



o elétron (partícula beta) é ejetado no núcleo juntamente com um antineutrino que possui massa de repouso nula e uma probabilidade de interação com a matéria extremamente pequena, isto é, ele possui um longo livre caminho médio. Este processo de desintegração radioativa leva a uma transmutação nuclear que é descrita esquematicamente por [Knoll, 1988].



Neste esquema X é o núcleo pai e Y é o núcleo filho. Este tipo de transmutação tem como efeito, o aumento do número atômico do núcleo pai em uma unidade.

No decaimento, a energia liberada durante uma única transição é dividida entre a partícula beta e o antineutrino. Se considerarmos então uma amostra que possua uma grande quantidade de transições, as diferenças entre as energias das partículas beta e os antineutrinos formarão um espectro contínuo de energias que variarão de 0 até um valor máximo [Knoll, 1988].

O valor Q, descreve a diferença de massa nuclear em unidades de energia entre os estados iniciais e finais do decaimento, o seu valor é dado por Krane [Krane, 1988]

$$Q = (m_n - m_p - m_e - m_\nu)c^2 \quad (2.3)$$

onde

m_n = massa do nêutron

m_p = massa do próton

m_e = massa do elétron

m_ν = massa do neutrino

c = velocidade da luz.

Dessa forma a energia máxima determinada para o decaimento beta, é dada por

$$Q_{\beta_{\max}} = Q^- - E_L \quad (2.4)$$

Onde $Q_{\beta_{\max}}$ é o nível de energia atingido pelo núcleo filho [NCRP, 1978].

A energia média de uma partícula β em uma transição é dada por (NCRP, 1978)

$$E_{\text{med}} = \frac{\int_0^{E_{\text{med}}} EN(E)dE}{\int_0^{E_{\text{med}}} N(E)dE} \quad (2.5)$$

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

2.1.2 Decaimento β^+

Este decaimento é caracterizado pela transmutação de um próton em um nêutron e um elétron positivo, com a emissão de um neutrino. O decaimento é descrito esquematicamente por:



Este processo possui como característica fundamental a diminuição do número atômico em uma unidade, conforme o esquema mostrado abaixo



As partículas β^+ assim como as partículas β^- , possuem um espectro de energias contínuo. Neste espectro as partículas possuem uma energia máxima que é caracterizada pela seguinte equação [NCRP, 1978]

$$E_{\max} = Q^+ - 2mc^2 \quad (2.8)$$

Onde Q^+ é a diferença de massa atômica, expressa em unidades de energia, entre os estados fundamentais dos núclídeos pai e filho, m é a massa da partícula e c é a velocidade da luz.

2.1.3 Decaimento por Captura Eletrônica

Este processo é caracterizado pela emissão de um neutrino do núcleo. Isto ocorre devido ao fato de um elétron orbital ser capturado pelo núcleo, promovendo a reação:



Neste tipo de decaimento, o próton converte-se em um nêutron, devido a sua interação com o elétron no núcleo, conseqüentemente a carga nuclear é diminuída de uma unidade e o núcleo filho apresenta uma vacância em uma das suas camadas atômicas. Esta transmutação nuclear é descrita por meio do esquema:



A energia Q^+ liberada durante o processo de captura eletrônica é dada por

$$Q^+ = E_L + E_K \quad (2.11)$$

Sendo E_L o nível de energia do elétron na camada L e E_K o nível de energia do elétron capturado da camada K.

2.1.4 Radiação γ

As radiações podem ser classificadas em dois tipos; radiação corpuscular e radiação eletromagnética, o primeiro tipo é a radiação de desintegração nuclear, e o segundo tipo é a radiação de desexcitação nuclear [Moura, 1969]. A radiação gama é portanto uma radiação de desexcitação que é emitida por núcleos excitados, e tende a fazê-los retornarem ao seu estado fundamental. A transição gama pode ser também caracterizada pela emissão de um elétron de conversão, e a sua intensidade de transição é dada por [Lagoutine et. al., 1984]

$$T_\gamma = I_\gamma + I_{ce} \quad (2.12)$$

Onde I_γ e I_{ce} são as Intensidades da emissão γ e da emissão do elétron de conversão.

Os raios gama possuem as seguintes propriedades:

- a) São provenientes de desexcitação nuclear
- b) São monoenergéticos podendo ter energias entre alguns e vários milhões de eV
- c) A energia do raio gama emitido é dada por [Lagoutine et. al., 1984]

$$E_{\gamma} = (E_i - E_f) - E_r \quad (2.13)$$

Onde:

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

E_r é a energia de recuo do estado final do núcleo, dado por

$$E_r = \frac{(E_{\gamma})^2}{2M_N c^2} \quad (2.14)$$

Onde:

M_N é a massa do núcleo de recuo

c é a velocidade da luz.

2.1.5 Conversão Interna

Ao se desexcitar, o núcleo emite uma radiação que poderá interagir com os elétrons das camadas mais internas (K, L, ...), neste caso, a energia desta radiação é transferida para estes elétrons, e os mesmos são ejetados dos orbitais atômicos. A energia carregada pelo elétron de conversão é dada por [Lagoutine et. al., 1984]

$$E_{ceX} = E_{ex} - E_X \quad (2.15)$$

Nesta equação

E_{ex} = Energia de excitação nuclear

E_X = energia de ligação do núcleo à camada X.

2.1.6 Radiação – X

Quando um elétron é ejetado de uma camada mais interna, esta será preenchida por meio de rearranjo eletrônico. Este rearranjo será dado pela migração dos elétrons das camadas mais externas para as camadas mais internas. A consequência deste rearranjo é a produção de radiação X ou a emissão de elétrons Auger, Durante o rearranjo cada transição possui uma energia característica, que é dada pela diferença entre as energias dos estados final e inicial.

$$E = h\nu \quad (2.16)$$

$$\Delta E_i = E_f - E_i \quad (2.17)$$

onde

h = constante de Planck

ν = Frequência

E_i = Energia do estado inicial

E_f = energia do estado final

2.1.7 Elétron Auger

Quando o átomo transfere a sua energia de excitação a um elétron da camada mais externa, este é ejetado com uma energia equivalente à diferença de energia entre a energia de ligação do elétron ao átomo e a energia de excitação do átomo. Devido ao fato dos elétrons Auger ocorrerem com maior probabilidade para núcleos com $Z < 45$, ou seja para elétrons mais fracamente ligados ao núcleo, eles possuem baixas energias quando comparadas com as radiações beta e a dos elétrons de conversão interna.

2.2 Medida absoluta da atividade

As técnicas disponíveis para a medida absoluta da atividade podem ser divididas basicamente em duas amplas categorias [Koskinas, 1988];

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

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

O método de coincidência é um método primário de determinação da atividade amplamente utilizado. A vantagem da sua utilização é a possibilidade de obtenção de resultados com alta precisão, sem o conhecimento dos parâmetros do esquema de decaimento do radionuclídeo ou da eficiência de detecção.

No entanto, deve-se ressaltar que a escolha do método de medida depende principalmente do esquema de desintegração do radionuclídeo a ser padronizado.

2.2.1 Método de coincidências

O método da coincidência pode ser utilizado para determinar a atividade de um radionúclídeo que desintegra pela emissão de duas radiações simultâneas, do tipo α - γ , β - γ , raio-X- γ .

O método para ser aplicável, necessita de detectores distintos, a fim de termos um para cada tipo de radiação e de uma eletrônica associada que auxilie na determinação dos eventos coincidentes.

Na figura 1, é mostrado o diagrama do sistema de coincidência básico.

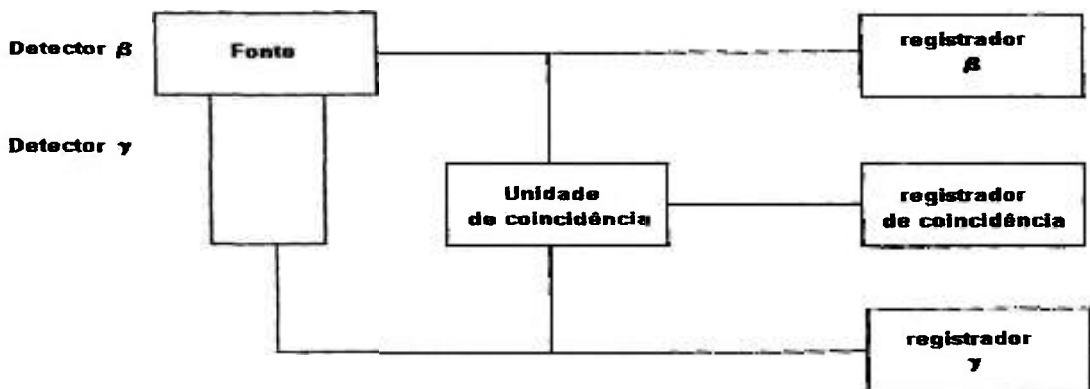


FIGURA 2.1 - Diagrama de bloco do sistema de coincidência básico

Pode-se desenvolver as equações básicas para o método de coincidências ao considerarmos uma fonte puntiforme que possua um esquema de decaimento simples, por exemplo a emissão de uma partícula beta seguida por uma radiação gama. A estes dois tipos de radiação denominamos de radiação de desintegração e radiação de desexcitação [Moura, 1969], respectivamente. Na figura 2 é apresentado o esquema de decaimento genérico de um radionúclídeo e o formalismo das equações pertinentes.

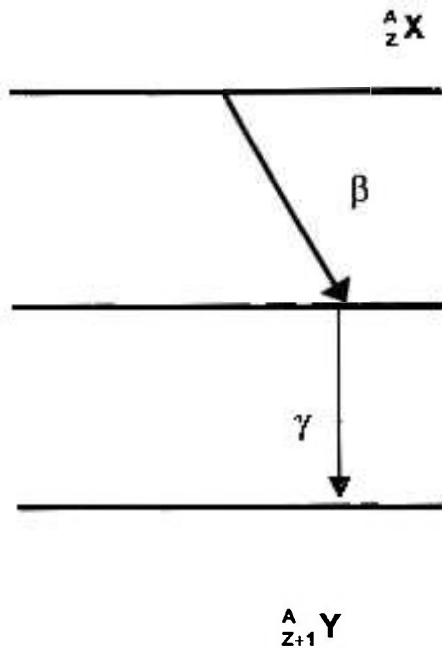


FIGURA 2.2 - Esquema de decaimento genérico para um emissor β

As equações que regem este método são:

$$N_{\beta} = N_0 \varepsilon_{\beta} \quad (2.18)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \varepsilon_{\gamma} \quad (2.19)$$

$$N_c = N_0 \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma} \quad (2.20)$$

Sendo N_{β} , N_{γ} e N_c as taxas de contagens, corrigidas para radiação de fundo, tempo morto e decaimento, das vias β , γ e de coincidência, respectivamente, ε_{β} e ε_{γ} são as eficiências do detector β e do detector γ e N_0 é a atividade da fonte.

Multiplicando-se as equações (2.18) e (2.19) e dividindo pela (2.20),

tem-se:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \quad (2.21)$$

de onde obtém-se a taxa de desintegração N_0 em função apenas das contagens observadas.

Estas considerações correspondem a condições ideais raramente alcançadas. Na prática, os núclídeos apresentam esquemas de desintegração complexos, de modo que uma série de correções devem ser aplicadas, como por exemplo, sensibilidade dos detetores a outras radiações que não sejam desejadas, uso de fontes não puntiformes, tempos de resposta diferentes para cada detetor. Portanto, para um caso prático em que o radionuclídeo decai por β - γ e apresenta um esquema de desintegração complexo, com n ramos beta as taxas de contagens beta, gama e coincidência podem ser rescritas como:

$$N_{\beta} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\epsilon_{\beta r} + (1 - \epsilon_{\beta r}) \sum_{s=1}^{Pr} b_{r_s} \frac{(\alpha_s \epsilon_{c\epsilon_s} + \epsilon_{\beta\gamma_s})}{(1 + \alpha_s) \tau} \right] \quad (2.22)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \sum_{s=1}^{Pr} b_{r_s} \epsilon'_{\gamma r_s} \quad (2.23)$$

$$N_c = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\epsilon_{\beta r} \sum_{s=1}^{Pr} b_{r_s} \epsilon'_{\gamma r_s} + (1 - \epsilon_{\beta r}) \sum_{s=1}^{Pr} b_{r_s} \epsilon_{c r_s} \right] \quad (2.24)$$

Onde

N_{β} = número de contagens beta

N_0 = atividade da fonte

a_r = abundância relativa do $r_{ésimo}$ grupo beta

$\varepsilon_{\beta r}$ = eficiência de detecção do contador beta à radiação beta do $r_{ésimo}$ grupo

P_r = número de radiações gama associadas à $r_{ésima}$ desintegração beta

b_{r_s} = abundância relativa

ε_{ce} = eficiência de detecção do detetor beta aos elétrons de conversão

$$\varepsilon'_{r_s} = \frac{\varepsilon_{\gamma r_s}}{1 + \alpha_{r_s}}$$

$\varepsilon'_{\gamma r_s}$ = eficiência do contador gama

α_{r_s} = coeficiente de conversão interna total para a transição do $s_{ésimo}$ gama associado ao $r_{ésimo}$ grupo beta.

N_{γ} = número de contagens gama

N_c = número de contagens de coincidência

$\varepsilon_{\beta \gamma r}$ = eficiência do detetor beta à radiação gama

$\varepsilon_{c r_s}$ = eficiência de coincidências γ - γ .

As equações acima podem ser simplificadas omitindo-se as somatórias em s , desde que as mesmas sejam consideradas implícitas, bem como as abundâncias relativas β_{r_s} , nos fatores em ε , ε_c e $(\alpha\varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma})$, quando houver mais de uma radiação gama seguida por uma desintegração beta.

Com apenas as somatórias em r as equações acima se reduzem a:

$$N_{\beta} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \frac{(\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta \gamma})_r}{(1 + \alpha)_r} \right] \quad (2.25)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \varepsilon'_{\gamma r} \quad (2.26)$$

$$N_c = N_0 \sum_{r=1}^n a_r (\varepsilon_{\beta r} \varepsilon'_{\gamma r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \varepsilon_{c r}) \quad (2.27)$$

Com isso, a equação (2.21) passa a ser representada por:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \frac{\sum a_r [\varepsilon_{\beta r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) (\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta \gamma})_r / (1 + \alpha)] N_0 \sum a_r \varepsilon'_{\gamma r}}{N_0 \sum a_r [\varepsilon_{\beta r} \varepsilon'_{\gamma r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \varepsilon_{c r}]} \quad (2.28)$$

Analisando a equação (2.28), conclui-se que para a determinação de N_0 é necessário o conhecimento dos parâmetros do esquema de desintegração e as eficiências de detecção. Para solucionar este problema e manter a principal característica do método que consiste na sua independência do conhecimento das eficiências de detecção e dos parâmetros do esquema de desintegração, foi desenvolvida por Baerg e Campion a "Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência [Baerg, 1967; Baerg, 1973; Campion, 1959; Baerg, 1966].

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

Esta condição ocorre quando a $\varepsilon_{\beta r}$ (eficiência dos vários ramos beta) puder ser representada como uma função de uma única eficiência $\varepsilon_{\beta s}$, tal que $\varepsilon_{\beta r} = f_r(\varepsilon_{\beta s})$ e que esta relação se conserve para o caso em que a eficiência tenha valor um e seja tal que:

$$f_r(\varepsilon_{\beta s}) \rightarrow 1 \text{ quando } \varepsilon_{\beta s} \rightarrow 1.$$

Isto implica que os valores para ε_c , $\varepsilon_{\beta r}$ e ε_γ sejam constantes ou nulos.

Das equações (2.24) e (2.25) obtém-se que:

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = \frac{\sum a_r \varepsilon'_{\gamma r} [\varepsilon_{\beta r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \varepsilon_{c_c} / \varepsilon'_{\gamma r}]}{\sum a_r \varepsilon'_{\gamma r}} \quad (2.29)$$

onde

$$k_r = \frac{a_r \varepsilon'_{\gamma r}}{\sum a_r \varepsilon'_{\gamma r}}$$

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

O parâmetro de eficiência pode então ser escrito na forma:

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = 1 - \sum k'_r [1 - f_r(\varepsilon_{\beta s})] \quad (2.30)$$

Com $k'_r = k_r \left(1 - \frac{\varepsilon_{cr}}{\varepsilon_{\gamma r}} \right)$ e $N_c/N_\gamma \rightarrow 1$ quando $\varepsilon_{\beta s} \rightarrow 1$

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

$$N_\beta = N_0 F \left(\frac{N_c}{N_\gamma} \right) \quad (2.31)$$

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

Esta é a fórmula de coincidência generalizada.

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

A fórmula de coincidência generalizada pode ser escrita de forma mais conveniente para sua solução gráfica ou analítica; usando-se a razão $N_\beta N_\gamma / N_c$ como variável dependente e o parâmetro de ineficiência $[1 - (N_c/N_\gamma)] / (N_c/N_\gamma)$ como variável independente. Obtém-se assim uma função G , cuja variação é mais lenta do que a função F referida na equação (2.30).

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

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} = N_0 G \left(\frac{1 - N_c / N_{\gamma}}{N_c / N_{\gamma}} \right) \quad (2.32)$$

Onde, $G \rightarrow 1$ e $\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} \rightarrow N_0$

Quando $\frac{(1 - N_c / N_{\gamma})}{N_c / N_{\gamma}} \rightarrow 0$

Obtém-se então, a constante da correção para o esquema de desintegração, para um dado sistema de detecção e um dado radionuclídeo.

A partir do gráfico de $N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$ versus $(1 - N_c/N_{\gamma})/(N_c/N_{\gamma})$ obtido a partir da variação do parâmetro de eficiência pelo uso de absorvedores externos, ou por auto absorção na fonte ou por discriminação eletrônica, determina-se a função G , que relaciona $N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$ com N_0 . O valor extrapolado obtido por ajuste polinomial dos dados experimentais, nos fornece a taxa de desintegração N_0 , e o coeficiente angular nos fornece a correção para o esquema de desintegração para um dado sistema de desintegração e um dado nuclídeo.

2.3 Probabilidade de Emissão gama por decaimento

A probabilidade de emissão gama por decaimento é um dos principais parâmetros nucleares que caracterizam os radionuclídeos emissores gama, uma vez que de seu conhecimento, depende diretamente a determinação da atividade das fontes radioativas utilizadas nos vários campos de aplicação.

O método empregado neste trabalho para sua determinação, é o que relaciona a taxa de emissão de fótons de energia gama da fonte radioativa, determinada pela medida em um espectrômetro gama previamente calibrado com fontes radioativas padrão, com a atividade (A) da fonte em estudo, determinada em um sistema primário.

A probabilidade de emissão gama por decaimento é obtida da equação:

$$p(E_{\gamma_i}) = \frac{S(E_{\gamma_i})}{A \varepsilon(E_{\gamma_i}) T f_c} \quad (2.33)$$

sendo:

$S(E_{\gamma_i})$ = Área sob o pico de absorção total do i-ésimo gama de energia E

A = Atividade absoluta da fonte na data da medida

$\varepsilon(E_{\gamma_i})$ = Eficiência de pico para o i-ésimo gama de energia E

T = Tempo de medida

f_c = Fator de correção (tempo morto, atenuação e geometria).

2.3.1 Curva de calibração do sistema de espectrometria gama com detector semi-condutor HPGe

Para determinarmos a curva de eficiência do HPGe, fazemos o uso de fontes padrões primárias, caracterizadas por terem energia, probabilidade de emissão gama por decaimento e meia – vida bem conhecidas e atividade determinada por sistema primário. A eficiência de detecção para o pico de absorção total é dada por

$$\varepsilon(E_{\gamma_i}) = \frac{S(E_{\gamma_i})}{A \rho(E_{\gamma_i}) T f_c} \quad (2.34)$$

A curva da eficiência em função da energia, pode ser expressa genericamente pela equação (2.35). Esta curva é determinada pelo ajuste logarítmico entre eficiência e energia dada por

$$\ln \varepsilon(E_{\gamma_i}) = \sum_{j=0}^n c_j (\ln E_{\gamma_i})^j \quad (2.35)$$

onde

c_j = Coeficiente do ajuste

n = Grau do polinômio ajustado

A área sob o pico de absorção total foi determinada integrando-se numericamente a equação

$$S(E_{\gamma}) = \sum_{K_2+1}^{K_3-1} C_i - S_B F_K \quad (2.36)$$

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

$$S_B = \sum_{K_1}^{K_2} C_i + \sum_{K_3}^{K_4} C_i \quad (2.37)$$

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 radiação 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.

2.3.2 Correções aplicadas para medidas no HPGE

O fator de correção f_c considerado, foi a correção para tempo morto do sistema, determinado pelo método do pulsador [Debertin, 1979]. Este método consiste no envio de pulsos, por um pulsador, ao sistema eletrônico em intervalos de tempo regulares, com frequência de 60 Hz juntamente com os pulsos enviados pelo detetor. O fator de correção é então dado por

$$f_p = \frac{S_{pm}}{S_{pr}} \quad (2.38)$$

onde

S_{pr} = Taxa real de contagens do pulsador

S_{pm} = Área sob o pico do pulsador no espectro da fonte medida.

As correções para efeito geométrico e atenuação foram consideradas iguais a um, uma vez que neste trabalho foram utilizadas fontes radioativas na forma líquida, preparadas em ampolas de vidro semelhantes e com mesmo volume, tanto para os padrões como para a fonte em estudo. Introduzindo-se as incertezas devidas às possíveis variações na espessura do vidro e na altura do líquido no cálculo da eficiência e da probabilidade de emissão gama por decaimento.

A correção para efeito soma não foi aplicada, uma vez que foi considerada desprezível ($< 0,5\%$) para a geometria utilizada (distância fonte – detetor de aproximadamente 18 cm).

2.3.3 Correções aplicadas para medidas no sistema $4\pi(PC)$ - NaI(Tl)

As correções aplicadas às medidas no sistema $4\pi(PC)$ - NaI(Tl) são dadas a seguir.

2.3.3.1 Correção para o tempo morto

Quando dois eventos chegam a um detetor, ocorrerá um intervalo de tempo em que ele estará impossibilitado de detectar novas contagens devido ao fato de estar ainda registrando os eventos anteriores. Este tempo no qual o detetor fica indiferente a estas novas contagens não registradas, é o tempo morto do sistema.

No sistema eletrônico $4\pi(PC)$ -NaI(Tl), este tempo é fixado eletronicamente, e o seu valor é corrigido por meio da equação

$$N = \frac{N'}{1 - N'\tau} \quad (2.39)$$

onde N' é a taxa de contagens do detetor e τ é o tempo morto do sistema.

O tempo morto é determinado experimentalmente pelo método do pulsador mais fonte (Baerg, 1965; Fonseca, 1997). Os valores determinados para as vias beta e gama foi

$$\tau_{\beta} = (3,04 \pm 0,17)\mu s.$$

2.3.3.2 Correção para coincidências acidentais

As coincidências acidentais podem interferir na taxa de contagens, de modo a alterar o valor absoluto da atividade. As correções foram feitas de acordo com o formalismo desenvolvido por Cox e Isham [Cox e Isham, 1977] e adaptado por Smith [Smith, 1987]. Este formalismo considera todos os possíveis casos de coincidências acidentais. Sua fórmula é exata para tempos mortos fixos e iguais nas duas vias de detecção [Moreira, 2000], como considerados neste trabalho. A taxa de coincidências corrigida para coincidências espúrias é dada por .

$$N_c = \frac{N_c (p_1 e^{p_1 \tau} - p_2 e^{p_2 \tau})}{\left[p_1 e^{p_1 \tau} e^{(p_2 - p_1)(\tau_r - \delta)} - p_2 e^{p_2 \tau} e^{(p_1 - p_2)(\tau_r + \delta)} + \frac{N_c}{p_1 p_2} (e^{p_1 \tau} - e^{p_2 \tau}) \right]} \quad (2.40)$$

onde

τ = Tempo morto das vias beta e gama

τ_r = Tempo de resolução

δ = Delay mismatch positivo se o pulso chega antes

$$\rho_1 = \frac{N_{\beta}^*}{1 - \tau_{\beta} N_{\beta}^*} - Bg_{\beta}$$

$$\rho_2 = \frac{N_{\gamma}^* / t}{1 - \tau_{\gamma} N_{\gamma}^* / t} - Bg_{\gamma}$$

$$\rho_1 = 1 - \tau N'_{\beta}$$

$$\rho_2 = 1 - \tau N'_{\gamma}$$

$$N'_{\beta} = \frac{N_{\beta}^*}{1 - N_{\beta}^* \tau_{\beta}}$$

$$N'_{\gamma} = \frac{N_{\gamma}^*}{1 - N_{\gamma}^* \tau_{\gamma}}$$

$$N'_c = N_c^* - 2\tau_r N_{\beta}^* N_{\gamma}^*$$

N_{β}^* , N_{γ}^* , N_c^* são as taxas de contagem observadas nas vias beta, gama e de coincidência, respectivamente.

2.3.3.3 Correção para decaimento radioativo

Ao levarmos em conta o decaimento para a data da referência, é feita também a correção para o decaimento durante a medida. Esta correção é dada por:

$$N_r = N \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}} e^{\lambda(t_m - t_r)} \quad (2.41)$$

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 de medida

λ = Constante de decaimento

2.3.3.4 Correção para radiação de fundo

A radiação de fundo, é um tipo de radiação que não é proveniente da fonte. Dessa forma faz-se a correção desta radiação efetuando uma medida no detetor sem a fonte, após a contagem da fonte no detetor, sendo subtraída das contagens observadas.

2.4 Análise estatística levando em consideração as covariâncias

No presente trabalho o tratamento das incertezas foi feito utilizando-se o método de análise de covariâncias. Este método constitui atualmente em uma importante ferramenta estatística para a avaliação das incertezas envolvidas em experimentos. Estas incertezas podem ser representadas em forma de matriz de covariância a qual é uma das mais completas formas de representação de incertezas. Esta metodologia permite considerar não apenas as incertezas envolvidas nas medidas mas também o nível de correlação existente [Geraldo and Smith, 1989; Geraldo and Smith, 1990; Mannhart, 1981; Smith, 1981].

As informações a respeito das incertezas parciais envolvidas e suas correlações possibilitam a construção da matriz de covariâncias, e a determinação da incerteza total da medida.

Em um conjunto de medidas experimentais existe uma quantidade de erros associados a estas medidas, dessa maneira podemos formalizar que seja L o número de fontes distintas de erros que determinam a incerteza total de um grupo de n dados, $x = (x_1, x_2, \dots, x_n)$. Dessa maneira e_{i1} será o erro em x_i correspondente ao atributo 1 e C_1 a matriz de correlação correspondente a esses erros parciais com elementos C_{ij1} , sendo a mesma definição válida para todos os componentes de x . Na matriz, o coeficiente C_{ij1} , determinará o grau de correlação existente entre os erros e_{xi} e e_{xj} devido ao efeito 1. O coeficiente de correlação é um valor limitado pelo intervalo $[-1, 1]$ e a sua classificação é dada como a seguir:

$C_{ij1} = 0$ Correlação nula

$C_{ij1} = 1$ Correlação positiva perfeita

$C_{ij1} = -1$ Correlação negativa perfeita

$-1 < C_{ij1} < 0$ Correlação negativa parcial

$0 < C_{ij1} < 1$ Correlação positiva parcial

Neste âmbito uma correlação será perfeita quando todos os valores experimentais se encontrarem sobre a reta de ajuste e parcial quando os valores experimentais estiverem divididos em lugares sobre e em torno da reta de ajuste.

A matriz de covariância é construída pelos elementos V_{xij} , dados por

$$V_{xij} = \sum_{i=1}^{i=L} C_{ij1} e_{i1} e_{j1} \quad (2.42)$$

Sendo a incerteza total na i -ésima medida dada por.

$$\sigma_{x_i} = \sqrt{V_{x_{ii}}} \quad (2.43)$$

3 ARRANJO EXPERIMENTAL DO SISTEMA 4π (PC)-NaI(Tl)

O sistema 4π (PC)-NaI(Tl), utilizado na aplicação do método de coincidência é constituído de um contador proporcional em geometria 4π acoplado a dois cristais cintiladores de NaI(Tl).

Contador Proporcional 4π (PC)

O contador proporcional utilizado neste trabalho é um contador do tipo “pill-box” confeccionado em latão, sendo constituído de dois semi-cilindros com paredes de 3 mm de espessura. Em cada semi-cilindro, paralelo ao eixo é posicionado um anodo de aço inoxidável com 25 μ m de diâmetro, o qual é fixado o corpo do detetor por isoladores de Teflon figura 3.1 [Moreira, 2000].

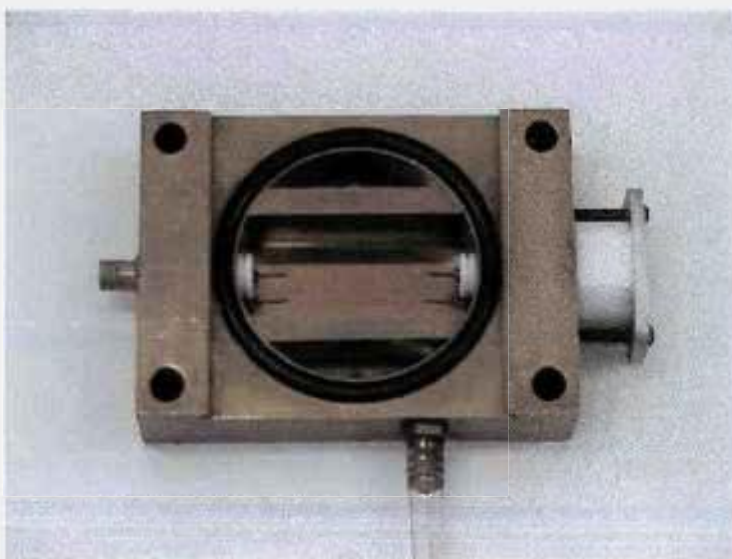


FIGURA 3.1 - Parte superior do contador proporcional

Em uma das extremidades o anodo é soldado a um conector para fornecimento da alta tensão e coleção do sinal, e a outra extremidade é soldado à uma mola, que permite o ajuste de modo a mante-lo tensionado. Entre os dois cilindros há uma placa deslizante (lingüeta) com um orifício central na qual é posicionada a fonte radioativa, (figura 3.2). Quando o detetor está fechado a fonte fica localizada bem no centro dos dois semi-cilindros (figura 3.3).



FIGURA 3.2 - Detetor com a fonte posicionada na lingüeta



FIGURA 3.3 - Contador proporcional fechado

O contador proporcional é operado à pressão atmosférica, sendo preenchido com uma mistura gasosa constituída de 90% de Argônio e 10% de Metano, conhecida como mistura P-10 ou ARGO-META. O gás, antes de ser injetado no detetor, passa por uma coluna de sílica gel com indicador, de maneira a garantir que não haja contato com o ambiente, e o gás mantenha as suas propriedades.

Cristal Cintilador de NaI(Tl)

O cristal de cintilação utilizado é um cristal inorgânico de NaI(Tl), um dos cristais mais utilizados na detecção da radiação gama, pela sua alta eficiência de detecção. O cristal de NaI(Tl) é frágil e higroscópico, devendo ser encapsulado, não podendo ser exposto ao ambiente. Os cristais utilizados no arranjo são cristais planos de 76 mm x 76 mm, encapsulados e acoplados às fotomultiplicadoras. A tensão de operação utilizada foi de 1100 V.

Todo o arranjo de detecção foi posicionado em uma blindagem de chumbo com 5 cm de espessura. Na figura 3.4 é apresentado o cristal de NaI(Tl) acoplado ao detetor proporcional com a lingüeta em posição para colocação da fonte radioativa.



FIGURA 3.4 - Contador proporcional com o detetor NaI(Tl) acoplado, com parte da blindagem de Pb

A figura 3.5 mostra o sistema 4π (PC) – NaI(Tl) totalmente blindado.



FIGURA 3.5 - Sistema 4π (PC) - NaI(Tl) com blindagem

3.1 Sistemas eletrônicos associados

No desenvolvimento deste trabalho foram utilizados dois sistemas eletrônicos; o sistema eletrônico convencional que é descrito no item 3.1.1, no qual o registro das contagens é feito por meio de contadores temporizadores; e o sistema eletrônico desenvolvido no LMN que utiliza um analisador multicanal para registro das contagens observadas, descrito no item 3.1.2 denominado sistema TAC.

3.1.1 Sistema eletrônico convencional

O diagrama de bloco do sistema eletrônico convencional é apresentado na figura 3.6.

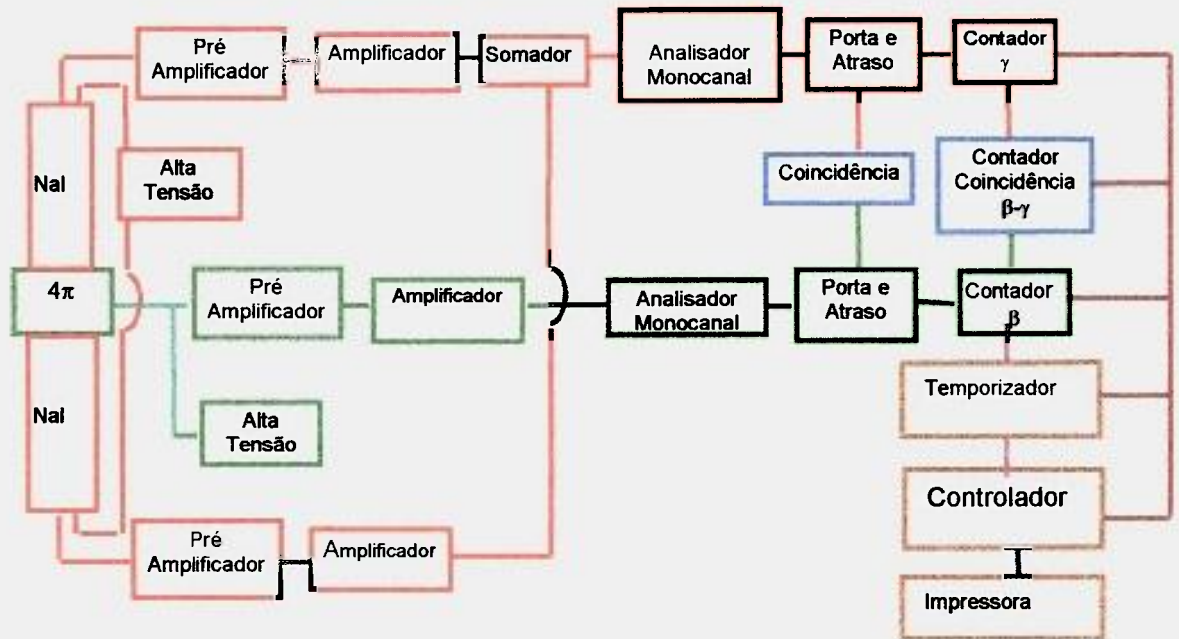


FIGURA 3.6 – Diagrama de bloco do sistema eletrônico convencional

Neste sistema podemos destacar três vias distintas:

VIA BETA: Representada em verde corresponde aos pulsos que são provenientes do contador proporcional os quais após passarem por um pré-amplificador e um amplificador, são enviados à um módulo analisador de altura de pulso, para a discriminação dos pulsos de interesse. No caso do contador proporcional, como a radiação beta apresenta um espectro de energias contínuas, é feita uma medida de modo integral, discriminando-se os pulsos provenientes de ruído eletrônico. Após esta discriminação o pulso é enviado a um módulo gerador de porta e atraso que permite formatar o pulso como um pulso quadrado com

largura e amplitude variáveis e possibilita a fixação do tempo morto do sistema. Após este processo, os pulsos formatados com 5 V de amplitude e 1 μ s de largura, são enviados simultaneamente a um contador e à via de coincidências.

VIA GAMA: Representada em vermelho, corresponde aos pulsos provenientes do cintilador de NaI(Tl), estes pulsos são enviados a um módulo soma onde os pulsos são somados após sua amplificação e enviados ao analisador de altura de pulso, que permite discriminar os pulsos correspondentes ao pico de absorção total gama selecionado

Após esta discriminação os pulsos seguem um procedimento análogo ao descrito para a via beta.

VIA DE COINCIDÊNCIA: Representada em azul corresponde aos pulsos provenientes das vias beta e gama e que são enviados a um módulo lógico que é operado como uma porta "E" (and) o qual irá registrar uma coincidência quando os pulsos provenientes das duas vias atingirem a unidade em um tempo pré-estabelecido que é denominado tempo de resolução, o valor considerado é de 1 μ s. Quando os dois pulsos provenientes das vias beta e gama chegam simultaneamente ao módulo de coincidência, um pulso é enviado a um contador para o seu registro.

Todos os contadores são interligados e controlados por um temporizador em que é fixado o tempo de medida. As informações são enviadas a uma impressora para o registro que está identificado em marrom.

3.1.2 Sistema eletrônico TAC

Visando automatizar o sistema de coincidência no que se refere à coleção de dados, foi desenvolvido no LMN um sistema que utiliza o módulo conversor de tempo em altura de pulsos "TAC" (TIME TO AMPLITUDE CONVERTER) associado a um analisador multicanal. Na figura 3.6, é apresentado o diagrama de blocos deste sistema denominado sistema TAC.

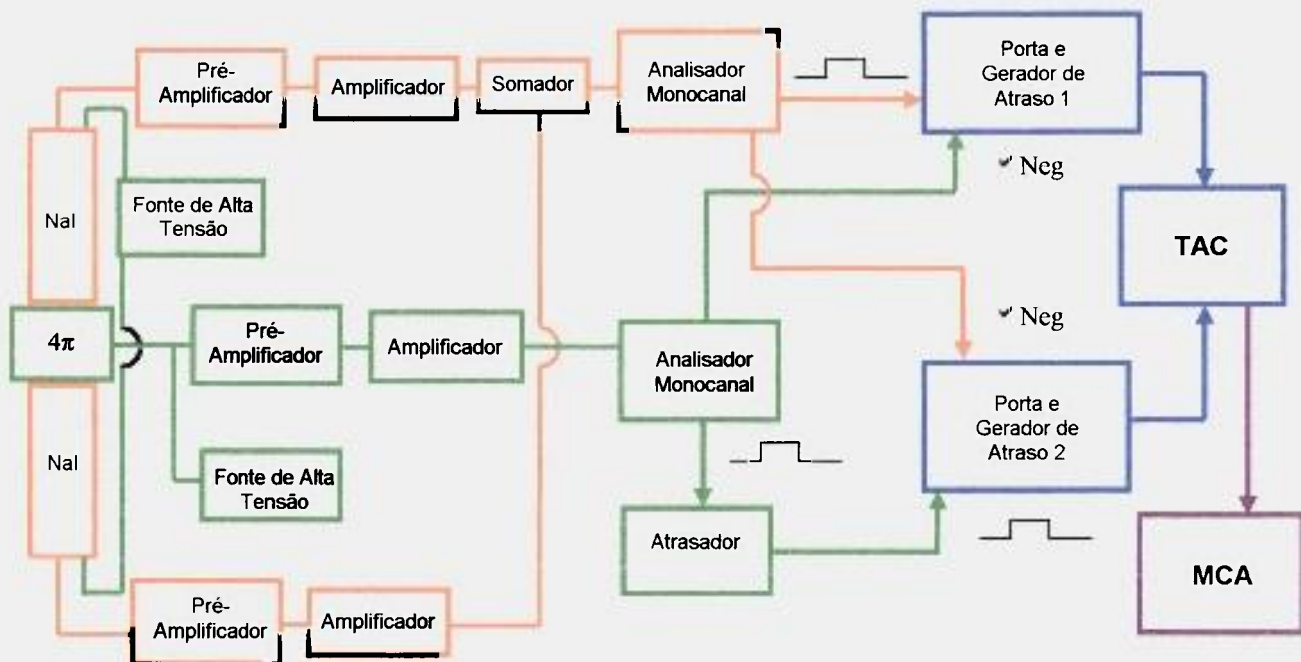


FIGURA 3.7 – Diagrama de bloco do sistema eletrônico TAC

Este sistema é semelhante ao sistema convencional até o módulo analisador de altura de pulso. Após este módulo, os pulsos das duas vias, beta e gama, são enviados a dois geradores de porta e atraso denominados PORTA 1 e PORTA 2.

Os sinais das duas PORTAS são enviados ao módulo TAC atuando como INÍCIO (PORTA 1) e FIM (PORTA 2), gerando um sinal que é enviado ao analisador multicanal para o registro do espectro em tempo.

Para que este registro seja feito é necessário que os pulsos provenientes da via beta após a discriminação sejam enviados como pulsos positivos às duas portas com defasagem no tempo e de modo semelhante os pulsos da via gama. Tanto os sinais da via beta como os sinais da via gama darão origem a um INÍCIO e um FIM. Para isto são utilizados os atrasadores dos analisadores de pulso, o atraso das próprias portas e um atrasador externo (Delay amplifier) como apresentado no diagrama de blocos da figura 3.7.

Na figura 3.8, é apresentado um espectro real registrado no analisador multicanal, onde o primeiro pico corresponde às contagens provenientes de pulsos beta (início β e fim β). O terceiro pico corresponde à contagem proveniente de pulsos gama (início γ e fim γ) e o pulso central corresponde à contagens de coincidências provenientes de pulsos beta e gama (início β e fim γ ou vice-versa).

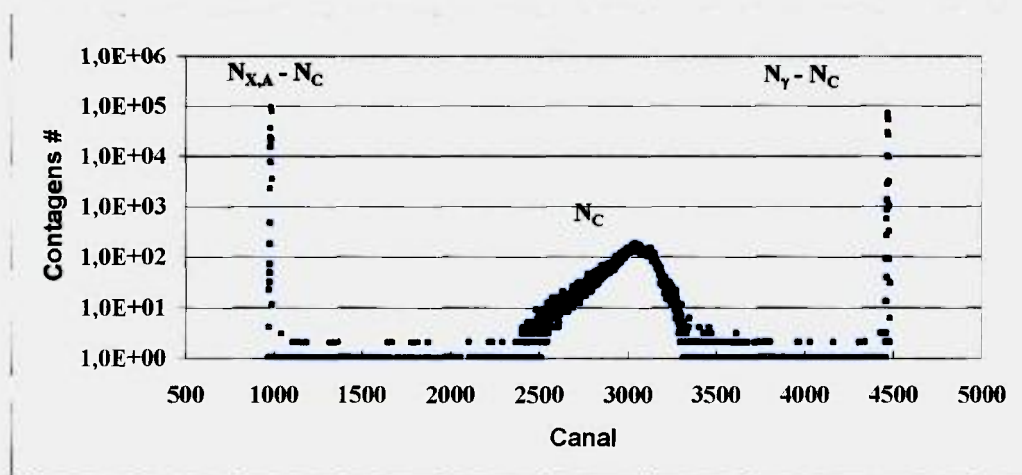


Fig. 3.8 – Espectro típico do sistema TAC

3.2 Sistemas auxiliares

Além dos ajustes usuais dos módulos eletrônicos para a realização das medidas no sistema de coincidência, dois sistemas auxiliares foram utilizados. O sistema auxiliar para seleção da energia gama de interesse e o sistema auxiliar para ajuste dos tempos de resposta dos dois tipos de detectores utilizados (distribuição de tempo).

3.2.1 Sistema Para Selecionar a Energia γ de Interesse

O sistema auxiliar utilizado para a seleção do intervalo de energia gama de interesse é apresentado na figura 3.9.

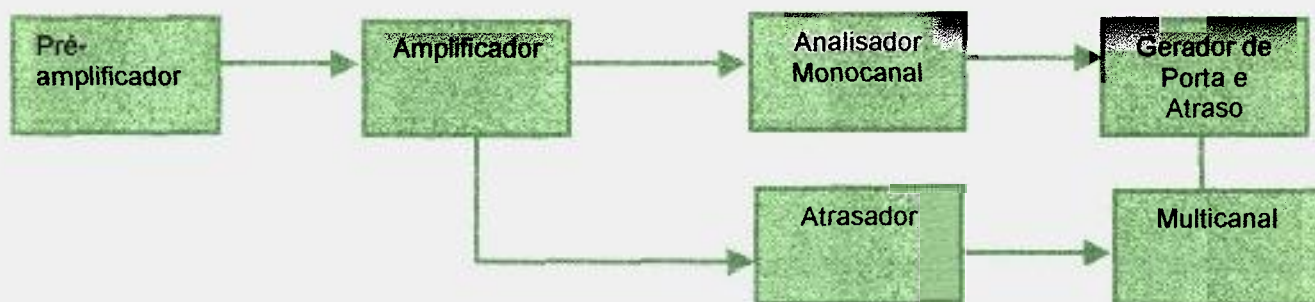


FIGURA 3.9 - Sistema auxiliar para seleção das energias gama

Os pulsos provenientes do amplificador são enviados simultaneamente para o analisador de altura de pulso e para um módulo de atraso denominado atrasador (Delay amplifier), em seguida o sinal é enviado a um analisador multicanal para visualização do espectro. Para a seleção do intervalo de energia envia-se o sinal proveniente do analisador de altura de pulso após passar pelo módulo gerador de porta e atraso, para a porta (gate) do multicanal, o que vai permitir registrar um espectro em coincidência e desse modo visualizar no espectro apenas o intervalo de energia selecionado pelo analisador de altura de pulso.

O módulo atrasador (Delay amplifier) é utilizado para colocar em fase (no tempo) os pulsos provenientes do amplificador e do gerador de porta e atraso que devem chegar ao multicanal simultaneamente para serem registrados.

Na figura 3.10, é apresentado um espectro típico obtido de radiação gama no multicanal, em a é o espectro direto e em b o registro no modo em coincidência onde apenas uma região selecionada é registrada.

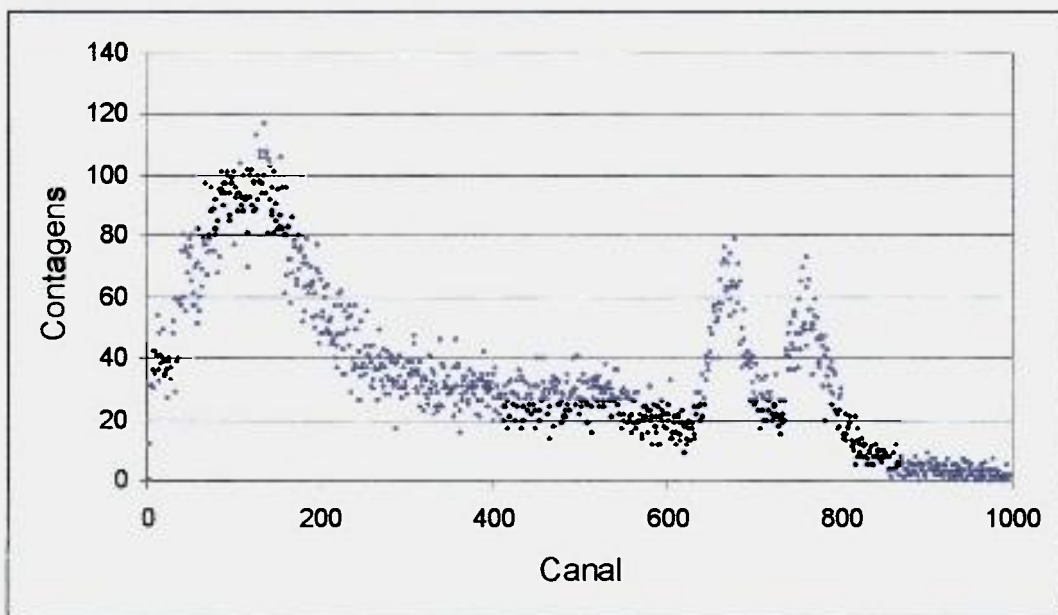


FIGURA 3.10 a - Espectro de energia típico de radiação gama do ^{60}Co

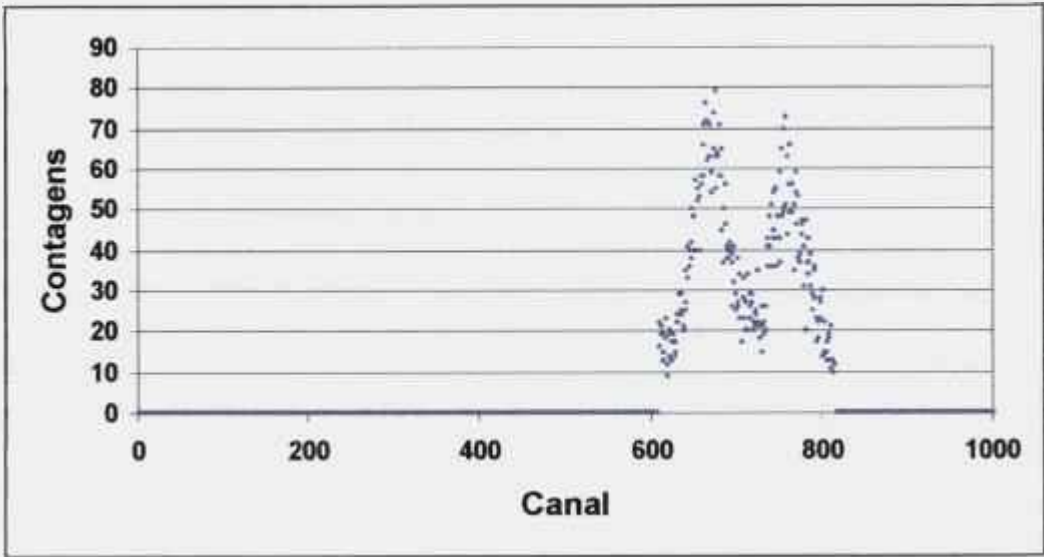


FIGURA 3.10 b - Espectro típico gama selecionado do ^{60}Co

Este sistema é usado para o ajuste das condições eletrônicas seja da via gama, como da via beta. Para esta última a seleção é feita apenas para discriminar o ruído. Na figura 3.11, é apresentado o espectro típico beta, já discriminado o ruído eletrônico.

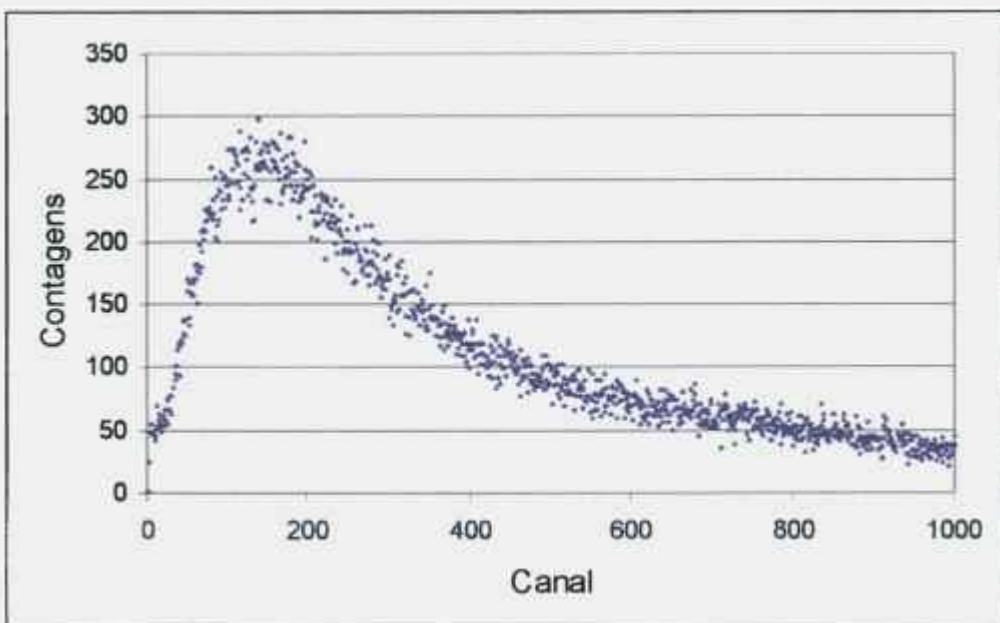


FIGURA 3.11 - Espectro típico beta do ^{60}Co

3.2.2 Sistema auxiliar para distribuição de tempo

A distribuição de tempo visa ajustar o tempo de chegada dos pulsos beta e gama à unidade de coincidência, para que sejam eliminadas as coincidências acidentais, ou seja, a detecção de um pulso β - γ , porém não provenientes de uma mesma desintegração. Para o ajuste dos tempos de chegada, determina-se a distribuição de tempo relativa dos pulsos gama em relação aos pulsos beta fazendo uso de um conversor de tempo para altura de pulso (TAC – Time Amplitude Converter) em conexão com o analisador multicanal. Dessa forma para obter-se uma diferença de tempo nula entre a chegada dos dois pulsos, (beta e gama) no contador de coincidências, os tempos de atrasos individuais entre as duas vias devem ser ajustados.

A distribuição de tempo da via β - β' é feita da seguinte maneira:

Os pulsos provenientes do discriminador beta são enviados simultaneamente para o módulo gerador de pulso e atraso (GDG – Gate and Delay Generator) e para o conversor de tempo em altura de pulso (TAC – Time Amplitude Converter). Dessa forma o pulso enviado diretamente para o conversor de tempo em altura de pulso dará o comando para o início da contagem, e o pulso atrasado, proveniente do módulo gerador de pulso e atraso, dará o comando para o término da contagem. Assim o mesmo pulso enviado, será o mesmo pulso atrasado, que será responsável pelo início e término da contagem, o que justifica a distribuição discreta do espectro de tempo. A partir daí identifica-se a posição no multicanal. O diagrama de bloco que demonstra as conexões explicadas acima é apresentado na figura 3.12.

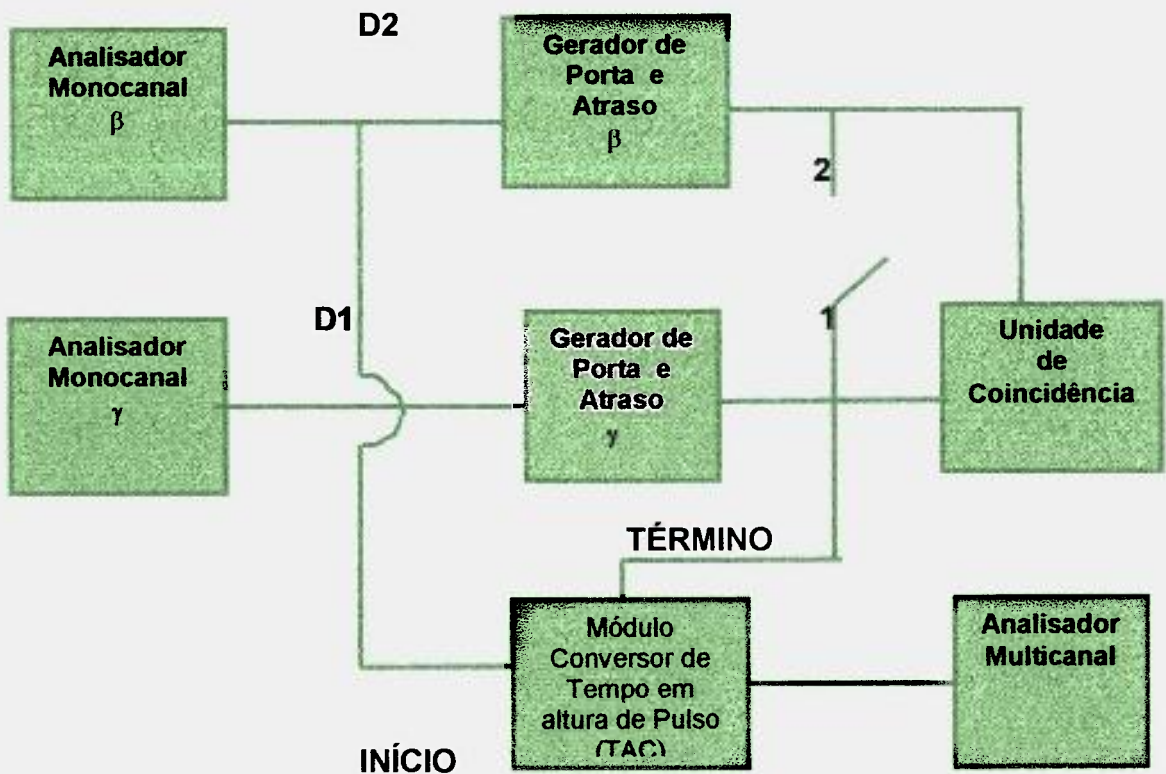


FIGURA 3.12 – Diagrama de bloco para distribuição de tempo para via β - γ

Para a distribuição de tempo da via β - γ , procedemos de maneira análoga para a obtenção da distribuição de tempo para a via β - β^1 , Sendo que agora os pulsos provenientes do analisador monocanal beta serão os responsáveis pelo início da contagem, e os pulsos atrasados provenientes do módulo gerador de pulso e atraso gama, será o responsável pelo término da contagem.

O tempo de chegada entre os pulsos gama e beta serão então registrados no multicanal. Se houver diferença entre os tempos, é feito um ajuste para os atrasos, de forma que as duas distribuições tenham sua centróide no mesmo canal do multicanal para que seja obtida a distribuição de tempo. Na figura 3.13 é mostrado um diagrama que representa a distribuição de tempo.

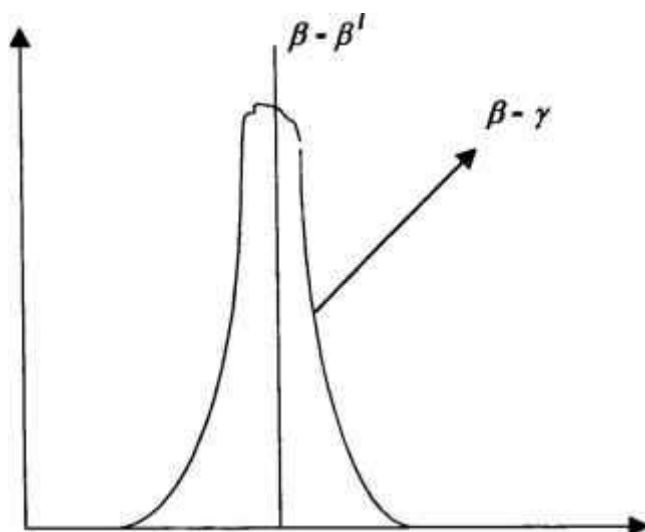


FIGURA 3.13 – Diagrama representativo da distribuição de tempo para as vias β e γ .

3.3 Sistema de espectrometria gama com detetor semicondutor HPGE

O Germânio é um semi-condutor utilizado para detecção de radiações eletromagnéticas tais como as radiações gama e X. O princípio físico da detecção consiste na produção de pares elétron – lacuna, quando estas radiações emitidas pela fonte interagem com o semicondutor.

As radiações gama emitidas pela fonte são coletadas, amplificadas e distribuídas pelo Conversor Analógico Digital (ADC) do analisador multicanal. Esta distribuição de pulsos amplificados gera então um histograma que relaciona as energias absorvidas com as suas respectivas quantidades.

O detetor de Germânio utilizado no Laboratório de Metrologia é de fabricação Canberra modelo GR1520, com um diâmetro de 46,5 mm e altura de 45,5 mm. Ele opera envolvido em uma blindagem de chumbo com espessura de 10 cm. O semicondutor opera a uma tensão pre-estabelecida de -4000 V Na figura 3.14 é apresentado o diagrama de bloco do HPGE.

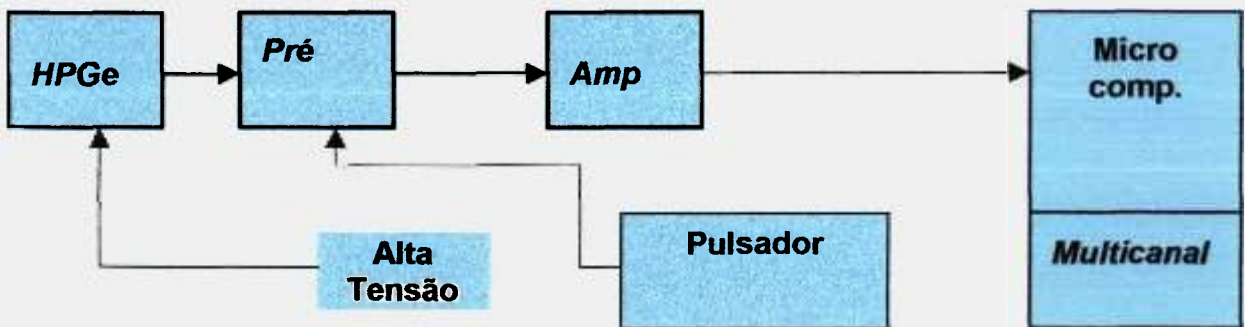


FIGURA 3.14 - Diagrama de bloco da eletrônica associada ao detetor HPGE

4 PADRONIZAÇÃO DOS RADIONUCLÍDEOS ^{51}Cr E ^{153}Sm

4.1 Padronização do ^{51}Cr

4.1.1 Esquema de decaimento do ^{51}Cr

O ^{51}Cr decai com uma meia vida de $(27,703 \pm 0,004)$ dias pelo processo de captura eletrônica, com 90,15% para o estado fundamental do ^{51}V e 9,85% populando o estado excitado do ^{51}V , que se desexcita pela emissão da radiação gama de 320 keV. Na figura 4.1 é apresentado o esquema de decaimento do ^{51}Cr [Firestone, 1996]. Na tabela 4.1 são apresentadas as energias e intensidades das radiações emitidas pelo ^{51}Cr [Lagoutine, 1984].

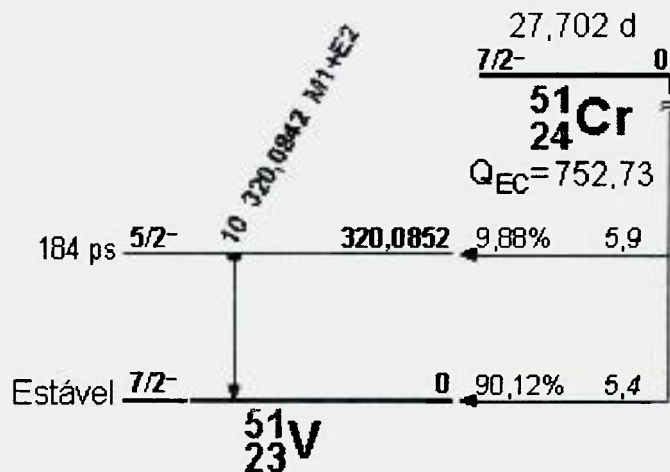


FIGURA 4.1 – Esquema de decaimento do ^{51}Cr (energias em keV)

[Firestone, 1996]

TABELA 4.1 – Radiações, energias e intensidades emitidas pelo ^{51}Cr [Lagoutine, 1984]

Radiação	Energia (keV)	Intensidade Absoluta (%)
Captura Eletrônica		
ε_1	$431,2 \pm 0,9$	$9,85 \pm 0,09$
ε_2	$751,3 \pm 0,9$	$90,15 \pm 0,09$
Elétrons Auger		
$E_{AK} - KLL$	$4,16-4,38$	$66,8 \pm 0,9$
$E_{AK} - KLX$	$4,76-4,90$	$66,8 \pm 0,9$
$E_{AK} - KXY$	$5,32-5,46$	$66,8 \pm 0,9$
Emissão Eletrônica		
E_{AL}	$0,4 - 0,6$	150 ± 8
E_{CK}	$314,6191 \pm 0,0009$	$0,015 \pm 0,002$
E_{CL}	$319,45 - 319,57$	$\sim 0,001$
E_{CM}	$320,01 - 320,08$	$\sim 0,0005$
Radiação X		
X_L	$0,45 - 0,59$	$0,35 \pm 0,05$
$X_{K\alpha 2}$	$4,94464$	$22,6 \pm 0,7$
$X_{K\alpha 1}$	$4,95220$	$22,6 \pm 0,7$
$X_{K\beta 13}$	$5,42729$	$22,6 \pm 0,7$
$X_{K\beta 5}$	$5,4629$	$22,6 \pm 0,7$
Radiação gama		
γ	$320,0842 \pm 0,0009$	$9,85 \pm 0,09$

4.1.2 Aplicação do método de coincidências para padronização do ^{51}Cr

Para a padronização do ^{51}Cr no sistema $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$ pelo método de coincidências, foi selecionada a energia gama de 320 keV. A padronização foi feita medindo-se os raios-X e elétrons Auger provenientes do processo de captura eletrônica no detetor proporcional em coincidência com o gama de 320 keV detectado no cristal cintilador. A medida foi feita utilizando-se dois sistemas eletrônicos associados, sistema eletrônico convencional e sistema TAC, descritos no capítulo 3.

As expressões das taxas de contagem para a padronização do ^{51}Cr são apresentadas a seguir.

As contagens no contador proporcional ($N_{X,A}$) são dadas por:

$$N_{X,A} = N_0 \left[\varepsilon_{X,A} + (1 - \varepsilon_{X,A}) \frac{\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{(1 + \alpha)} \right] \quad (4.1)$$

onde:

N_0 = Taxa de desintegração (atividade)

$\varepsilon_{X,A}$ = Eficiência de detecção dos raios-X e elétrons Auger provenientes do processo de captura eletrônica

α = Coeficiente de conversão interna

ε_{ce} = Eficiência de detecção dos elétrons de conversão interna

$\varepsilon_{\beta\gamma}$ = Eficiência do detetor proporcional para a radiação gama.

As contagens no cristal cintilador (N_γ) são dadas por

$$N_\gamma = N_0 \frac{\varepsilon_\gamma}{1+\alpha} \quad (4.2)$$

Sendo ε_γ a eficiência gama do cristal cintilador.

As contagens de coincidência (N_c) são dadas por:

$$N_c = N_0 \frac{\varepsilon_\gamma}{1+\alpha} \varepsilon_{X,A} \quad (4.3)$$

Da combinação das três equações teremos

$$\frac{N_{X,A} N_\gamma}{N_c} = N_0 \left[1 + \frac{(1 - \varepsilon_{X,A}) (\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma})}{\varepsilon_{X,A} (1 + \alpha)} \right] \quad (4.4)$$

como $\varepsilon_{ce} = 1$ para elétrons de energia aproximadamente igual a 300keV e $\varepsilon_{\beta\gamma}$ é muito pequeno, da ordem de 0,05 % [Moura, 1969], e

$$\varepsilon_{X,A} = \frac{N_c}{N_\gamma} \quad (4.5)$$

teremos a equação 4.6. Como

$$\frac{N_{X,A} N_\gamma}{N_c} = N_0 \left[1 + \frac{(1 - N_c / N_\gamma)}{(N_c / N_\gamma)} K_\varepsilon \right] \quad (4.6)$$

com

$$K_{\varepsilon} = \frac{\alpha\varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \quad (4.7)$$

onde K_{ε} é a constante de correção para o esquema de decaimento.

Pela aplicação da técnica de extrapolação da eficiência, descrita no item 2.2.1. teremos o valor de N_0 quando o valor do parâmetro de ineficiência for igual à zero.

4.2 Padronização do ^{153}Sm

4.2.1 Esquema de Decaimento do ^{153}Sm

O ^{153}Sm desintegra com cerca de 79,3% pela via beta populando os níveis excitados do ^{153}Eu e com cerca de 20,7% diretamente para seu estado fundamental, com uma meia-vida de $(46,28 \pm 0,18)\text{h}$ [Firestone, 1996]. Os níveis excitados do ^{153}Eu são despopulados por emissões de fótons sendo os mais intensos com 69,7 keV com probabilidade de emissão de 5,25 % e 103,2 keV com probabilidade de emissão de 28,3%. A seguir, na figura 4.2 é apresentado seu esquema de decaimento.

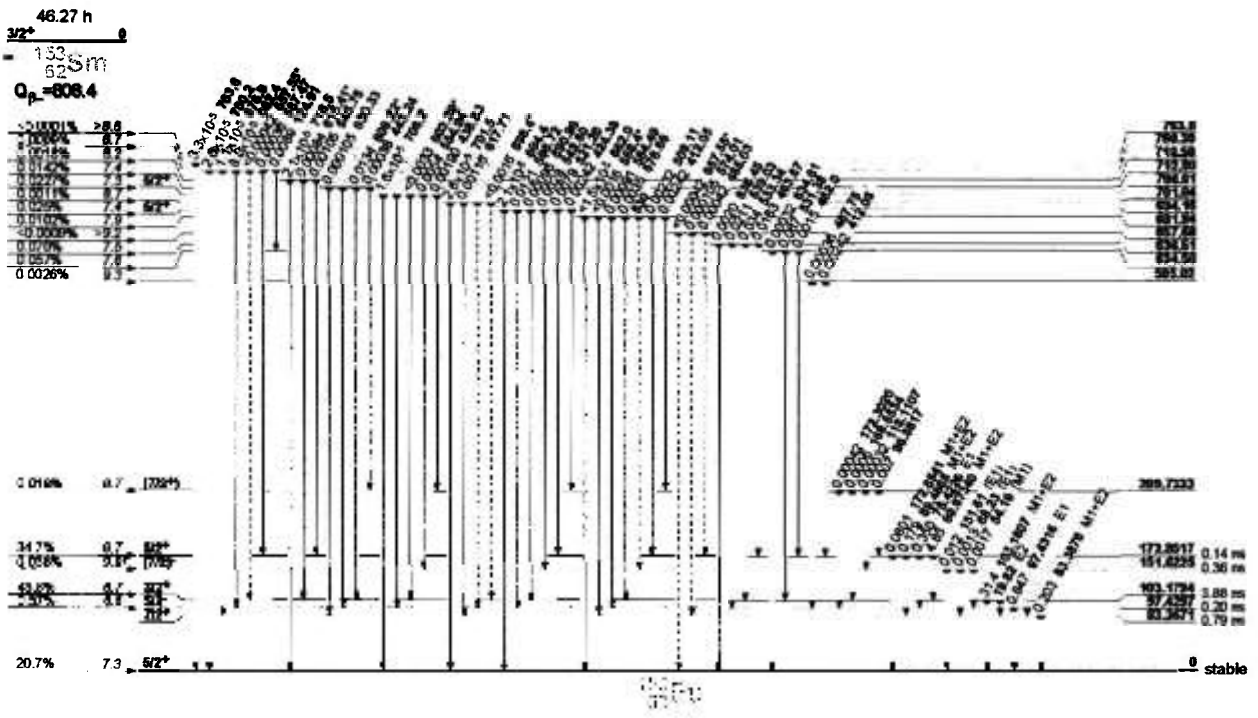


TABELA 4.2 – Principais radiações, energias e intensidades emitidas pelo**¹⁵³Sm**

Radiação	Energia (keV)	Intensidade Absoluta (%)
Elétrons Atômicos		
7	2,09	30 ± 3
8	1,50	19,4 ± 0,20
21	5,09	24,1 ± 0,11
27-54	2,26	6,1 ± 0,3
55	22,6	41,3 ± 0,12
62	2,24	3,64 ± 0,0017
63-90	1,30	1,86 ± 0,06
95	5,13	5,39 ± 0,0016
96-145	2,63	2,63 ± 0,04
Radiação β⁻		
0 – 10 β⁻	0,129	2,57
10 – 20 β⁻	0,385	2,57
20 – 40 β⁻	1,54	5,1
40 – 100 β⁻	10,6	15,2
100 – 300 β⁻	86	44,3
300 – 600 β⁻	118	29,0
600 – 809 β⁻	7,7	1,20

Radiação	Energia (keV)	Intensidade Absoluta (%)
Radiação γ		
Eu L_{α}	5,83	$5,0 \pm 0,3$
Eu L_{β}	6,594	$4,5 \pm 0,4$
Eu $K_{\alpha 2}$	40,902	$18,0 \pm 0,6$
Eu $K_{\alpha 1}$	41,542	$32,4 \pm 0,10$
Eu $K_{\beta 1}$	46,999	$9,4 \pm 0,3$
Eu $K_{\beta 2}$	48,496	$2,85 \pm 0,10$
$\gamma M1+1,9\%E2$	$69,67322 \pm 0,000021$	$5,32 \pm 0,22$
$\gamma M1+1,7\%E2$	$103,1806 \pm 0,0003$	$28,3 \pm 0,6$

4.2.2 Aplicação do método de coincidências para padronização do

¹⁵³Sm

Para a padronização do ¹⁵³Sm no sistema 4π(PC)-NaI(Tl) foi selecionado o pico de absorção total com maior probabilidade de emissão com energia de 103,2 keV. A padronização foi feita medindo-se as partículas beta no contador proporcional em coincidência com os raios gama detectados no cristal cintilador. O sistema eletrônico associado foi o sistema TAC descrito no capítulo 3.

As expressões das taxas de contagem no sistema de coincidências são dadas por:

$$N_{\beta} = N_0 \left[a_1 \varepsilon_{\beta_1} + a_2 \varepsilon_{\beta_2} + a_3 \varepsilon_{\beta_3} + a_1 (1 - \varepsilon_{\beta_1}) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) + a_2 (1 - \varepsilon_{\beta_2}) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right] \quad (4.8)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \frac{a_r \varepsilon_{\gamma 2}}{1 + \alpha} \quad (4.9)$$

$$N_c = N_0 a_2 \varepsilon_2 \frac{\varepsilon_{\gamma 2}}{1 + \alpha} \quad (4.10)$$

$$\frac{N_c}{N_{\gamma}} = \varepsilon_2 \beta_2 \quad (4.11)$$

como

$$\varepsilon_r = f(\varepsilon_{\beta s}) \quad (4.12)$$

podemos obter as eficiências $\varepsilon_{\beta 1}$ e $\varepsilon_{\beta 3}$ em função de $\varepsilon_{\beta 2}$.

Lembrando que para eficiências beta no intervalo de 75 a 100% podemos atribuir à função f uma forma linear sugerida por Baerg [Baerg, 1973], dada por

$$\varepsilon_{\beta r} = 1 - C_r(1 - \varepsilon_{\beta s}) \quad (4.13)$$

onde C_r é aproximadamente constante no intervalo considerado.

Desse modo podemos escrever que

$$\varepsilon_{\beta 1} = 1 - C_1(1 - \varepsilon_{\beta 2}) \quad (4.14)$$

e

$$\varepsilon_{\beta 3} = 1 - C_3(1 - \varepsilon_{\beta 2}) \quad (4.15)$$

substituindo na equação (4.8) teremos:

$$N_{\beta} = N_0 \left\{ \begin{aligned} & a_1(1 - C_1(1 - \varepsilon_{\beta 2})) + a_2\varepsilon_{\beta 2} + a_3(1 - C_3(1 - \varepsilon_{\beta 2})) \\ & + a_1 \left[(1 - (1 - C_1(1 - \varepsilon_{\beta 2}))) \left(\frac{\alpha_1 \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta r}}{1 + \alpha_1} \right) + a_2(1 - \varepsilon_{\beta 2}) \left(\frac{\alpha_2 \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta \gamma}}{1 + \alpha_2} \right) \right] \end{aligned} \right\} \quad (4.16)$$

Como a radiação β_3 vai direto para o estado fundamental, o termo que considera sua ineficiência e consequente detecção dos elétrons de conversão e gama, é igual a zero.

$$N_{\beta} = N_0 \left\{ \begin{aligned} & \mathbf{a}_1 - \mathbf{a}_1 C_1 (1 - \varepsilon_{\beta_2}) + \mathbf{a}_2 \varepsilon_{\beta_2} + \mathbf{a}_3 - \mathbf{a}_3 C_3 (1 - \varepsilon_{\beta_2}) \\ & + \mathbf{a}_1 \left[(1 - 1 + C_1 (1 - \varepsilon_{\beta_2})) \right] \left(\frac{\alpha_1 \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_1} \right) + \mathbf{a}_2 (1 - \varepsilon_{\beta_2}) \left(\frac{\alpha_1 \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_2} \right) \end{aligned} \right\} \quad (4.17)$$

Separando os termos semelhantes teremos

$$N_{\beta} = N_0 \left[\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2 \varepsilon_{\beta_2} + \mathbf{a}_3 + (1 - \varepsilon_{\beta_2}) \left[\mathbf{a}_1 C_1 \left(\frac{\alpha_1 \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_1} \right) \right] + \mathbf{a}_2 \left(\frac{\alpha_2 \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_2} \right) \right] \quad (4.18)$$

Combinando as equações 2.21, 4.18 e 4.10 de modo usual e $\pm N_0 a_1$ e $N_0 a_3$ teremos

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left\{ \mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2 + \mathbf{a}_3 + \left(\frac{1 - \varepsilon_{\beta_2}}{\varepsilon_{\beta_2}} \right) \left[\begin{aligned} & \mathbf{a}_1 \left[C_1 \left(\frac{\alpha_1 \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_1} \right) + 1 \right] \\ & + \mathbf{a}_2 \left(\frac{\alpha_2 \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_2} \right) + \mathbf{a}_3 (C_3 + 1) \end{aligned} \right] \right\} \quad (4.19)$$

considerando

$$\mathbf{a}_1 \left[C_1 \left(\frac{\alpha_1 \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_1} \right) + 1 \right] + \mathbf{a}_2 \left(\frac{\alpha_2 \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_2} \right) + \mathbf{a}_3 (C_3 + 1) = K_e \quad (4.20)$$

e como

$$\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2 + \mathbf{a}_3 \approx 1 \quad (4.21)$$

teremos

$$\frac{N_p N_\gamma}{N_c} = N_0 \left[1 + K_s \left(\frac{1 - N_c / N_\gamma}{N_c / N_\gamma} \right) \right] \quad (4.22)$$

como apresentado no item 2.2.1.

Neste caso vimos que quando o parâmetro $\frac{(1 - N_c / N_\gamma)}{N_c / N_\gamma}$ tende a zero,

a razão das contagens observadas nos dará o valor de N_0 .

5 ANÁLISE DE DADOS E RESULTADOS

5.1 Medidas obtidas na padronização do ^{51}Cr

5.1.1 Preparação de fontes

A solução de ^{51}Cr utilizada foi $^{51}\text{CrCl}_3$ em HCl 0,02N, fornecida pelo Centro de Radiofarmácia do IPEN. Esta solução foi importada do Canadá, e é a mesma fornecida aos centros de medicina nuclear para suas aplicações.

Dela foram preparadas 12 fontes radioativas para medidas no sistema de coincidências.

As fontes foram obtidas depositando-se aliquotas conhecidas do material radioativo sobre filmes de Collodion (nitrato de celulose), com espessura de $\approx 10 \mu\text{g cm}^{-2}$ montados sobre arandelas de aço inoxidável com 0,2 mm de espessura, diâmetro interno de 2 cm e diâmetro externo de 4 cm. O conjunto foi metalizado com Au em ambos os lados totalizando uma espessura final de $30 \mu\text{g cm}^{-2}$ para tornar este substrato condutor. A massa do material radioativo citado acima foi determinada gravimetricamente pelo método do picnômetro [Fonseca, 1997]. Este método consiste na pesagem do recipiente que contém a solução radioativa antes da deposição do material radioativo e após a sua deposição. A balança utilizada foi uma balança de precisão analítica marca Mettler, modelo M5SA. A massa do material radioativo foi determinada pela diferença da pesagem do recipiente entre duas pesagens consecutivas. A massa

obtida foi então corrigida para empuxo. O material radioativo depositado no filme foi secado com jato aquecido de nitrogênio (45°C).

5.1.2 Medidas no sistema 4π (PC) – NaI(Tl)

Para a padronização do ^{51}Cr foram utilizados dois sistemas eletrônicos distintos, o sistema convencional e o sistema TAC. Para as medidas no sistema convencional a eficiência foi variada pela adição de absorvedores externos de Collodiom sobre e sob a fonte, a variação da eficiência foi de 13,5% a 35,5%, respectivamente. Na medida com sistema TAC, a eficiência foi variada pelo uso de absorvedores externos e pelo método de discriminação eletrônica, o qual consiste em discriminar os pulsos de menor energia por meio do analisador monocanal. O intervalo de variação da eficiência foi de 15,0% a 31,5% pelo uso de absorvedores externos e de 13,3% a 31,0% pelo método de discriminação eletrônica.

A atividade das fontes e o parâmetro de ineficiência foram calculados, quando da medida no sistema convencional, pelo programa DILUI [Koskinas, 2000], desenvolvido no Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN), aplicando as correções para radiação de fundo, tempo morto, coincidências acidentais e decaimento, conforme especificado no item 2.3.

Para as medidas com o sistema TAC, a análise do espectro registrado no multicanal foi feita por meio do programa CONTAC [Dias, 2001] também desenvolvido no LMN, aplicando as correções citadas anteriormente.

5.1.2.1 Resultados da Atividade com o Sistema Eletrônico Convencional

Os dados obtidos por meio do sistema eletrônico convencional são mostrados na tabela 5.1, nesta tabela são apresentadas: as razões das contagens por unidade de massa com respectivas incertezas, os parâmetros de eficiência e de ineficiência obtidos pelo uso de absorvedores externos colocados sob e sobre as fontes.

TABELA 5.1 – Variação da eficiência - Sistema convencional

Medida	$N_{X,A}N_{\gamma}/N_c$ ($\times 10^6 \text{ Bq g}^{-1}$)	N_c/N_{γ}	$(1-N_c/N_{\gamma})/N_c/N_{\gamma}$
1	$1,251 \pm 0,006$	$0,355 \pm 0,003$	$1,817 \pm 0,002$
2	$1,249 \pm 0,007$	$0,261 \pm 0,004$	$2,832 \pm 0,002$
3	$1,255 \pm 0,009$	$0,135 \pm 0,004$	$6,4254 \pm 0,0006$
4	$1,258 \pm 0,012$	$0,154 \pm 0,006$	$5,491 \pm 0,001$
5	$1,273 \pm 0,020$	$0,148 \pm 0,009$	$5,776 \pm 0,002$
6	$1,258 \pm 0,013$	$0,159 \pm 0,006$	$5,287 \pm 0,001$
7	$1,258 \pm 0,008$	$0,174 \pm 0,004$	$4,7390 \pm 0,0008$
8	$1,250 \pm 0,010$	$0,175 \pm 0,006$	$4,721 \pm 0,001$
9	$1,284 \pm 0,013$	$0,239 \pm 0,014$	$3,183 \pm 0,558$

Na tabela 5.2 são apresentadas as incertezas parciais com respectivas correlações consideradas.

TABELA 5.2 - Tabela das incertezas com respectivas correlações

Medida	$\sigma_{\text{estatístico}}$	σ_{massa}	$\sigma_{\text{decaimento}}$	σ_{bg}
1	0,75	0,19	0,08	0,08
2	0,60	0,17	0,08	0,09
3	0,95	0,28	0,06	0,09
4	0,90	0,38	0,06	0,17
5	1,58	0,17	0,08	0,09
6	1,06	0,16	0,09	0,09
7	0,44	0,11	0,08	0,09
8	0,65	0,17	0,08	0,09
9	0,54	0,17	0,08	0,09
Correlação	0	1	1	0

a) 1 = correlacionado
0 = não correlacionado

Onde:

$\sigma_{\text{estatístico}}$ = Incerteza estatística

σ_{massa} = Incerteza na massa

$\sigma_{\text{decaimento}}$ = Incerteza na correção para decaimento

σ_{bg} = Incerteza na radiação de fundo.

Na figura 5.1, temos a curva da razão das taxas de contagem obtidas versus o parâmetro de ineficiência $(1 - N_c / N_\gamma)(N_c / N_\gamma)$. Os pontos cheios correspondem aos dados experimentais com suas respectivas barras de incertezas e a linha contínua corresponde à curva ajustada.

Os parâmetros da curva foram obtidos pelo método de mínimos quadrados com o programa LINFIT [Dias, 1996] desenvolvido no LMN. Nas tabelas 5.3, 5.4 são apresentados os parâmetros do ajuste e respectiva matriz de entrada dos dados, e na tabela 5.5 os parâmetros obtidos para o ajuste de grau zero. A escolha do grau do polinômio foi feita pela análise de variâncias empregando o teste F [Atalla, 1978], apresentado no item 5.2. Por este teste foi constatado que o valor de N_0 é dado pelo parâmetro obtido no ajuste de grau zero.

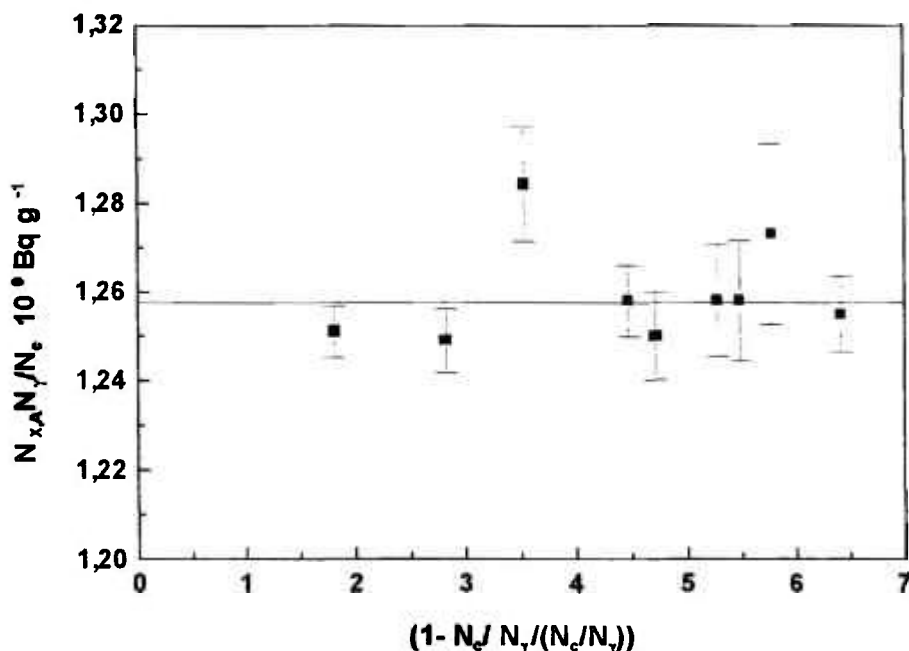


FIGURA 5.1 - Curva da extrapolação linear da eficiência com absorvedores utilizando o sistema eletrônico convencional

TABELA 5.3 - Parâmetros do ajuste de grau 1 para o ^{51}Cr , utilizando o sistema eletrônico convencional.

Parâmetro	Valor ($\times 10^6 \text{ Bq g}^{-1}$)	Matriz de Covariância dos Parâmetros ($\times 10^7$)	
A	$1,249 \pm 0,008$	5,9150	
B	$0,0015 \pm 0,0018$	-1,2461	0,3244

TABELA 5.4 - Matriz de correlação para os dados de entrada

Medida									
1	1000								
2	562	1000							
3	447	493	1000						
4	395	433	345	1000					
5	320	352	280	247	1000				
6	475	523	417	365	298	1000			
7	620	682	544	478	388	577	1000		
8	546	601	479	421	342	508	663	1000	
9	582	641	511	449	365	542	708	624	1000

TABELA 5.5 - Parâmetros do ajuste de grau 0 para o ^{51}Cr , utilizando o sistema eletrônico convencional.

Parâmetro	Valor ($\times 10^6 \text{ Bq g}^{-1}$)	Matriz de Covariância dos Parâmetros ($\times 10^7$)
A	$1,2474 \pm 0,0055$	2,9785

5.1.2.2 Resultados de atividade obtidos para o sistema eletrônico TAC

A seguir serão apresentados os resultados obtidos no sistema eletrônico TAC fazendo o uso de absorvedores externos e fazendo o uso de discriminação eletrônica.

5.1.2.2.1 Resultados obtidos no sistema Tac com uso de absorvedores

externos

Os dados obtidos com o sistema eletrônico TAC são apresentados a seguir. Na tabela 5.6 são mostrados os dados obtidos pela variação da eficiência pelo uso de absorvedores externos. Na tabela 5.7 são apresentadas as incertezas parciais com respectivas correlações consideradas.

TABELA 5.6 - Variação da eficiência utilizando o sistema TAC e

Absorvedores externos

Medida	$N_{x,A}N_{\gamma}/N_c$ ($\times 10^6$ Bq g $^{-1}$)	N_c/N_{γ}	$(1-N_c/N_{\gamma})/N_c/N_{\gamma}$
1	1,268 ± 0,010	0,314 ± 0,001	2,176 ± 0,001
2	1,257 ± 0,011	0,314 ± 0,006	2,187 ± 0,008
3	1,249 ± 0,007	0,24 5± 0,007	2,786 ± 0,009
4	1,244 ± 0,008	0,239 ± 0,008	5,429 ± 0,010
5	1,256 ± 0,008	0,358 ± 0,006	5,477 ± 0,010
6	1,250 ± 0,008	0,212 ± 0,007	5,635 ± 0,009

TABELA 5.7 - Tabela das incertezas com respectivas correlações

Medida	$\sigma_{\text{estatístico}}$	σ_{massa}	$\sigma_{\text{decaimento}}$	σ_{bg}
1	0,58	0,10	0,32	0,07
2	0,46	0,10	0,28	0,06
3	0,63	0,10	0,40	0,09
4	0,55	0,10	0,32	0,06
5	0,58	0,10	0,32	0,07
6	0,37	0,10	0,27	0,05
Correlação^a	0	1	1	0

a) 1 = correlacionado
0 = não correlacionado

Na figura 5.2 é apresentada a curva das razões das contagens versus o parâmetro de ineficiência a qual foi variada pelo uso de absorvedores externos. O valor de N_0 extrapolado foi obtido pelo ajuste de um polinômio de grau 0 (constante).

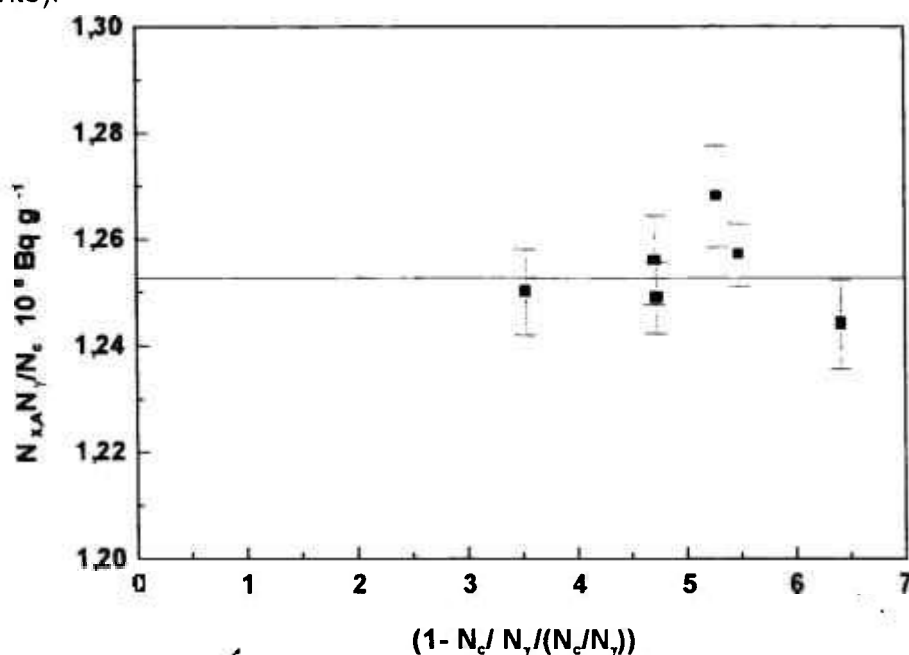


FIGURA 5.2 - Curva de extrapolação da eficiência para o ^{51}Cr , utilizando o sistema eletrônico TAC com absorvedores externos.

Nas tabelas 5.8 e 5.9 são apresentados os parâmetros do ajuste para polinômio de grau um com respectiva matriz dos dados de entrada e na tabela 5.10 o parâmetro do ajuste para polinômio de grau zero. A análise do grau do polinômio é apresentada no item 5.2.

TABELA 5.8 - Parâmetros de ajuste de grau um utilizando sistema TAC com absorvedores externos

Parâmetro	Valor ($\times 10^6$ Bq g ⁻¹)	Matriz de Covariância dos Parâmetros ($\times 10^7$)	
A	1,2611 \pm 0,0075	5,6429	
B	-0,0024 \pm 0,0017	-0,9636	0,2752

TABELA 5.9 - Matriz de correlação para os dados de entrada

Medida						
1	1000					
2	286	1000				
3	282	310	1000			
4	269	297	293	1000		
5	258	285	281	269	1000	
6	314	347	340	327	314	1000

TABELA 5.10 - Parâmetros de ajuste de grau zero

Parâmetro	Valor ($\times 10^6$ Bq g ⁻¹)	Matriz de Covariância dos Parâmetros ($\times 10^7$)
A	1,2527 \pm 0,0048	2,2689

5.1.2.2.2 Resultados obtidos no sistema TAC com discriminação eletrônica

De modo análogo, na tabela 5.11 e 5.12 são apresentados os dados obtidos variando-se a eficiência pelo método de discriminação eletrônica e as respectivas incertezas.

TABELA 5.11 - Variação da eficiência utilizando TAC e discriminação eletrônica

Medida	$N_{x,A}N_{\gamma}/N_c$ ($\times 10^6$ Bq g $^{-1}$)	N_c/N_{γ}	$(1-N_c/N_{\gamma})/N_c/N_{\gamma}$
1	1,257 ± 0,011	0,314 ± 0,006	2,187 ± 0,008
2	1,259 ± 0,011	0,310 ± 0,006	2,230 ± 0,008
3	1,259 ± 0,009	0,246 ± 0,004	3,070 ± 0,006
4	1,248 ± 0,009	0,239 ± 0,004	3,183 ± 0,006
5	1,244 ± 0,009	0,359 ± 0,004	3,240 ± 0,006
6	1,250 ± 0,010	0,213 ± 0,005	3,703 ± 0,006
7	1,243 ± 0,010	0,207 ± 0,005	3,839 ± 0,006
8	1,237 ± 0,013	0,141 ± 0,007	6,060 ± 0,008
9	1,269 ± 0,013	0,137 ± 0,007	6,312 ± 0,008
10	1,226 ± 0,013	0,134 ± 0,007	6,467 ± 0,008

TABELA 5.12 - Tabela das incertezas em (%) com respectivas correlações

Medida	$\sigma_{\text{estatístico}}$	σ_{massa}	$\sigma_{\text{decaimento}}$	σ_{bg}
1	0,70	0,19	0,51	0,09
2	0,54	0,19	0,43	0,08
3	0,65	0,19	0,43	0,08
4	0,67	0,19	0,43	0,08
5	0,91	0,19	0,45	0,09
6	0,90	0,19	0,45	0,09
7	0,90	0,19	0,45	0,09
8	0,70	0,19	0,53	0,09
9	0,54	0,19	0,43	0,08
10	0,54	0,19	0,43	0,08
Correlação^a	0	1	1	0

a) 1 = correlacionado
0 = não correlacionado

A figura 5.3 mostra a curva de extrapolação da eficiência para o ^{51}Cr , utilizando o sistema eletrônico TAC com discriminação eletrônica. O valor de N_0 é dado pelo polinômio de grau zero.

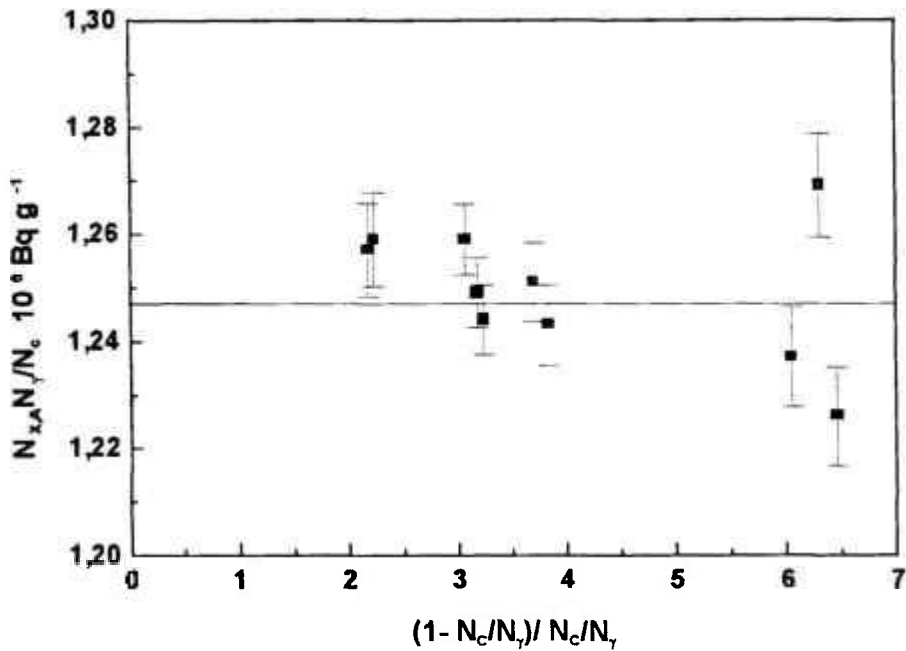


FIGURA 5.3 - Curva de extrapolação da eficiência para o ^{51}Cr , utilizando o sistema eletrônico TAC com discriminação eletrônica.

Nas tabelas 5.13 e 5.14 são apresentados os parâmetros do ajuste para polinômio de grau um com respectiva matriz de correlação para os dados de entrada e na tabela 5.15 o parâmetro do ajuste para polinômio de grau zero. A análise do grau do polinômio é apresentada no item 5.2.

TABELA 5.13 - Parâmetros de ajuste da curva de extrapolação da eficiência para o ^{51}Cr , utilizando o sistema eletrônico TAC com discriminação eletrônica.

Parâmetro	Valor ($\times 10^6 \text{ Bq g}^{-1}$)	Matriz de Covariância dos Parâmetros ($\times 10^8$)
A	$1,2609 \pm 0,0103$	1,05711
B	$-0,00326 \pm 0,00207$	-0,16610 0,0429915

TABELA 5.14 - Matriz de correlação para os dados de entrada

Medida										
1	1000									
2	702	1000								
3	686	677	1000							
4	678	670	653	1000						
5	643	630	618	612	1000					
6	648	635	623	617	587	1000				
7	648	635	623	617	587	592	1000			
8	714	703	686	680	644	649	649	1000		
9	701	699	677	670	630	635	635	703	1000	
10	701	699	677	670	630	635	635	703	699	1000

TABELA 5.15 - Parâmetros de ajuste de grau zero para sistema TAC com discriminação eletrônica

Parâmetro	Valor ($\times 10^6 \text{ Bq g}^{-1}$)	Matriz de Covariância dos Parâmetros ($\times 10^7$)
A	$1,2575 \pm 0,00546$	2,97846

5.1.3 Análise estatística dos resultados obtidos para o ^{51}Cr

Para o ^{51}Cr , verificou-se a necessidade da comprovação do grau do polinômio a ser adotado para os grupos de dados obtidos, a fim de obter-se a existência ou não de uma “aparente” inclinação dada pela presença do termo linear.

Para verificação da existência da regressão foi aplicado o teste estatístico F [Atalla, 1978] que possibilita a escolha do grau do polinômio. O formalismo deste teste é apresentado na tabela 5.16.

TABELA 5.16 - Tabela ANOVA

FONTE DE VARIAÇÃO	Soma de Quadrados	Graus de Liberdade	Quadrado Médio	F
Devido à Regressão	SQL	M	SQL	F_{tab}
Resíduo	SQR	n-2	$S^2 = \text{SQR}/(n-2)$	F_0
Total	$\Sigma (y_i - \bar{y})^2$	n-1		

As fontes de variação são:

Devida à regressão:

$$SQL = b^2 \sum (x_i - \bar{x})^2$$

Fonte de variação residual

$$SQR = \sum (y_i - Y_i)^2$$

Neste formalismo

x_i = Dados experimentais de x

\bar{x} = Valor médio de x

y_i = Dados experimentais de y

\bar{y} = Valor médio de y

b = Valor do coeficiente angular da reta ajustada.

A análise de variância é concluída calculando-se

$$F_{\text{exp}} = \frac{SQR}{S^2}$$

e as hipóteses estatísticas são:

H_0 = Não existe regressão

H_1 = Existe regressão.

$$\text{Se } F_{\text{exp}} < F_{0(1, n-2)}$$

Aceitamos H_0 , isto é não há regressão.

Para os três métodos utilizados:

- a) Sistema convencional com absorvedores externos
- b) Sistema TAC com absorvedores externos
- c) Sistema TAC com discriminação eletrônica

Temos:

**TABELA 5.17 - Tabela ANOVA para o sistema convencional com
Absorvedores externos**

FONTE DE VARIÇÃO	Soma de Quadrados	Graus de Liberdade	Quadrado Médio	F
Devido à Regressão	$4,5723 \times 10^7$	1	$4,5723 \times 10^7$	0,3088
Resíduo	$1,0365 \times 10^9$	7	$2,0545 \times 10^{10}$	5,59
Total	$1,0365 \times 10^9$	8		

**TABELA 5.18 - Tabela ANOVA Para o sistema TAC com absorvedores
externos**

FONTE DE VARIÇÃO	Soma de Quadrados	Graus de Liberdade	Quadrado Médio	F
Devido à Regressão	$8,5303 \times 10^7$	1	$8,5303 \times 10^7$	1,2891
Resíduo	$2,6470 \times 10^8$	4	$6,6174 \times 10^7$	7,71
Total	$3,5000 \times 10^8$	5		

TABELA 5.19 -Tabela ANOVA para o sistema TAC com discriminação eletrônica

FONTE DE VARIACÃO	Soma de Quadrados	Graus de Liberdade	Quadrado Médio	F
Devido à Regressão	$2,5874 \times 10^8$	1	$2,5874 \times 10^8$	1,8130
Resíduo	$1,1417 \times 10^9$	8	$1,4271 \times 10^8$	5,32
Total	$1,4004 \times 10^9$	9		

A tabela que apresenta os valores calculados para a análise de variância para um nível de significância de 95% está apresentada na tabela 5.20.

TABELA 5.20 - Tabela dos valores determinados para o teste F

AMOSTRA	F	F_{tab}	Existe Regressão
A	0,3088	5,59	Não
B	1,8130	7,71	Não
C	1,2891	5,32771	Não

Dessa maneira podemos comprovar estatisticamente que nenhuma das três curvas apresenta regressão linear para um polinômio de grau um.

5.1.4 Comparação dos resultados obtidos na padronização do ^{51}Cr

Na tabela 5.21 são apresentados de modo comparativo os resultados obtidos pelos três métodos utilizados

TABELA 5.21 - Resultados obtidos com ajuste de grau zero para as curvas do ^{51}Cr

Método	Atividade (MBq g^{-1})
Convencional com absorvedores externos	$1,2474 \pm 0,0055$
TAC - Discriminação Eletrônica	$1,2575 \pm 0,0065$
TAC - Absorvedores Externos	$1,2527 \pm 0,0048$

Como pode ser observado, os resultados são concordantes dentro das incertezas experimentais, o que demonstra que o método TAC é válido e poderá ser utilizado para outras padronizações.

5.2 Resultados obtidos para a padronização do ^{153}Sm

5.2.1 Preparação das fontes

A solução de ^{153}Sm utilizada foi produzida por irradiação no reator IEA-R1 com potência 2 MW, em um fluxo de neutrons térmicos de $2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, pela reação $^{152}\text{Sm}(n,\gamma)^{153}\text{Sm}$, na forma de óxido de Sm isotopicamente enriquecido com ^{152}Sm 99% colocado em um tubo de quartzo.

Depois da irradiação, o óxido foi dissolvido em 0,1 N HCl, Desta solução foram preparadas, como descrito no ítem 5.1.1, 10 fontes radioativas para medidas no sistema de coincidência, e preparada uma ampola selada com massa conhecida, para medida no espectrômetro de HPGe.

5.2.2 Medida no Sistema 4π (PC) – NaI(Tl)

As fontes radioativas foram medidas no sistema 4π (PC)-NaI(Tl), descrito no capítulo 3, utilizando o sistema eletrônico TAC. A energia gama selecionada foi a de 103,2 keV.

A eficiência beta foi variada no intervalo de 92% a 78%, adicionando-se absorvedores externos de Collodium com a espessura de $40 \mu\text{g cm}^{-2}$ sob e sobre a fonte.

A atividade das fontes com as respectivas eficiências foram calculadas de modo semelhante ao do ^{51}Cr utilizando-se o programa CONTAC. As fontes foram medidas durante um tempo pré-estabelecido (≈ 2000 segundos), após o qual é feita uma medida da radiação de fundo, retirando-se a fonte do detetor.

Os dados obtidos são mostrados na tabela 5.22, em que são apresentadas a razão das contagens por unidade de massa, ($N_{\beta}N_{\gamma}/N_c.m$) com as respectivas incertezas, o parâmetro de eficiência (N_c/N_{γ}) e o parâmetro de

$$\text{ineficiência} \left(\frac{1 - N_c / N_{\gamma}}{N_c / N_{\gamma}} \right)$$

TABELA 5.22 - Variação da eficiência para o ^{153}Sm

Medida	$N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$ ($\times 10^5 \text{ cps g}^{-1}$)	N_c/N_{γ}	$(1 - N_c/N_{\gamma})/N_c/N_{\gamma}$
1	$2,754 \pm 0,017$	$0,9161 \pm 0,0001$	$0,092 \pm 0,001$
2	$2,763 \pm 0,002$	$0,8880 \pm 0,0001$	$0,126 \pm 0,001$
3	$2,796 \pm 0,002$	$0,8801 \pm 0,0002$	$0,136 \pm 0,002$
4	$2,839 \pm 0,002$	$0,8656 \pm 0,0002$	$0,155 \pm 0,001$
5	$2,829 \pm 0,002$	$0,8348 \pm 0,0003$	$0,198 \pm 0,002$
6	$2,840 \pm 0,002$	$0,8306 \pm 0,0003$	$0,204 \pm 0,002$
7	$2,865 \pm 0,002$	$0,8305 \pm 0,0003$	$0,204 \pm 0,002$
8	$2,830 \pm 0,002$	$0,8277 \pm 0,0003$	$0,208 \pm 0,002$
9	$2,866 \pm 0,001$	$0,7957 \pm 0,0002$	$0,257 \pm 0,001$
10	$2,875 \pm 0,002$	$0,7875 \pm 0,0003$	$0,270 \pm 0,001$

Com estes dados pode ser construída a curva de $N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$ versus o parâmetro de ineficiência apresentada na figura 5.4. O valor da taxa de desintegração foi obtido por ajuste polinomial dos valores experimentais utilizando-se o programa LINFIT (Dias, 2001) desenvolvido no LMN que utiliza o

método dos mínimos quadrados. Os parâmetros do ajuste são apresentados na tabela 5.23 com as respectivas incertezas.

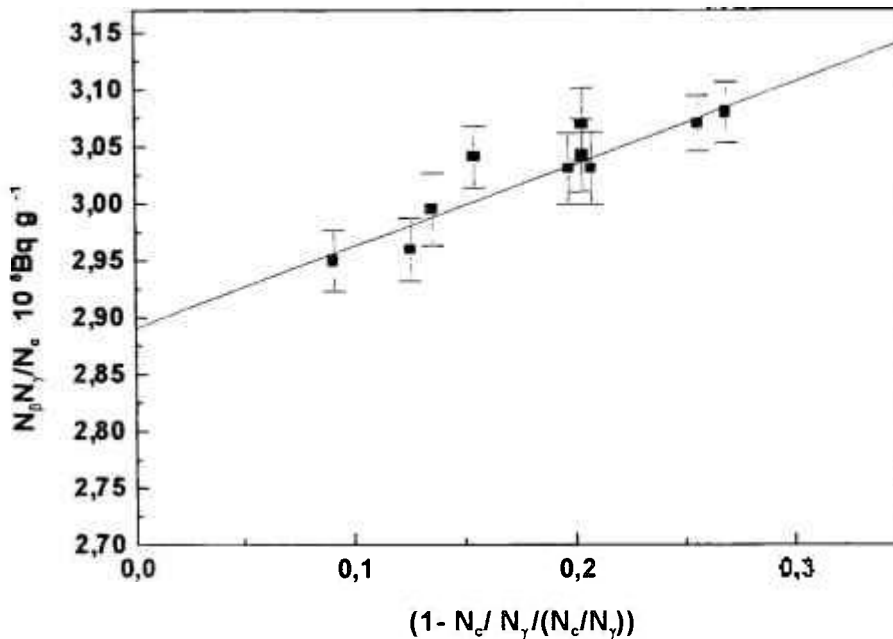


FIGURA 5.4 - Curva da extrapolação linear da eficiência para o ^{153}Sm

TABELA 5.23 - Parâmetros do ajuste da curva de extrapolação da eficiência para o ^{153}Sm , utilizando o sistema eletrônico TAC.

Parâmetro	Valor ($\times 10^6 \text{ Bq g}^{-1}$)	Matriz de Covariância dos Parâmetros ($\times 10^7$)	
A	$2,700 \pm 0,002$	3,9197	
B	$0,669 \pm 0,009$	0,1665	0,8750

Na tabela 5.24 são apresentados as incertezas e na tabela 5.25 a matriz de correlação para os dados de entrada.

TABELA 5.24 - Tabela das incertezas com respectiva correlação

Medida	$\sigma_{\text{estatístico}}$	σ_{massa}	$\sigma_{\text{decaimento}}$
1	0,55	0,20	0,08
2	0,62	0,20	0,08
3	0,48	0,20	0,03
4	0,55	0,20	0,13
5	0,84	0,20	0,17
6	0,62	0,20	0,13
7	0,79	0,20	0,17
8	0,79	0,20	0,18
9	0,79	0,20	0,18
10	0,79	0,20	0,18
Correlação^a	0	1	1

a) 1 = correlacionado
0 = não correlacionado

TABELA 5.25 - Matriz de correlação para os dados de entrada

Medida										
1	1000									
2	120	1000								
3	138	124	1000							
4	142	128	141	1000						
5	103	93	98	118	1000					
6	128	116	127	143	106	1000				
7	109	98	104	124	94	112	1000			
8	110	99	104	127	96	114	102	1000		
9	110	99	104	127	96	114	102	104	1000	
10	110	99	104	127	96	114	102	104	104	1000

5.2.3 Calibração do espectrometro gama

Para a determinação da curva de calibração em eficiência de pico do espectrômetro gama foram utilizadas soluções padrões de ^{137}Cs , ^{133}Ba , ^{60}Co e ^{152}Eu calibradas previamente no laboratório [Fonseca, 1997]. A tabela 5.26 apresenta os radionuclídeos com respectivos dados de meia vida, energias consideradas, atividade das fontes, incertezas e data de referência.

TABELA 5.26 - 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_γ (%)	Atividade (kBq)	Data de Referência
⁶⁰ Co	1925,5 ± 0,5	1173,20	99,86 ± 0,02	345,0 ± 2,5	01/03/1993 às 0:00 h
		1332,50	99,98 ± 0,01		
¹³³ Ba	3862 ± 15	80,90	36,77 ± 0,30	46,55 ± 0,60	01/03/1993 às 0:00 h
		276,40	7,15 ± 0,42		
		302,85	18,30 ± 0,33		
		356,02	61,94 ± 0,22		
		383,85	8,91 ± 0,32		
¹³⁷ Cs	11020 ± 6	661,66	85,1 ± 0,23	521,1 ± 5,6	01/03/1993 às 0:00 h
¹⁵² Eu	4933 ± 11	121,78	61,5 ± 0,06	401,3 ± 6,5	01/03/1993 às 0:00 h
		244,70	7,53 ± 0,53		
		344,28	26,58 ± 0,41		
		411,13	2,24 ± 0,45		
		443,96	3,12 ± 0,45		
		778,90	12,97 ± 0,46		
		867,39	4,21 ± 0,59		
		964,05	14,63 ± 0,41		
1112,09	13,54 ± 0,44				
		1408,02	20,85 ± 0,43		

A figura 5.5, representa a curva de calibração em eficiência versus a energia gama. A curva representada nesta figura foi obtida por meio do ajuste de um polinômio de grau três do tipo $Y = a_0 + a_1X + a_2X^2 + a_3X^3$, onde Y é o logaritmo neperiano da eficiência e X é o logaritmo neperiano da energia .

O programa utilizado para fazer o ajuste foi o programa LOGFIT [Dias, 1997] desenvolvido no LMN para este fim. O programa leva em conta as incertezas parciais e todos os fatores envolvidos para a determinação da eficiência de pico, dada pela equação 2.34 e utilizando a metodologia da matriz de covariâncias descrita no capítulo 2.

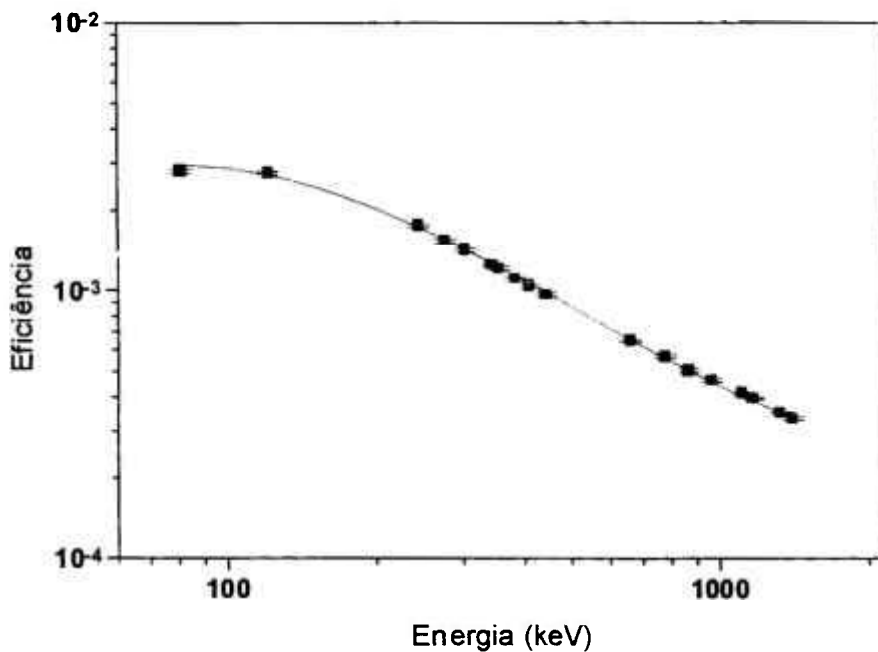


FIGURA 5.5 - Curva de eficiência de pico de energia obtida no HPGe

Na tabela 5.27, são apresentados os valores de eficiência, a incerteza total e as incertezas parciais com os fatores de correlação.

TABELA5.27 - Eficiência do detetor HPGe para cada linha de energia

considerada e as incertezas totais e parciais percentuais com respectivo fator de correlação.

Medida	Energia (keV)	Eficiência $\times 10^{-3}$	σ_{total}	σ_{fg}	σ_{τ}	σ_{fat}	σ_A	σ_s	σ_{ly}
1	81,00	2,7992	1,75	0,36	0,22	1,28	0,68	0,82	0,33
2	121,78	2,7565	1,46	0,36	0,10	1,20	0,58	0,46	0,12
3	244,70	1,7453	1,48	0,36	0,10	1,20	0,45	0,53	0,34
4	276,40	1,5340	1,83	0,36	0,22	1,28	0,43	0,42	1,08
5	344,28	1,2473	1,39	0,36	0,10	1,20	0,39	0,41	0,18
6	302,85	1,4243	1,58	0,36	0,22	1,28	0,41	0,33	0,64
7	356,02	1,2107	1,47	0,36	0,22	1,28	0,39	0,22	0,36
8	383,85	1,10310	1,77	0,36	0,22	1,28	0,37	0,32	1,03
9	411,13	1,0395	1,68	0,36	0,10	1,20	0,36	0,45	0,95
10	443,96	0,9650	1,59	0,36	0,10	1,20	0,35	0,45	0,78
11	661,66	0,64894	1,14	0,36	0,12	1,00	0,30	0,23	0,11
12	778,90	0,56519	1,43	0,36	0,10	1,20	0,28	0,46	0,43
13	867,39	0,50158	1,75	0,36	0,10	1,20	0,26	0,59	1,03
14	964,05	0,46029	1,41	0,36	0,10	1,20	0,25	0,41	0,43
15	1112,10	0,41191	1,43	0,36	0,10	1,20	0,23	0,44	0,47
16	1173,20	0,39447	0,87	0,36	0,03	0,72	0,23	0,02	0,25
17	1332,50	0,35040	0,87	0,36	0,03	0,72	0,21	0,02	0,26
18	1408,00	0,33282	1,40	0,36	0,10	1,20	0,21	0,43	0,39
Correlação				1	1	1	0	0	0

Onde

σ_{total} = Incerteza total

σ_{fg} = Incerteza no fator geométrico obtida por propagação de erros

σ_{τ} = Incerteza no tempo morto obtido pelo programa UNITGAM

σ_{fat} = Incerteza no fator de atenuação obtida por propagação de erros

σ_A = Incerteza na atividade obtida no certificado das fontes padrões

σ_S = Incerteza na área determinada pelo programa ALPINO

σ_{ly} = Incerteza na probabilidade de emissão gama por decaimento.

Abaixo, na tabela 5.28, estão apresentados os parâmetros da curva ajustada e sua respectiva matriz de covariância.

TABELA 5.28 - Parâmetros do ajuste da curva de eficiência do detetor HPGe sua matriz de covariância associada.

Parâmetro	Valor	Matriz de Covariância dos Parâmetros ($\times 10^{-5}$)			
A_0	$-24,91036 \pm 0,00739$	5,45957			
A_1	$10,58438 \pm 0,00385$	-2,84443	1,48467		
A_2	$-1,855046 \pm 0,000662$	0,487252	-0,254736	0,0437753	
A_3	$0,0987847 \pm 0,00374$	-0,0275612	0,143778	-0,00247439	0,00140064

Abaixo na tabela 5.29, é mostrada matriz de covariância para o dados do HPGE

TABELA 5.29 – Matriz de covariância para os dados experimentais do detetor de HPGE

MEDIDA																	
1	3,06																
2	0,00	2,14															
3	0,00	1,58	2,18														
4	2,11	0,00	0,00	3,34													
5	0,00	1,81	1,58	0,00	1,93												
6	2,10	0,00	0,00	1,99	0,00	2,50											
7	2,08	0,00	0,00	1,98	0,00	1,98	2,15										
8	2,07	0,00	0,00	1,98	0,00	1,97	1,96	3,12									
9	0,00	1,79	1,58	0,00	1,72	0,00	0,00	0,00	2,81								
10	0,00	1,78	1,58	0,00	1,72	0,00	0,00	0,00	1,71	2,51							
11	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	1,30						
12	0,00	1,74	1,58	0,00	1,69	0,00	0,00	0,00	1,68	1,68	0,00	2,05					
13	0,00	1,73	1,58	0,00	1,68	0,00	0,00	0,00	1,67	1,67	0,00	1,65	3,06				
14	0,00	1,72	1,58	0,00	1,68	0,00	0,00	0,00	1,67	1,67	0,00	1,65	1,64	2,00			
15	0,00	1,58	1,58	0,00	1,58	0,00	0,00	0,00	1,58	1,58	0,00	1,58	1,58	1,58	2,05		
16	0,00	0,13	0,00	0,00	0,09	0,00	0,00	0,00	0,08	0,08	0,00	0,06	0,06	0,06	0,00	0,76	
17	0,00	0,12	0,00	0,00	0,08	0,00	0,00	0,00	0,08	0,07	0,00	0,06	0,05	0,05	0,00	0,70	0,76
18	0,00	1,58	1,58	0,00	1,58	0,00	0,00	0,00	1,58	1,58	0,00	1,58	1,58	1,58	1,58	0,00	0,00

5.2.4 Resultados da probabilidade de emissão gama por decaimento do



A probabilidade de emissão gama foi determinada de acordo com a medida feita no HPGE, de tal maneira que o tempo de medida do espectro da fonte e da radiação de fundo foi 50000 segundos cada.

O valor da eficiência foi obtido por meio dos parâmetros da curva de eficiência de pico apresentados na tabela 5.28. Na tabela 5.30 são apresentadas as energias medidas com respectivas eficiências de pico e a taxa de emissão de fótons $R(E_\gamma)$ da fonte para as energias de 103 keV e 172 keV.

TABELA 5.30 – Energia e taxa de emissão de fótons determinados duas energias do ^{153}Sm .

Energia (keV)	Eficiência	$R(E_\gamma)$
$103,1806 \pm 0,0003$	$(2,855 \pm 0,023) \times 10^{-3}$	$(7,8075 \pm 0,074) \times 10^4$
$172,85400 \pm 0,000025$	$(2,250 \pm 0,017) \times 10^{-3}$	$(2,1643 \pm 0,028) \times 10^2$

A incerteza na taxa de emissão de fótons $R(E_\gamma)$ foi obtida pela soma quadrática das incertezas nos fatores: tempo morto, decaimento, variação do volume de líquido da ampola (espessura do vidro), incerteza estatística e incerteza na eficiência.

A probabilidade de emissão gama para as energias em estudo foi determinada dividindo-se a taxa de emissão medida no espectrômetro gama pela atividade específica obtida no sistema de coincidências.

Na tabela 5.31 são apresentadas as incertezas parciais que contribuíram para a incerteza total da probabilidade de emissão gama por decaimento $p(E_\gamma)$.

TABELA 5.31 - Incertezas parciais em porcentagens que contribuíram para incerteza total de $p(E_\gamma)$.

Parâmetros	Energia 103 keV	Energia 172 keV
Eficiência gama	0,82	0,75
Estatística	0,03	0,93
Decaimento	0,02	0,02
Variação da ampola	0,61	0,51
Tempo Morto	0,30	0,30
Massa	0,20	0,20
Atividade	0,73	0,73

Na tabela 5.32 são apresentados os resultados de $p(E_\gamma)$ para as energias de 103 keV e 172 keV obtidas neste trabalho comparadas com os valores de outros autores.

TABELA 5.32 - Probabilidade de emissão gama por decaimento para as energias de 103 e 172 keV do ^{153}Sm em comparação com outros autores.

Energia KeV	Este Trabalho	Schötzig (1999)	Bowles (1998)	Coursey (1987)
103,18	0,2892 (35)	0,2923 (18)	0,285 (5)	0,2982 (36)
172,85	0,000802 (12)	0,000716 (7)	0,00072 (3)	0,000805 (12)

Como pode ser visto, os resultados obtidos para este trabalho concordam com os dados da literatura. Para energia gama de 103 keV o valor obtido neste trabalho concorda com os valores de Schötzig e de Bowles dentro da incerteza experimental. Para a energia gama de 172 keV nosso resultado concorda dentro da incerteza experimental com o valor de Coursey, o que não ocorre para a energia de 103 keV.

6 CONCLUSÕES

Os objetivos propostos neste trabalho foram plenamente atingidos, tendo sido desenvolvidos os métodos de padronização do ^{51}Cr e ^{153}Sm , capacitando o Laboratório de Metrologia Nuclear a produzir fontes padrões desses radionuclídeos.

As medidas de atividade do ^{51}Cr nos dois sistemas eletrônicos, convencional e TAC, foram concordantes demonstrando a validade do sistema TAC proposto pelo LMN.

Este último permitiu a automação da coleção de dados, uma vez que esta é feita diretamente no multicanal acoplado a um microcomputador, no qual os espectros medidos são registrados juntamente com as informações referentes à data e hora da medida. Além de substituir os contadores temporizadores que apresentavam freqüentes problemas de funcionamento.

A medida do ^{153}Sm utilizando o sistema TAC apresentou resultados satisfatórios o que foi corroborado pela medida da probabilidade de emissão gama por decaimento do gama de 103 keV cujo resultado foi concordante dentro da incerteza experimental com os demais valores da literatura apresentados no capítulo 5.

Uma sugestão que poderia ser incluída em um trabalho futuro é a determinação das probabilidades de emissão gama por decaimento das demais energias gama emitidas, que apresentam na literatura valores discrepantes.

REFERÊNCIAS

- ATALLA, L.T., *Interpretação quantitativa de resultados experimentais*, São Paulo, Instituto de energia atômica, 1978. (If.IEA 60).
- BAERG, A.P. **Absolute measurement of radioactivity**, *Metrologia*, 3(4), p: 105 – 108, 1967.
- BAERG, A.P. **The efficiency extrapolation method in coincidence counting**. *Nuclear Instruments and Methods*. 112, p: 143 – 150, 1973.
- BAERG, A. P. **Variation on the paired source method of measuring dead time**. *Metrologia*, v. 1, n.3 p. 131-133, 1965.
- BAERG, A.P. **Measurement of radioactive desintegration rate by the coincidence method**. *Metrologia*, 2(1), p: 23 – 32, 1966.
- BOWLES, S.A., et. al., **Standardization of ^{153}Sm** , *Appl. Radiat. Isot.* 49, p. 1345-1347, 1998.
- BROWNE, E., and FIRESTONE R.B., *Table of Radioactive Isotopes*. Virginia S. Shirley, Editor, 1986.
- CAMPION, P.J., **Procedures for accurately diluting and dispersing radioactive solutions**. Bureau International de Poids et. Mesures, (Monografie BIPM-1), 1975.
- CAMPION, P.J. **The standardization of radioisotopes by the beta-gama coincidence method using high efficiency detectors**. *Int. J. Appl. Radiat. Iso.*, 4, p: 232 – 248, 1959.
- COX, D.R. ; ISHAM, V. **A bivariate point process connected with electronic counters**. *Proc. Roy. Soc. A*, 356, p: 149 – 160, 1977.
- COURSEY, B.M., et. al., **The Standardization of Samarium – 153**. *Appl. Radiat. Isot.*, 38, p. 31-44, 1987.
- DEBERTIN, K; SCHÖTZIG, U. **Coincidence summing corrections in Ge(Li)-Spectrometry at low source-to-detector distances**. *Nucl. Instrum. And Meth.* 158, 471-477, 1979.
- DIAS, M.S., *Laboratório de Metrologia Nuclear, Relatório interno*, 1996
- DIAS, M.S., *Laboratório de Metrologia Nuclear, Relatório interno*, 1997
- DIAS, M.S., *Laboratório de Metrologia Nuclear, Relatório interno*, 2001
- DIAS, M.S., *Laboratório de Metrologia Nuclear, Relatório Interno*, 2002
- FIRESTONE, R.B. and SHIRLEY, V.S. *Table of Isotopes vol . I* ed. 8 1996.
- FIRESTONE, R.B. and SHIRLEY, V.S. *Table of Isotopes vol . II* ed. 8 1996.
- FIRESTONE, R.B. **Analysis of α , β and γ -ray emission probabilities**. *Nuclear Instruments and Methods.*, A286, p. 584-588, 1990.
- FONSECA, K.A. **Medida absoluta da atividade e determinação da taxa de emissão Gama por decaimento do ^{126}I** . São Paulo; 1997.
Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.

- GERALDO, L.P., and SMITH, D.I., ***Least square methods and covariance matrix applied to the relative efficiency calibration of a Ge(Li) detector.*** São Paulo, Pub. IPEN 243, 1989.
- GERALDO, L. P., and SMITH, D.L. ***Covariance analysis and fitting of germanum gamma-ray detector efficiency calibration data.*** Nuclear Instruments and Methods. A290, p. 499-508, 1990.
- KOSKINAS, M.F. ***Desenvolvimento de um sistema de coincidências para a medida Absoluta da atividade de radionuclídeos empregando detectores de barreira de superfície.*** São Paulo; 1988.
Tese (Doutoramento) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
- KOSKINAS, M.F., ***Laboratório de Metrologia Nuclear, Relatório interno,*** 2000
- KNOLL, G.F. ***Radiation Detection and Measurement.*** Second Edition. Wiley, 1988.
- KRANE, S.K., ***Introductory Nuclear Physics, John Wiley & Sons,*** 1988.
- LAGOUTINE, F.; COURSOLO, N.; LEGRAND, J. ***Table of radionuclídes,*** CEA, 1984.
- MANNHART, W. ***A small guide to generating covariances of experimental data. Braunschweig (GERMANY, F.R.).*** Physikalisch Technische Bundesanstalt, 1981. (PTB-FMRB-84).
- MARQUES, F., ***Isótopo Radioativo alivia dor causada por metástase óssea***
Ciência Hoje on Line – 12/07/2002.
- MOREIRA, D.S. ***Medida absoluta da taxa de desintegração e da probabilidade de emissão gama do ⁴²K.*** São Paulo: 2000.
Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
- MOURA, L.P. ***Método de coincidência generalizado para medida absoluta de atividade de radionuclídeos. Aplicação na determinação do coeficiente de conversão interna da transição de 279 keV do ²⁰³Tl.*** Campinas: 1969.
Tese (Doutoramento) – Universidade de Campinas.
- NATIONAL COUNCIL ON RADIATION PROTECTION AND MEASUREMENTS. ***Handbook of radioactivity measurements procedures,*** Report n. 58, Nov.1978.
- SAHA, G.B., ***Fundamentals of Nuclear Pharmacy,*** Springer 1997.
- SMITH, D.L. ***Generation of the covariance matrix for a set of nuclear data produced by colapsing a larger parent set through the weighted averaging of equivalent data points.*** Nuclear Instruments and Methods., A257, p. 361-364, 1987.
- SMITH, D.L., ***Covariance matrices and applications to the field of nuclear data.*** Idaho Falls, Argonne National Lab., 1981. (ANL/NDM-62).
- SCHÖTZIG, U., et. al., ***Standardization and decay data of ¹⁵³Sm.*** Applied Radiation and Isotopes, 51, p. 169-175, 1999.