



AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**SISTEMA PRIMÁRIO POR COINCIDÊNCIAS $4\pi\beta\text{-}\gamma$ PARA A
PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS EMPREGANDO
CINTILADORES PLÁSTICOS**

AÍDA MARIA BACCARELLI

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

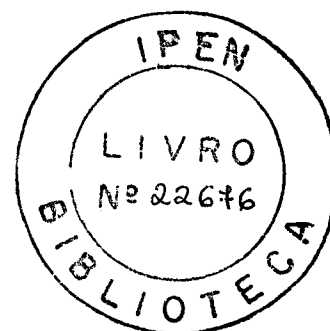
Orientador:
Dr. Mauro da Silva Dias

**São Paulo
2003**

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares
Autarquia Associada à Universidade de São Paulo

**SISTEMA PRIMÁRIO POR COINCIDÊNCIAS $4\pi\beta\text{-}\gamma$ PARA A
PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS EMPREGANDO
CINTILADORES PLÁSTICOS**

AÍDA MARIA BACCARELLI



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

Orientador: **Dr. Mauro da Silva Dias**

São Paulo
2003

À minha mãe,
ao Ricardo e
à Jane
sem o carinho dos quais
nada seria possível.

AGRADECIMENTOS

Ao Dr. Mauro da Silva Dias, meu orientador, pela paciência e estímulo.

À Dra. Marina Fallone Koskinas pelas valiosas sugestões.

À Dra. Margarida Mizue Hamada e equipe, do Centro de Tecnologia da Radiação, pelo fornecimento dos cintiladores plásticos.

Às amigas Claudia Cristina Braga, Denise Simões, Kátia A. Fonseca pela amizade, carinho e incentivo.

Aos integrantes do Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN): Franco Brancaccio; Mauro Takeda; Vanderlei Cardoso; Wilson Lavras e Maurício Marques pela atenção.

À LVK Sistemas e todos os seus integrantes pelo apoio, empréstimo de equipamentos e suporte técnico na área de informática.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), na pessoa do Superintendente Dr. Cláudio Rodrigues, pela oportunidade e apoio para a realização deste trabalho.

"Passei dez anos da minha vida testando aquela equação proposta por Einstein em 1905. Contrariando todas as minhas expectativas, e embora seja completamente sem sentido, em 1915 me vi forçado a considerá-la inequivocamente comprovada, mesmo que ela parecesse violar tudo que conhecíamos sobre a interferência da luz."

Robert Millikan, 1915

SISTEMA PRIMÁRIO POR COINCIDÊNCIAS $4\pi\beta\text{-}\gamma$ PARA A PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS EMPREGANDO CINTILADORES PLÁSTICOS

AÍDA MARIA BACCARELLI

RESUMO

O presente trabalho descreve um sistema de coincidências $4\pi(\alpha,\beta)\text{-}\gamma$ para medida absoluta da atividade de radionuclídeos, o qual emprega cintilador plástico em geometria 4π para detecção de partículas carregadas e um detector NaI(Tl) para detecção de raios gama. Várias dimensões do cintilador plástico foram estudadas a fim de encontrar a melhor configuração para o sistema. Foram padronizados ^{241}Am , ^{18}F , ^{60}Co e ^{133}Ba , radionuclídeos que decaem por emissão de partículas alfa, β^+ , β^- e Captura Eletrônica, respectivamente. Os resultados mostraram excelente acordo com o sistema convencional que emprega um contador proporcional em geometria 4π para detecção de partículas carregadas e raios-X. O sistema desenvolvido no presente trabalho apresenta, em relação ao sistema convencional, algumas vantagens tais como: não necessitar a metalização dos filmes que servem de substrato para as fontes e não utilização de gases especiais dispendiosos. Em relação aos cintiladores líquidos apresentou a vantagem de não necessitar que as fontes sejam manipuladas na ausência de luz e dispensa a necessidade de espera por mais de 24h para que ocorra o decaimento da fosforescência proveniente da luz ambiente. Deste modo, ele pode ser colocado para efetuar as contagens logo após as fontes radioativas serem colocadas no seu interior.

**PRIMARY $4\pi\beta\text{-}\gamma$ COINCIDENCE SYSTEM FOR STANDARDIZATION OF
RADIONUCLIDES BY MEANS OF PLASTIC SCINTILLATORS**

AÍDA MARIA BACCARELLI

ABSTRACT

The present work describes a $4\pi(\alpha,\beta)\text{-}\gamma$ coincidence system for absolute measurement of radionuclide activity using a plastic scintillator in 4π geometry for charged particles detection and a NaI(Tl) crystal for gamma-ray detection. Several shapes and dimensions of the plastic scintillator have been tried in order to obtain the best system configuration. Radionuclides which decay by alpha emission, β^- , β^+ and electron capture have been standardized. The results showed excellent agreement with other conventional primary system which makes use of a 4π proportional counter for X-ray and charged particle detection. The system developed in the present work have some advantages when compared with the conventional systems, namely; it does not need metal coating on the films used as radioactive source holders. When compared to liquid scintillators, is showed the advantage of not needing to be kept in dark for more than 24 h to allow phosphorescence decay of ambient light. Therefore it can be set to count immediately after the sources are placed inside of it.

SUMÁRIO

	Página
1 - INTRODUÇÃO	10
2 - OBJETIVOS	12
3 - REVISÃO DA LITERATURA	16
4 - FUNDAMENTOS TEÓRICOS	20
4.1 - Método de Medida Absoluta da Atividade	20
4.2 - Método de Coincidência	21
4.2.1 - Sensibilidade do detector beta às diferentes radiações	24
4.2.1.1 - Detecção de elétrons de conversão interna	24
4.2.1.2 - Detecção de radiação gama	27
4.2.2 - Sensibilidade do detector gama às diferentes radiações	27
4.2.2.1 - Detecção de partículas beta	27
4.2.2.2 - Detecção de Radiação de Freamento (<i>Bremsstrahlung</i>)	28
4.2.3 - Contagens de coincidências	28
4.2.3.1 - Espalhamento Compton.	28
4.2.3.2 - Correlação angular beta-gama	29
4.2.4 - Esquemas de decaimento simples	29
4.2.5 - Esquemas de decaimento complexos	30

4.2.6 - Técnica da Extrapolação Linear da Eficiência	32
4.2.7 - Formalismo para os radionuclídeos padronizados	38
4.2.7.1 - Formalismo para ^{241}Am	38
4.2.7.2 - Formalismo para ^{60}Co	42
4.2.7.3 - Formalismo para ^{18}F	46
4.2.7.4 - Formalismo para ^{133}Ba	49
4.3 - Determinação da eficiência gama do cintilador plástico ($\epsilon_{\beta\gamma}$)	55
4.4 - Cintiladores	56
4.4.1 - Princípio de funcionamento	56
4.4.2 - Cintiladores orgânicos	57
4.4.3 - Cintiladores inorgânicos	61
5 - PARTE EXPERIMENTAL	63
5.1 - Projeto dos cintiladores	63
5.2 - Padronização de radionuclídeos	74
5.2.1 - Sistemas de coincidência utilizados nas medidas	75
5.2.1.1 - Características dos detectores	75
5.2.1.1.1 - $4\pi(\text{PC})\text{-NaI}(\text{TI})$	75
- sistema I	75
- sistema II	77
5.2.1.1.2 - $4\pi(\text{PS})\text{-NaI}(\text{TI})$	79
- sistema I	79
- sistema II	79
5.2.1.2 - Eletrônica associada	81
5.2.2 - Preparação das fontes	84
6 - RESULTADOS E DISCUSSÕES	86

6.1 - Padronização do ^{241}Am	86
6.2 - Padronização do ^{60}Co	91
6.3 - Padronização do ^{18}F	93
6.4 - Padronização do ^{133}Ba	95
6.5 - Cálculo da eficiência gama do cintilador plástico ($\epsilon_{\beta\gamma}$)	100
7 - CONCLUSÕES	101
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	103

6.1 - Padronização do ^{241}Am	86
6.2 - Padronização do ^{60}Co	91
6.3 - Padronização do ^{18}F	93
6.4 - Padronização do ^{133}Ba	95
6.5 - Cálculo da eficiência gama do cintilador plástico ($\epsilon_{\beta\gamma}$)	100
7 - CONCLUSÕES	101
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	103

1 INTRODUÇÃO

Em Metrologia Nuclear, há muitos anos, o método de medida absoluta da atividade de radionuclídeos por coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ tem sido considerado um padrão primário, em razão do seu alto grau de exatidão e por depender apenas de grandezas observáveis para a obtenção de seus resultados^[1, 2, 3, 4]. O formalismo necessário para o emprego do método foi desenvolvido por Champion^[5] seguido por Baerg^[6, 7, 8] que usaram contadores proporcionais tipo "pill-box" a gás fluente, em geometria 4π sr, para medida de partículas alfa, beta, elétrons e raios-X, em conjunto com dois cintiladores de NaI(Tl) para espectrometria gama.

O Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), desde a sua fundação em 1964, tem desenvolvido diversos sistemas de medida de atividade de radionuclídeos^[9, 10, 11, 12, 13], tendo participado de várias Comparações Internacionais patrocinadas pelo Bureau International des Poids et Mesures (BIPM), na França. Os resultados destas comparações comprovam o excelente grau de confiabilidade obtido nos sistemas de medidas desenvolvidos no LMN.

Atualmente o LMN do IPEN possui dois sistemas de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ constituídos por detectores proporcionais a gás fluente e pressurizado, respectivamente^[11, 13]. Estes sistemas servem como padrões primários aos diversos sistemas de calibração secundários do LMN, constituídos por: câmaras de ionização, detectores de barreira de superfície, espectrômetros de HPGe ou Ge(Li) e cintiladores de NaI(Tl).

2 OBJETIVOS

O objetivo do presente trabalho é desenvolver um novo tipo de sistema de coincidências $4\pi(\alpha,\beta)\text{-}\gamma$, para ser utilizado como sistema primário, empregando cintiladores plásticos, em geometria 4π para detecção de partículas alfa, beta, elétrons de conversão e raios X .

As vantagens de um sistema deste tipo são:

a) em relação ao contador proporcional:

- possibilidade de medir atividades de fontes radioativas extensas (até aproximadamente 45 mm de diâmetro), já que a construção do detector cintilador plástico é mais simples, podendo variar seu tamanho com relativa facilidade;
- os contadores proporcionais, por serem detectores gasosos, utilizam a mistura gasosa P-10 (90% de Argônio e 10% de **Metano**) que é onerosa, o que é dispensado no caso dos cintiladores plásticos;
- para o contador proporcional as fontes são preparadas em filmes de Collodion sustentados por arandelas metálicas. Esses filmes

necessitam ser metalizados para uniformização do campo elétrico no interior do contador. No cintilador plástico essa metalização é dispensada e as arandelas podem ser plásticas, o que simplifica a preparação das amostras;

- o contador proporcional possui anodo com cerca de 40 μm diâmetro que deve ser trocado periodicamente, sendo este processo de troca extremamente delicado e demorado. O cintilador plástico não possui anodo;

b) em relação ao cintilador líquido:

- a fonte, uma vez calibrada, pode ser utilizada como padrão para outros sistemas de medida. Isto não ocorre no caso do cintilador líquido, uma vez que a fonte radioativa é perdida por ter sido incorporada ao material cintilador. Como consequência os cintiladores líquidos são aplicados apenas para padronização de soluções radioativas, e não para fontes puntiformes ;
- os cintiladores líquidos apresentam alto valor de fosforescência provocada pela luz ambiente. Isso implica que as amostras devem ser manipuladas na ausência de luz ambiente e mantidas dentro do detector por várias horas a fim de que a fosforescência decaia. No caso do cintilador plástico este efeito é muito reduzido. O detector é aberto, as amostras são colocadas dentro do detector, o sistema é vedado contra luz externa e pode ser colocado para contagem imediatamente;

- fácil obtenção dos cintiladores plásticos, que são fabricados pelo próprio IPEN^[14] e possuem propriedades muito similares aos cintiladores comerciais tipo NE102A^[15];

Por outro lado, os cintiladores plásticos possuem algumas características indesejáveis como, por exemplo^[15, 16, 17, 18].

- rendimento de luz baixo e não linear com relação à energia da radiação incidente;
- perdas na coleção de luz por efeitos de absorção ou espalhamento no interior do cintilador;
- eficiência de detecção para radiação gama que aumenta com o volume do detector.

Estas características impõem um estudo minucioso do projeto do sistema de medidas, de modo a adequá-lo às condições de validade do método de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$. Estas condições implicam em uma eficiência próxima de 100% para partículas carregadas, baixa taxa de contagem de radiação de fundo, além de ser necessária uma eficiência gama constante para diferentes pontos da fonte.

Pelas razões apontadas, o projeto e construção de um sistema de medidas deste tipo torna-se particularmente dificultoso, principalmente se deve possibilitar a medida de radionuclídeos que decaem por emissão β^+ , captura de elétrons, ou emissão de radiação β^- de baixa energia, em presença de gamas de alta energia. Estas dificuldades, aliadas às numerosas medidas necessárias para

a padronização do sistema e suas características originais, tornam relevante o desenvolvimento do presente trabalho.

No capítulo quatro são vistos os fundamentos teóricos do método de coincidências assim como a teoria sobre cintiladores inorgânicos e orgânicos.

O capítulo cinco trata da parte experimental desenvolvida no qual é apresentado o formato do cintilador plástico, objetivo do presente trabalho. Nele são fornecidos os dados sobre: os sistemas envolvidos nas medidas; a eletrônica associada e a preparação das fontes.

Os resultados e discussões são apresentados no capítulo seis e no capítulo sete encontram-se as conclusões.

3 REVISÃO DA LITERATURA

Baerg^[8], em 1973, utilizou um sistema 4π PC-Nal(Tl) pressurizado contendo diferentes tipos de gases. A vantagem deste contador proporcional em relação ao de gás fluente é que a partícula beta deposita uma quantidade maior de energia dentro do volume sensível do detector. Observou que detectores operando à pressões da ordem de 2 MPa são indicados para a maioria dos emissores beta. Entretanto, apresentam a desvantagem de deteriorarem com o uso, tornando necessária limpeza periódica do anodo.

Moura^[13], em 1969, desenvolveu um sistema de coincidências 4π PC-Nal(Tl) constituído de um detector proporcional do tipo "pill-box", com gás P-10 fluente, e dois cristais de Nal(Tl), para medida do coeficiente de conversão interna da transição de 279 keV do ^{203}Tl . Esse sistema encontra-se em uso no Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do IPEN-CNEN/SP. Apresenta eficiências beta de 95% e alfa de aproximadamente 100%. Esse mesmo sistema foi utilizado por Fonseca^[11], em 1997, para determinar a taxa de emissão gama por decaimento do ^{126}I , por Hilário^[19], em 2001, para padronização do ^{192}Ir , ^{152}Eu e ^{186}Re , por Moreira^[20], em 2002, para padronização do ^{42}K e por Lavras^[21], em 2002, para padronização do ^{51}Cr e ^{153}Sm .

Kawada^[22], em 1985, mediu o coeficiente de conversão interna total e a intensidade gama por desintegração do ^{111}In por meio do método de coincidências, usando um contador proporcional para contagem de elétrons em geometria 4π sr a gás fluente (P-10 ou Metano) e um detector de Ge para contagem gama.

Koskinas^[12], em 1988, desenvolveu no IPEN um sistema de coincidências $4\pi\text{BS-Nal(Tl)}$ para medida absoluta da atividade de radionuclídeos. Este sistema utilizava dois detectores de barreira de superfície em geometria $4\pi\alpha\text{-}\gamma$ e $2\pi e\text{-X}$, acoplados a dois cristais de Nal(Tl) de janela fina, adequados à medida de raio-X ou gama de baixa energia. Esse sistema foi utilizado para padronização de emissores alfa-gama e elétrons-X. Os resultados foram comparados aos obtidos com sistemas convencionais, que utilizam contadores proporcionais em geometria 4π sr a gás fluente ou pressurizado e também comparados aos obtidos pelo Bureau International de Poids et Mesure (BIPM) estando em acordo com os valores esperados.

Reher^[23], em 1992, com a finalidade de padronizar o ^{192}Ir , usou: a) sistema de coincidências $4\pi\text{PC-Nal(Tl)}$, constituído por dois contadores proporcionais em forma de D a gás fluente (Metano) e dois detectores de Nal(Tl) acoplados ao detector proporcional; b) espectrômetro gama com cristais de CsI(Tl) de janela fina que faziam um sanduíche com a fonte, em geometria 4π sr; c) um $4\pi\text{-}\gamma$ constituído de um cristal de Nal(Tl) em forma de poço bem profundo. Os resultados obtidos estavam de acordo com o Bureau International de Poids et Mesures (BIPM).

Cassette^[24] e Broda^[25], em 1994 e 1998, fizeram medidas de coincidências para padronização do ^{129}I e ^{139}Ce , utilizando cintilador líquido no qual o material radioativo é dissolvido no composto orgânico. Trabalharam em conjunto usando o método da razão entre a tripla e a dupla coincidência. Usaram para tanto três válvulas fotomultiplicadoras ao redor do frasco que continha o cintilador e, para detecção de raios-X e gama, um cristal de NaI(Tl) de apenas 2 mm de espessura e janela de berílio. No primeiro trabalho encontraram resultados para a atividade que estavam de acordo com os encontrados pelo método de coincidências mas, o valor encontrado para a eficiência era bem menor. Alguns ajustes foram feitos no segundo trabalho e seus resultados encontraram melhoras consideráveis, sendo comparados aos obtidos pelo Laboratoire Primaire des Rayonnements Ionisants (LPRI).

Conforme apresentado anteriormente, diversos sistemas de medida absoluta tem sido desenvolvidos ao longo das últimas décadas. Entretanto, não foi encontrado na literatura nenhum sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ utilizando cintilador plástico em geometria 4π sr. Isso demonstra o caráter original do sistema desenvolvido no presente trabalho. Padronização de ^{241}Am utilizando o sistema desenvolvido no trabalho já foi publicada^[26].

4 FUNDAMENTOS TEÓRICOS

4.1 - Método de Medida Absoluta da Atividade

Os métodos absolutos são utilizados para calibração de fontes radioativas de referência^[7], constituindo-se padrões primários, por apresentarem alto grau de exatidão e dependerem apenas de grandezas observáveis.

Estes métodos podem ser divididos em:

- método direto: que necessita do conhecimento de fatores tais como geometria do arranjo experimental e eficiência de detecção;
- método de coincidências: que pode ser usado para calcular a atividade conhecendo-se apenas as contagens por unidade de tempo, não necessitando informações sobre as eficiências de detecção ou parâmetros do esquema de decaimento.

A validade das fórmulas do método de coincidências impõe condições nas técnicas experimentais, conforme descrito no item 4.2, e também nos instrumentos utilizados, tais como: detectores estáveis e sensíveis a apenas

um tipo de radiação. Na sua forma mais básica, é usado para calibração de radionuclídeos com esquema de decaimento simples mas, com algumas modificações na técnica e escolha adequada dos detectores, pode ser usado para uma grande variedade de radionuclídeos.

4.2 - Método de Coincidências

Consiste na medida de eventos que podem ser considerados simultâneos, quando comparados com o tempo de resolução do circuito eletrônico. Para tanto, deve-se ter radionuclídeos que decaiam emitindo dois tipos de radiação como β - γ ou α - γ , nos quais a vida-média da transição pode ser considerada desprezível.

De acordo com Baerg^[6] para uma fonte puntiforme de atividade n_0 e eficiências dos detectores beta e gama, respectivamente, e_β e e_γ , as taxas de contagens nos canais beta, gama e coincidência podem ser dadas por:

$$\begin{aligned} n_\beta &= n_0 e_\beta \\ n_\gamma &= n_0 e_\gamma \\ n_c &= n_0 e_\beta e_\gamma \end{aligned} \quad (4.1)$$

Entretanto, para uma fonte extensa de atividade total N_0 e eficiências dos detectores variando de uma região para outra, as expressões para as taxas de contagens observadas são:

$$\begin{aligned} N_{\beta} &= N_0 \overline{e_{\beta}} \\ N_{\gamma} &= N_0 \overline{e_{\gamma}} \\ N_c &= N_0 \overline{e_{\beta} e_{\gamma}} \end{aligned} \quad (4.2)$$

onde: $\overline{e_{\beta}}$ e $\overline{e_{\gamma}}$ são as médias das eficiências dos volumes elementares integrados sobre a extensão da fonte, equivalentes às eficiências totais dos detectores ε_{β} e ε_{γ} , para a radiação emitida pela fonte toda.

Como Putman^[27] salientou, somente quando um detector tem a mesma eficiência elementar para toda a fonte o produto $\overline{e_{\beta} e_{\gamma}}$ é igual ao produto das eficiências totais $\varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma}$. Aplicando-se esta condição que, na prática, é uma boa aproximação para o caso dos detectores gama tem-se:

$$\begin{aligned} N_{\beta} &= N_0 \varepsilon_{\beta} \\ N_{\gamma} &= N_0 \varepsilon_{\gamma} \\ N_c &= N_0 \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma} \end{aligned} \quad (4.3)$$

Fazendo o produto $N_\beta N_\gamma$ e dividindo-o por N_c , obtém-se:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_0 \quad (4.4)$$

Esta expressão é a base do método de coincidências para calibração de radionuclídeos e N_0 pode ser obtido diretamente quando se tem um esquema de decaimento $\beta\text{-}\gamma$ simples e detectores ideais, ou seja detectores sensíveis a um único tipo de radiação. Se as contagens N_β , N_γ e N_c forem corrigidas para radiação de fundo, tempo morto e tempo de resolução, pode-se obter a atividade da fonte (N_0) em função apenas das contagens observadas, não necessitando do conhecimento das eficiências dos detectores ou dos parâmetros do esquema de decaimento.

Uma conclusão importante é que a razão N_β/N_γ é uma medida da eficiência do detector beta (ϵ_β).

No caso real, entretanto, os esquemas de decaimento são complexos e os detectores são sensíveis a mais de um tipo de radiação. Por esta razão o formalismo torna-se mais elaborado, conforme descrito a seguir.

4.2.1 - Sensibilidade do detector beta às diferentes radiações

4.2.1.1 - Detecção de elétrons de conversão interna.

Um núcleo excitado pode passar a um estado de energia inferior emitindo espontaneamente um raio gama de energia $h\nu$, igual à diferença entre a energia dos estados nucleares, ou cedendo a energia em excesso a um elétron orbital que será ejetado do átomo com energia cinética $E_c = h\nu - E_K$ ou $E_c = h\nu - E_L$, onde E_K , E_L são, respectivamente, as energias de ligação dos níveis K , L , etc. Este elétrons são monoenergéticos e o processo denomina-se conversão interna. A relação entre o número de elétrons de conversão por segundo (N_{ec}) e número de fótons por segundo (N_γ) é chamada de coeficiente de conversão interna total (α). Como consequência, nas transições de desexcitação nuclear, a emissão da radiação gama compete com o processo de conversão interna e estes elétrons serão detectados apenas quando não for detectada a partícula beta correspondente àquele gama.

Os elétrons de conversão contribuem, portanto, com a taxa N_{ec} no canal beta que é dada por:

$$N_{ec} = N_o (1 - \epsilon_\beta) \epsilon_{ec} \frac{\alpha}{1 + \alpha} \quad (4.5)$$

onde: $(1 - \varepsilon_\beta)$ probabilidade da partícula beta não ser detectada;

ε_{ec} probabilidade de detectar os elétrons de conversão no canal beta;

α coeficiente de conversão interna total (N_{ec}/N_γ);

$\alpha / (1 + \alpha)$ probabilidade de emissão de elétrons de conversão.

Na maioria dos casos, estes elétrons de conversão interna são suficientemente energéticos para serem detectados com eficiência unitária nos contadores de geometria 4π . Entretanto, no caso de eficiências para elétrons de conversão menores que um, o evento pode ser registrado através da detecção dos raios X ou elétrons Auger. Então $(\alpha \varepsilon_{ec})$ é substituído por

$$\sum_i \alpha_i \left[\varepsilon_i + (1 - \varepsilon_i) \varepsilon_{(X,A)i} \right]$$

onde; α_i coeficiente de conversão interna da camada i ;

ε_i eficiência do detector para elétrons de conversão da camada i ;

$\varepsilon_{(X, A)i}$ probabilidade de detectar ao menos um raio X ou elétron Auger no detector beta seguindo a emissão de elétron de conversão da camada i .

O processo de conversão interna diminui a quantidade de raios gama que seriam emitidos, reduzindo os valores de N_γ , já que neste processo pode ser emitido um elétron no lugar do raio gama. Com isso as expressões para o canal beta, gama e de coincidências nas expressões (4.3) tornam-se:

$$N_p = N_o \varepsilon_\beta + N_o (1 - \varepsilon_\beta) \varepsilon_{ec} \frac{\alpha}{1 + \alpha}$$

$$N_\gamma = N_o \frac{\varepsilon_\gamma}{(1 + \alpha)} \quad (4.6)$$

$$N_c = N_o \varepsilon_\beta \frac{\varepsilon_\gamma}{(1 + \alpha)}$$

onde: ε_β eficiência de detecção para partículas beta;

ε_γ eficiência de detecção para raios gama;

ε_{ec} probabilidade de detectar elétrons de conversão no canal beta;

$1/(1 + \alpha)$ probabilidade de emissão gama;

$(1 - \varepsilon_\beta)$ probabilidade da partícula beta não ser detectada.

No processo de conversão interna haverá rearranjo dos elétrons orbitais seguido da emissão de raios X, que serão excluídos da detecção no canal gama pelo discriminador de pulsos. Isto é feito, na prática, ajustando-se os níveis inferior e superior do discriminador gama para que esta via só registre os pulsos do pico de absorção total da energia de interesse.

4.2.1.2 - Detecção de radiação gama.

O raio gama, que é detectado no detector beta, contribui com a taxa $N_{\beta\gamma}$ no canal beta, que é dada por:

$$N_{\beta\gamma} = N_o (1 - \epsilon_{\beta}) \frac{\epsilon_{\beta\gamma}}{(1 + \alpha)} \quad (4.7)$$

onde: $(1 - \epsilon_{\beta})$ probabilidade da partícula beta não ser detectada;

$\epsilon_{\beta\gamma}$ eficiência gama do detector beta;

$1/(1 + \alpha)$ probabilidade de emissão gama.

4.2.2 - Sensibilidade do detector gama às diferentes radiações

4.2.2.1 - Detecção de partículas beta

A detecção de partículas beta no detector gama pode ser evitada com a introdução de materiais absorvedores entre a fonte e o detector gama.

4.2.2.2 - Detecção de Radiação de Freamento (*Bremsstrahlung*)

Campion^[5] estudou a influência no método de coincidências ocasionada pela possível detecção de *Bremsstrahlung* no detector gama. Concluiu que esses erros são geralmente desprezíveis e desaparecem com a eficiência do detector beta próxima da unidade. Em muitos casos o problema pode ser inteiramente evitado pelo ajuste apropriado do discriminador de pulsos do detector gama.

4.2.3 - Contagens de coincidências

4.2.3.1 - Espalhamento Compton

Há uma contribuição adicional N_c , na taxa de coincidências proveniente do espalhamento Compton ou, nos esquemas de decaimento mais complexos, proveniente da presença de raios X em cascata (coincidências γ - γ). Com ε_c representando a probabilidade de tais coincidências;

$$N_c = N_o (1 - \varepsilon_\beta) \varepsilon_c \quad (4.8)$$

O valor de ε_c pode ser reduzido a níveis desprezíveis por meio de ajuste do discriminador no canal gama.

4.2.3.2 - Correlação angular beta-gama

Como Campion^[5] salientou, correlação angular é esperada somente para uma transição beta proibida e a magnitude é dependente da energia. Quando a ineficiência do detector beta é ocasionada por alguma forma de discriminação de baixa energia, o efeito é pequeno e desaparece com detectores de eficiência beta igual a um.

Resumindo, tem-se as equações descritas a seguir.

4.2.4 - Esquemas de decaimento simples

As equações anteriores resultam em uma expressão geral para o esquema de decaimento envolvendo uma simples transição β - γ ;

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

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

$$N_c = N_0 \left[\frac{\varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \varepsilon_c \right]$$

Portanto, a atividade da fonte é dada por:

$$N_s = \frac{N_\beta N_\gamma}{N_\tau} \frac{\left[\frac{\epsilon_\beta \epsilon_\gamma}{1 + \alpha} + (1 - \epsilon_\beta) \epsilon_c \right]}{\left[\epsilon_\beta + (1 - \epsilon_\beta) \left(\frac{\alpha \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right]} \times \frac{\epsilon_\gamma}{(1 + \alpha)} \quad (4.10)$$

4.2.5 - Esquemas de decaimento complexo

Quando o esquema de decaimento envolve várias transições beta e gama, as expressões para os canais individuais de contagem tornam-se mais elaboradas. As modificações necessárias nas expressões básicas foram discutidas por vários autores^[2, 5]. Para um esquema de decaimento envolvendo n diferentes ramos beta, e com um de seus ramos tendo uma ou mais transições gama associadas tem-se;

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

$$N_{\gamma} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \epsilon_{\gamma r} \quad (4.11)$$

$$N_c = N_0 \sum_{r=1}^n a_r [\epsilon_{\beta r} \epsilon_{\gamma r} + (1 - \epsilon_{\beta r}) \epsilon_{cr}]$$

onde: a_r abundância relativa do r-ésimo ramo beta;

$\epsilon_{\beta r}$ eficiência do detector beta para esse ramo;

α coeficiente de conversão interna;

ϵ_{ec} eficiência para elétrons de conversão interna da transição gama associada ao r-ésimo ramo beta;

$\epsilon_{\beta \gamma}$ eficiência gama do detector beta;

$\epsilon_{\gamma r} = \epsilon_{\gamma} / (1 + \alpha)$ eficiência gama para transição gama associada ao r-ésimo ramo beta;

ϵ_{cr} eficiência para contagem de coincidências γ - γ ;

$[1 / (1 + \alpha)]_r$ probabilidade de emissão gama do r-ésimo ramo beta por transição.

Reunindo as expressões acima tem-se:

$$N_o = \frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \frac{\sum_{r=1}^n a_r [\varepsilon_{\beta r} \varepsilon_{\gamma r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \varepsilon_{\alpha r}]}{\sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{\alpha r} + \varepsilon_{\beta r}}{1 + \alpha} \right) \right]} \left[\sum_{r=1}^n a_r \varepsilon_{\gamma r} \right] \quad (4.12)$$

A equação 4.12 mostra que é necessário não só conhecer os parâmetros dos esquemas de decaimento e as eficiências de detecção, como também que um dos detectores seja igualmente sensível a todas as energias da radiação que detecta, e estas condições não são encontradas nos sistemas usuais.

Em vista do exposto acima Campion^[5] e Baerg^[1] desenvolveram a chamada "Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência" que permite a determinação da atividade sem conhecimento prévio dos parâmetros do esquema de decaimento ou das eficiências de detecção.

4.2.6 - Técnica da Extrapolação Linear da Eficiência

Em geral, nem a atividade N_o nem a eficiência total de detecção podem ser deduzidas diretamente da taxa de contagem observada pois, a eficiência dos detectores não é a mesma para todos os ramos. Entretanto, uma estimativa de N_o é possível se a relação funcional entre N_β e a razão N_o/N_γ for tal que $N_\beta \rightarrow N_o$ quando $N_o/N_\gamma \rightarrow 1$.

Segundo Baerg^[6] são duas as condições para existência de uma função que relacione N_β com N_σ/N_γ obedecendo o limite citado anteriormente:

- é necessário que, para um intervalo de valores experimentais da relação N_σ/N_γ , as eficiências de detecção para os diferentes grupos beta ($\varepsilon_{\beta r}$) sejam interrelacionadas de tal forma que cada qual possa ser definida como uma função biunívoca de $\varepsilon_{\beta s}$, onde $\varepsilon_{\beta s}$ é a eficiência de um grupo beta arbitrário.

- além disso, é necessário que essas funções sejam válidas para eficiências unitárias, ou seja:

$$\varepsilon_{\beta r} = f_r (\varepsilon_{\beta s}) \quad (4.13)$$

onde: a função $f_r \rightarrow 1$ quando $\varepsilon_{\beta s} \rightarrow 1$;

e os valores das eficiências ε_{ec} , $\varepsilon_{\beta\gamma}$, ε_{cr} e $\varepsilon_{\gamma r}$ sejam constantes ou nulos no intervalo de variação de N_σ/N_γ .

Estas condições, principalmente a primeira, dependem das características do detector beta.

Com referência ao conjunto de equações (4.11), se o sistema de detecção gama for estável, a relação entre a eficiência para as radiações gama associadas a um dos grupos beta e a eficiência para o total das radiações gama emitidas, k_r , é constante, ou seja:

$$\frac{a_r \varepsilon_{\gamma r}}{\sum a_r \varepsilon_{\gamma r}} = k_r \text{ (constante para dada eficiência do detector beta) e}$$

$$\sum k_r = 1$$

Com isso o parâmetro de eficiência, N_c/N_γ torna-se

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = 1 - \sum k'_r [1 - f_r(\varepsilon_{\beta s})] \rightarrow 1 \quad (4.14)$$

quando $\varepsilon_{\beta s} \rightarrow 1$

onde: $k'_r = k_r (1 - \varepsilon_{cr} / \varepsilon_{\gamma r})$ para o r-ésimo ramo beta.

O valor de ε_{cr} (eficiência para contagem de coincidências γ - γ , proveniente de espalhamento Compton ou de Raios X em cascata) é, na prática, pequeno em relação a $\varepsilon_{\gamma r}$ (eficiência gama para o r-ésimo ramo beta) quando um detector proporcional beta é usado. O k'_r pode, portanto, ser considerado também

constante ou variando lentamente com $\varepsilon_{\beta r}$. Em cada caso, sob as condições para as quais equações do tipo (4.13) são válidas, a equação (4.14) define implicitamente $\varepsilon_{\beta s}$ como uma função, chamada φ , de N_c/N_γ . O valor de $\varepsilon_{\beta r}$ pode então ser expresso como única função do parâmetro de eficiência, ou seja:

$$\varepsilon_{\beta r} = f_r (\varepsilon_{\beta s}) \quad \text{onde} \quad \varepsilon_{\beta s} = \phi (N_c/N_\gamma).$$

Portanto,

$$\varepsilon_{\beta r} = f_r [\phi (N_c/N_\gamma)] = \Psi_r (N_c/N_\gamma) \quad (4.15)$$

onde: $\varepsilon_{\beta r}$, ϕ e $\Psi_r \rightarrow 1$ quando $N_c/N_\gamma \rightarrow 1$.

A expressão (4.11) para a taxa de contagem beta observada pode ser agora escrita como

$$N_\beta = N_0 \left[\sum b_r a_r + \sum (1 - b_r) a_r \Psi_r (N_c/N_\gamma) \right] \quad (4.16)$$

onde: para o r-ésimo ramo beta,

$$b_r = \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta r}}{1 + \alpha} \right)_r$$

Os elétrons de conversão, em geral, são suficientemente energéticos para que $\varepsilon_{ec} = 1$ numa geometria 4π , enquanto o valor $\varepsilon_{\beta\gamma}$ é usualmente muito pequeno. Ambos ε_{ec} e $\varepsilon_{\beta\gamma}$ podem ser considerados igualmente constantes ou variando lentamente como função de ε_{β} . Então a taxa de contagem beta torna-se função somente de um parâmetro N_o/N_γ ,

$$N_\beta = N_o F (N_o/N_\gamma) \quad (4.17)$$

onde: a função $F \rightarrow 1$ com $N_o/N_\gamma \rightarrow 1$ desde que $\sum a_r = 1$.

Esta expressão simples pode ser considerada a **Fórmula De Coincidência Generalizada**. A função de eficiência F , pode ser determinada experimentalmente por variação do parâmetro de eficiência N_o/N_γ através de alguma forma de discriminação de baixa energia, no intervalo de valores para os quais equações (4.13) e (4.14) são válidas. Então, fazendo-se uma extrapolação para $N_o/N_\gamma = 1$, a atividade N_o é obtida em termos somente das taxas de contagens observadas. Nenhum conhecimento específico do esquema de decaimento é necessário. A eficiência total do detector beta ou a eficiência para alguns grupos beta é, em geral, obtida indiretamente exceto para um esquema de decaimento simples ou um grupo beta isolado quando o valor ε_c é desprezível.

Baerg^[6], baseado em estudos de Taylor^[4], sugere que na equação (4.14) $\varepsilon_{\beta s}$ seja escrita como uma função de $(1 - N_o/N_y)/(N_o/N_y)$, que é uma forma mais conveniente para sua solução gráfica ou analítica.

Um gráfico de $N_o N_y / N_c$ em função de $\left(\frac{1 - N_c / N_y}{N_c / N_y} \right)$ fornece uma

curva que intercepta o eixo das ordenadas em N_o para $N_o/N_y = 1$.

Com isso tem-se:

$$\frac{N_o N_y}{N_c} = N_o G \left(\frac{1 - N_c / N_y}{N_c / N_y} \right) \quad (4.18)$$

onde: a função $G \rightarrow 1$ quando $N_o/N_y \rightarrow 1$.

Estas fórmulas demonstram que a atividade da fonte pode ser obtida sem que sejam conhecidas todas as informações a respeito do esquema de decaimento. O método de coincidências pode ser usado para calibração de vários radionuclídeos como pode ser visto pela equação acima. Basta que se determine experimentalmente as funções F ou G ou o valor da constante K para um dado

sistema e para cada nuclídeo por variações do parâmetro N_α/N_γ . Na maior parte dos trabalhos isto deve ser feito em cada caso, também para esquemas de decaimento simples, já que os valores de $\varepsilon_{\beta\gamma}$ e ε_c podem apresentar alguma dependência com relação a N_α/N_γ .

4.2.7 - Formalismo para os radionuclídeos padronizados

Para verificar o funcionamento do sistema desenvolvido no presente trabalho foram padronizados radionuclídeos que decaem por emissão alfa, beta negativo, beta positivo e captura eletrônica.

4.2.7.1 - Formalismo para o ^{241}Am

O ^{241}Am foi o primeiro radionuclídeo a ser padronizado no sistema desenvolvido por decair emitindo alfa de alta energia, facilmente detectável pelo cintilador plástico. Além de diversas aplicações em áreas como: espectrometria alfa e gama, atualmente este radionuclídeo é utilizado em Medicina Nuclear em conjunto com $^{99\text{m}}\text{Tc}$ nas gama-câmaras para eliminar distorções de imagens

causadas pelo movimento do paciente, procedimento este que necessita fontes radioativas calibradas.

Um esquema de decaimento simplificado deste radionuclídeo^[28] pode ser visto na figura 4-1 e as energias e as probabilidades de emissão mais intensas encontram-se na tabela 4-1. Observa-se que a desintegração se dá, com intensidade de 85,5% , por emissão de partícula alfa com 5486 keV, seguida por uma transição de 59,55 keV que dá origem a gamas e elétrons de conversão com maior intensidade na energia de 37,9 keV .

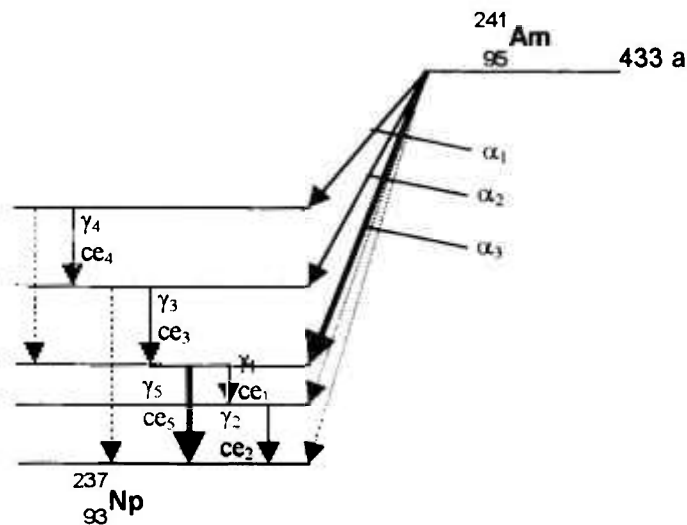


Fig. 4-1^[28] - Esquema de decaimento do ^{241}Am .

Tabela 4-1^[28] - Energias e probabilidades de emissão das radiações mais intensas envolvidas no decaimento do ²⁴¹Am.

	Energia (keV)	Probabilidade de emissão (%)		Energia (keV)	Probabilidade de emissão (%)
α_1	5388	1,6			
α_2	5443	12,6			
α_3	5486	85,5			
γ_1	26,35	16,3	ec ₁	4,7	8,7
γ_2	33,20	16,8	ec ₂	11,6	11,4
γ_3	43,42	13,7	ec ₃	21,8	10,2
γ_4	55,54	1,1	ec ₄	33,9	0,9
γ_5	59,55	85,5	ec ₅	37,9	34,0

Medindo-se a taxa de coincidências entre o alfa e o gama de maior intensidade (59,55 keV) e considerando-se o cintilador plástico sensível aos elétrons de conversão de 37,9 keV as equações (4.11) tornam-se:

- para a via alfa:

$$N_{\alpha} = N_o \varepsilon_{\alpha} + N_o (1 - \varepsilon_{\alpha}) \varepsilon_{ec} \frac{\alpha}{1 + \alpha} + N_o (1 - \varepsilon_{\alpha}) \frac{\varepsilon_{\alpha\gamma}}{1 + \alpha} \quad (4.19)$$

onde:

N_o atividade da fonte;

ε_{α} probabilidade da partícula alfa ser detectada;

ε_{ec} probabilidade de detectar elétrons de conversão;

$\alpha/(1+\alpha)$ probabilidade de emissão de elétrons de conversão;

$\varepsilon_{\alpha\gamma}$ probabilidade de detectar fótons gama.

- para a via gama:

$$N_{\gamma} = N_0 \frac{\varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \quad (4.20)$$

onde:

ε_{γ} eficiência intrínseca de detecção para os fótons gama de 59,55 keV;

$1/(1+\alpha)$ probabilidade de emissão gama.

- para a via de coincidências:

$$N_c = N_0 \varepsilon_{\alpha} \frac{\varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \quad (4.21)$$

Multiplicando-se a equação (4.19) pela (4.20) e dividindo-se pela equação (4.21) obtém-se

$$\frac{N_{\alpha} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left[1 + \frac{1 - \varepsilon_{\alpha}}{\varepsilon_{\alpha}} \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right] \quad (4.22)$$

Esta equação mostra que o gráfico de $N_{\alpha} N_{\gamma}/N_c$ em função de $(1-\varepsilon_{\alpha})/\varepsilon_{\alpha}$ é uma reta cuja inclinação é explicada pela eficiência do cintilador plástico para os elétrons de conversão e para a radiação gama. O valor extrapolado quando $\varepsilon_{\alpha} \rightarrow 1$ fornece a atividade N_0 .

4.2.7.2 - Formalismo para o ^{60}Co

O ^{60}Co é um radionuclídeo que decai principalmente pela emissão de partículas beta de energia máxima 318 keV, seguidas por dois fótons gama em cascata com energias de 1173 keV e 1332 keV, como pode ser visto na figura 4-2^[28]. Na tabela 4-2^[28] encontram-se as energias e as probabilidades de emissão mais intensas.

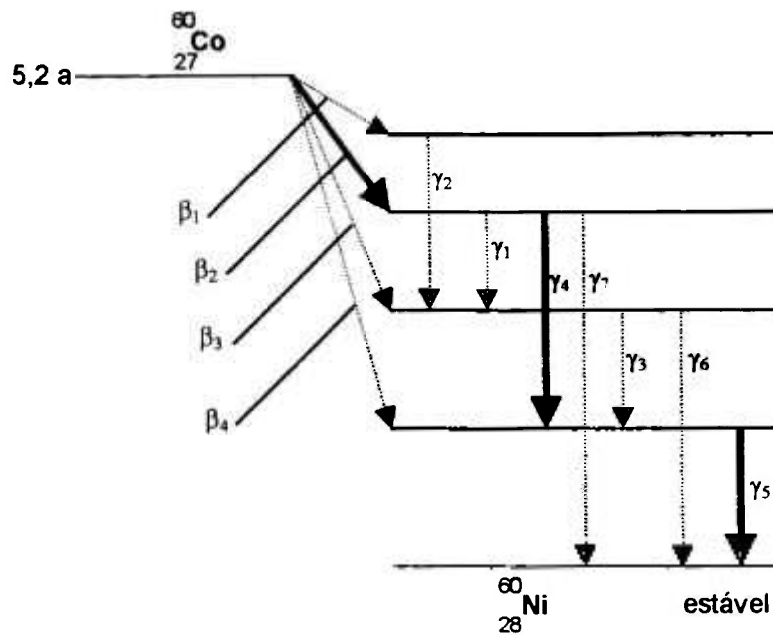


Fig. 4-2^[28] - Esquema de decaimento do ⁶⁰Co.

Tabela 4-2^[28] - Energias e intensidades das principais radiações envolvidas no decaimento do ⁶⁰Co.

	Energia (keV)	Probabilidade de emissão (%)	α_t
β_2	$317,89 \pm 0,11$	$99,92 \pm 0,03$	
γ_4	$1173,239 \pm 0,004$	$99,91 \pm 0,02$	$(1,67 \pm 0,04) \times 10^{-4}$
γ_5	$1332,503 \pm 0,005$	$99,9989 \pm 0,0006$	$(1,27 \pm 0,04) \times 10^{-4}$

Medindo-se a taxa de coincidências entre a partícula beta e os raios gama as equações (4.11) tornam-se:

- para a via beta:

considerando

$$N_o (1 - \varepsilon_\alpha) \varepsilon_{ec} \frac{\alpha_t}{1 + \alpha_t} \cong 0 \quad (4.23)$$

pois α_t é da ordem de 10^{-4} , obtém-se

$$N_\beta = N_o \varepsilon_{\beta 2} + N_o (1 - \varepsilon_{\beta 2}) \left(\frac{\varepsilon_{\beta\gamma 4}}{1 + \alpha_4} + \frac{\varepsilon_{\beta\gamma 5}}{1 + \alpha_5} \right) \quad (4.24)$$

onde:

N_o atividade da fonte;

ε_β probabilidade de detectar a partícula beta;

$1/(1+\alpha)$ probabilidade de emissão gama;

$\varepsilon_{\beta\gamma}$ eficiência gama do detector beta.

- para a via gama:

$$N_\gamma = N_o \left(\frac{\varepsilon_{\gamma 4}}{1 + \alpha_4} + \frac{\varepsilon_{\gamma 5}}{1 + \alpha_5} \right) \quad (4.25)$$

onde:

ε_γ eficiência intrínseca de detecção para raios gama.

- para a via de coincidências:

$$N_c = N_o \varepsilon_{\beta 2} \left(\frac{\varepsilon_{\gamma 4}}{1 + \alpha_4} + \frac{\varepsilon_{\gamma 5}}{1 + \alpha_5} \right) \quad (4.26)$$

Multiplicando-se (4.24) por (4.25) e dividindo-se por (4.26) obtém-se:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_o \left(1 + \frac{1 - \varepsilon_{\beta 2}}{\varepsilon_{\beta 2}} \left(\frac{\varepsilon_{\beta \gamma 4}}{1 + \alpha_4} + \frac{\varepsilon_{\beta \gamma 5}}{1 + \alpha_5} \right) \right) \quad (4.27)$$

A função é de primeiro grau e mostra que a inclinação da curva é proveniente da eficiência do cintilador plástico para radiação gama. O valor extrapolado quando $\varepsilon_{\beta 2} \rightarrow 1$ fornece a atividade N_o .

4.2.7.3 - Formalismo para o ^{18}F

O ^{18}F é um radiofármaco largamente utilizado em Medicina Nuclear especialmente em Tomografia por Emissão de Pósitrons (*PET*). Ele decai, com 96,8% de probabilidade, por emissão de beta positivo com energia máxima de 633,5 keV seguidos por raio gama de 511 keV provenientes da aniquilação de pares e decai com 3,2% de probabilidade por captura eletrônica. Seu esquema de decaimento^[28] pode ser visto na figura 4-3 e as energias e probabilidades de emissão mais intensas encontram-se na tabela 4-3.

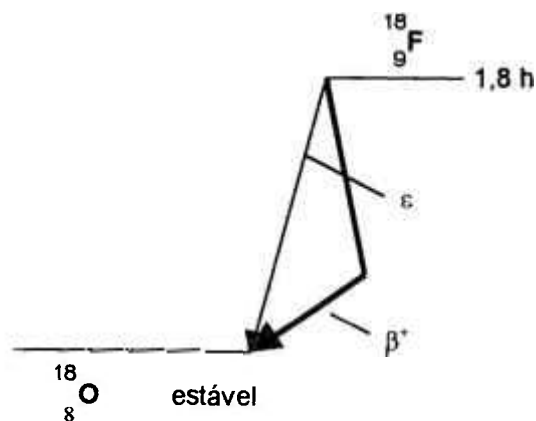


Fig. 4-3^[28] - Esquema de decaimento do ^{18}F .

Tabela 4-3^[28] - Energias e probabilidades de emissão mais intensas das radiações envolvidas no decaimento do ^{18}F .

	Energia (keV)	Probabilidade de emissão (%)
β^+	$633,5 \pm 0,6$	$96,80 \pm 0,20$
γ_{\pm}	$511,003 \pm 0,002$	$193,60 \pm 0,40$
ε	$1655,5 \pm 0,6$	$3,20 \pm 0,20$
e_{AK}	$0,456 - 0,502$	$2,89 \pm 0,20$

Fazendo-se a medida da taxa de coincidências entre o pósitron e o gama de 511keV as equações (4.11) tornam-se:

- para a via beta:

$$N_{\beta} = aN_0 \varepsilon_{\beta} + bN_0 \varepsilon_{ce} + aN_0 (1 - \varepsilon_{\beta}) I_{\gamma_{\pm}} \varepsilon_{\beta\gamma}$$

considerando a eficiência para elétrons de conversão igual a zero ($\varepsilon_{ce} \equiv 0$), pois a energia do raio-X é 0,53 keV e a energia do elétron Auger é 0,456 keV tem-se:

$$N_{\beta} = aN_0 \varepsilon_{\beta} + aN_0 (1 - \varepsilon_{\beta}) I_{\gamma_{\pm}} \varepsilon_{\beta\gamma} \quad (4.28)$$

- para a via gama:

$$N_y = a N_o I_{\gamma\pm} \epsilon_y \quad (4.29)$$

- para a via de coincidências:

$$N_c = a N_o \epsilon_\beta I_{\gamma\pm} \epsilon_\gamma \quad (4.30)$$

Multiplicando-se (4.28) por (4.29) e dividindo-se por (4.30) obtém-se:

$$\frac{N_s N_y}{N_c} = a N_o \left(1 + \frac{1 - \epsilon_\beta}{\epsilon_\beta} I_{\gamma\pm} \epsilon_{\beta\gamma} \right) \quad (4.31)$$

Esta é uma função de primeiro grau que irá fornecer uma curva cuja inclinação será dada pela eficiência do cintilador plástico para radiação gama. O valor extrapolado, uma vez corrigido pelo parâmetro a , fornece a atividade N_o .

4.2.7.4 - Formalismo para o ^{133}Ba

É um radionuclídeo aplicado como padrão primário em espectrometria gama e utilizado como padrão de referência em Medicina Nuclear. Este radionuclídeo decai por captura eletrônica seguida por transições gama e elétrons de conversão interna. Seu esquema de decaimento pode ser visto na figura 4-4, cujos valores das energias e as probabilidades de emissão mais intensas encontram-se nas tabelas 4-4, 4-5, 4-6 e 4-7.

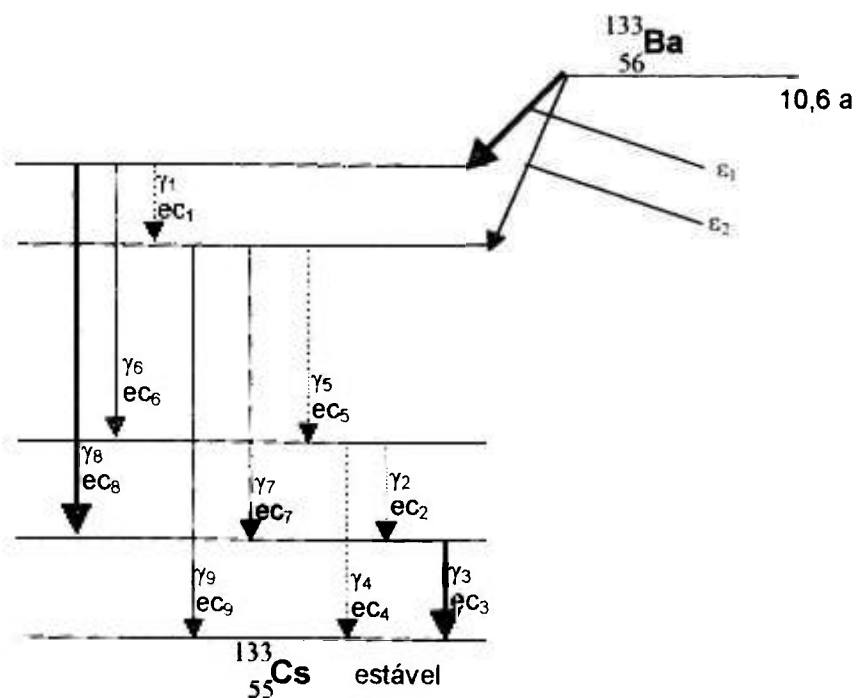


Fig. 4-4^[28] - Esquema de decaimento do ^{133}Ba .

Tabela 4-4^[28] - Transições por captura eletrônica

	Energia (keV)	Probabilidade de emissão (%)
ϵ_1	$83,4 \pm 3,0$	$85,9 \pm 0,6$
ϵ_2	$136,6 \pm 3,0$	$14,1 \pm 0,6$

Tabela 4-5^[28] - Transições gama

	Energia (keV)	Probabilidade de emissão (%)	α_t
γ_1	$53,161 \pm 0,001$	$14,65 \pm 0,35$	$5,66 \pm 0,06$
γ_2	$79,623 \pm 0,010$	$7,6 \pm 0,3$	$1,7 \pm 0,2$
γ_3	$80,998 \pm 0,005$	$90,10 \pm 0,20$	$1,64 \pm 0,05$
γ_4	$160,613 \pm 0,008$	$0,80 \pm 0,02$	$0,253 \pm 0,010$
γ_5	$223,234 \pm 0,012$	$0,49 \pm 0,02$	$0,090 \pm 0,010$
γ_6	$276,398 \pm 0,002$	$7,59 \pm 0,06$	$0,058 \pm 0,003$
γ_7	$302,863 \pm 0,001$	$19,1 \pm 0,2$	$0,043 \pm 0,003$
γ_8	$356,018 \pm 0,010$	$63,6 \pm 0,4$	$0,0256 \pm 0,0007$
γ_9	$383,852 \pm 0,009$	$9,1 \pm 0,1$	$0,021 \pm 0,001$

Tabela 4-6^[28]- Emissão de elétrons

	Energia (keV)	Probabilidade de emissão (%)
eAL	2,6 - 5,7	-
eAKLL	24,41 - 25,80	9,1 ± 0,2
eAKLX	29,00 - 30,96	4,3 ± 0,1
eAKXY	33,51 - 35,95	0,6 ± 0,1
ec ₁ K	17,176 ± 0,002	10,7 ± 0,4
ec ₂ K	43,638 ± 0,010	4,0 ± 0,6
ec ₃ K	45,014 ± 0,006	46,4 ± 0,6
ec ₁ LMN...	47,45 - 53,15	0,86 ± 0,06
ec ₂ L	73,90 - 74,60	0,58 ± 0,02
ec ₃ L	75,28 - 75,98	7,3 ± 0,1
ec ₃ MN...	79,78 - 80,98	2,25 ± 0,20
ec ₄ K	124,628 ± 0,008	0,13 ± 0,01
ec ₄ LMN...	154,90 - 160,60	0,030 ± 0,002
ec ₅ K	187,250 ± 0,013	0,039 ± 0,006
ec ₆ K	240,413 ± 0,003	0,34 ± 0,02
ec ₇ K	266,868 ± 0,002	0,68 ± 0,03
ec ₇ L	297,1 - 297,8	0,10 ± 0,01
ec ₈ K	320,32 ± 0,003	1,31 ± 0,04
ec ₉ K	347,866 ± 0,0003	0,15 ± 0,01
ec ₈ L	350,3 - 351,0	0,22 ± 0,01

Tabela 4-7^[28] - Emissão de fótons

	Energia (keV)	Probabilidade de emissão (%)
X_L	3,80 - 5,70	15 ± 6
$X_{K\alpha 2}$	30,6251	$34,6 \pm 1,0$
$X_{K\alpha 1}$	30,9728	$64,2 \pm 2,0$
$X_{K\beta 1}$	34,9194	$18,9 \pm 0,8$
$X_{K\beta 3}$	34,9869	
$X_{K\beta 1,5}$	35,245	
$X_{K\beta 1,5}$	35,259	
$X_{K\beta 2}$	35,822	$4,3 \pm 0,2$
$X_{K\beta 4}$	35,90	
$X_{K\text{OII,III}}$	35,97	
γ_1	$53,161 \pm 0,001$	$2,20 \pm 0,04$
γ_2	$79,623 \pm 0,010$	$2,63 \pm 0,08$
γ_3	$80,998 \pm 0,005$	$34,1 \pm 0,5$
γ_4	$160,613 \pm 0,008$	$0,641 \pm 0,008$
γ_5	$223,234 \pm 0,012$	$0,453 \pm 0,006$
γ_6	$276,398 \pm 0,002$	$7,17 \pm 0,04$
γ_7	$302,853 \pm 0,001$	$18,32 \pm 0,07$
γ_8	$356,017 \pm 0,002$	$62,0 \pm 0,3$
γ_9	$383,851 \pm 0,003$	$8,93 \pm 0,06$

Posicionando-se os níveis do discriminador gama de modo que a coincidência seja feita com os raios gama de energia de 276 keV (γ_6) até a energia de 383 keV (γ_9), as equações 4.11 tornam-se:

- para a via beta

$$N_{\beta} = N_0 \{ \varepsilon_{ce} + (1 - \varepsilon_{ce})(A - B) \} \quad (4.32)$$

onde: ε_{ce} é a eficiência para captura eletrônica;

$$A = \sum_{j=1}^9 \left(\frac{\alpha_j \varepsilon_{c_j} + \varepsilon_{\beta\gamma_j}}{1 + \alpha_j} \right) T_j \quad (4.33)$$

$$B = \sum_{i=1}^9 \sum_{j=i+1}^9 \left(\frac{\alpha_i \varepsilon_{c_i} \alpha_j \varepsilon_{c_j}}{(1 + \alpha_i)(1 + \alpha_j)} \right) T_{ij} \quad (4.34)$$

onde: ε_{c_i} eficiência para elétrons de conversão da transição i ;

$\varepsilon_{\beta\gamma_j}$ eficiência beta-gama para a transição j ;

T_{ij} probabilidade da transição simultânea i, j .

O termo **B** leva em conta os eventos onde dois elétrons de conversão, provenientes de transições diferentes, são detectados simultaneamente no detector 4π .

- para a via gama

$$N_y = N_0 C \quad (4.35)$$

com

$$C = \sum_{i=6}^g \frac{T_i \varepsilon_{\gamma i}}{(1 + \alpha_i)} \quad (4.36)$$

onde: T_i probabilidade da transição i ;

$\varepsilon_{\gamma i}$ eficiência gama para a transição i ;

- para a via de coincidências:

$$N_c = N_0 [\varepsilon_{ce} C + (1 - \varepsilon_{ce}) D] \quad (4.37)$$

com

$$D = \sum_{j=1}^s \sum_{i=6}^g \frac{T_i \varepsilon_{\gamma i} \alpha_i \varepsilon_{c_j}}{(1 + \alpha_i)(1 + \alpha_j)} \quad (4.38)$$

Multiplicando a equação (4.32) pela equação (4.35) e dividindo pela equação (4.37) obtém-se:

$$\frac{N_p N_\gamma}{N_c} = N_0 \frac{1 + \frac{(1 - \epsilon_{ce})}{\epsilon_{ce}} (A - B)}{1 + \frac{(1 - \epsilon_{ce})}{\epsilon_{ce}} \frac{D}{C}} \quad (4.39)$$

Desta forma, quando $\epsilon_{ce} \rightarrow 1$, a equação (4.39) tende para a atividade N_0 .

4.3 - Determinação da eficiência beta-gama do cintilador plástico ($\epsilon_{\beta\gamma}$)

Usando-se fontes envoltas em material suficientemente espesso para absorver as partículas alfa ou beta e permitir a passagem apenas da radiação gama, é possível determinar a eficiência gama do detector beta por meio da seguinte equação:

$$\epsilon_{\beta\gamma} = \frac{S}{t I_\gamma A} \quad (4.40)$$

onde: S contagens no detector $4\pi(PS)$ acima do nível inferior do discriminador, corrigidas para radiação de fundo e tempo morto;

I_γ probabilidade gama por decaimento;

t tempo de contagem;

A atividade da fonte ;

No presente trabalho, este parâmetro foi determinado para o ^{241}Am , ^{60}Co e ^{58}Co , conforme será descrito no item 6.5.

4.4 - Cintiladores

4.4.1 - Princípio de funcionamento

A detecção por cintilação consiste em converter a energia depositada pela radiação incidente em energia luminosa que, por sua vez será convertida em pulso elétrico por meio de uma fotomultiplicadora. Como consequência, o material cintilador ideal precisa ter as seguintes propriedades^[17]:

- converter a energia cinética da partícula carregada em luz detectável, com alta eficiência;
- esta conversão precisa ser linear - o rendimento luminoso precisa ser proporcional à energia liberada;
- o meio precisa ser transparente ao comprimento de onda de sua própria emissão para possibilitar maior coleção da luz;
- o tempo de decaimento da luminescência induzida deve ser curto para que pulsos rápidos possam ser gerados;
- o material deve ser de boa qualidade óptica e possível de ser manufaturado em tamanhos e formas variadas;

- seu índice de refração deve ser próximo ao do vidro (~1.5) para permitir eficiente acoplamento com a fotomultiplicadora.

Dentre os materiais cintiladores destacam-se os cristais alcalinos, plásticos e líquidos orgânicos. Se o objetivo é a detecção de radiação gama os mais usados são os cristais inorgânicos ativados, como NaI(Tl) ou CsI(Tl), em razão do elevado número atômico de seus constituintes. Para detectar partículas beta usa-se, preferencialmente, materiais orgânicos que, por não serem higroscópicos, não necessitam ser selados além de poderem estar na forma líquida, para melhor detecção de beta de baixa energia.

4.4.2 - Cintiladores Orgânicos

Nos materiais orgânicos, a luminescência é proveniente da transição entre níveis de energia de uma molécula isolada podendo, portanto, ser observada independentemente do estado físico do material, que pode ser sólido policristalino, vapor, ou parte de uma solução composta. Não é necessária uma estrutura cristalina como no caso dos cintiladores inorgânicos.

Os cintiladores plásticos são soluções sólidas obtidas pela adição de compostos orgânicos fluorescentes em polímeros. Os mais adequados são os que possuem hidrocarbonetos aromáticos nas suas moléculas, tais como poliestireno e poliviniltolueno, e co-polímeros de metil-metacrilato e estireno. Dentre os compostos orgânicos usam-se p-terfenil, PPO, PBD, POPOP, BBOT e BDB.

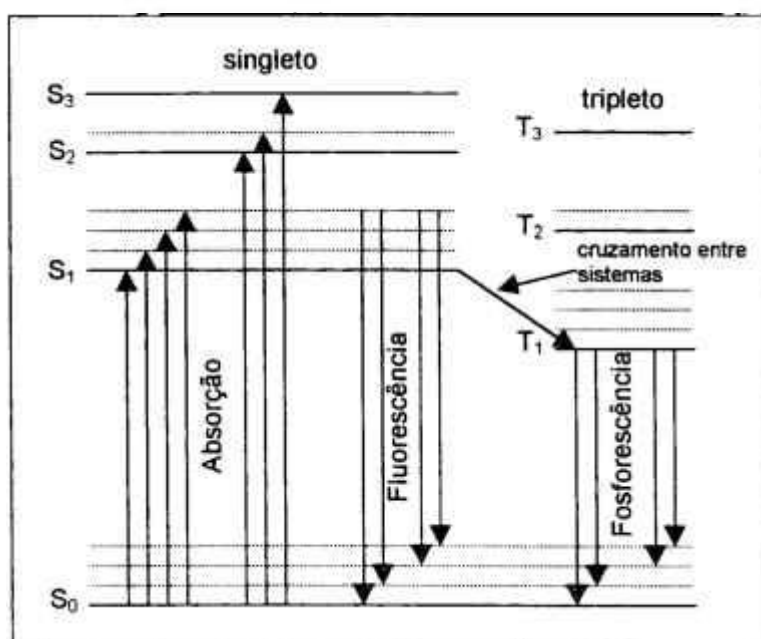


Fig. 4-5. Níveis de energia em molécula de estrutura π -elétron

A fig 4-5^[17] ilustra o que ocorre com as moléculas do cintilador plástico quando excitadas por radiação ionizante. Nela representa-se uma molécula com estrutura π -elétron mostrando seus níveis e subníveis de energia. Quando uma partícula carregada passa nas proximidades da molécula esta absorve sua energia cinética transferindo-a a seus elétrons elevando-os de seu

nível fundamental S_0 a estados excitados S_1 , S_2 ou S_3 , chamados singletos. Esta absorção está representada na figura pelas setas ascendentes. Após a excitação, em tempos da ordem de picossegundos, esses elétrons passam para o nível S_1 . Nessas moléculas a diferença de energia entre S_0 e S_1 é de 3 ou 4 eV, ao passo que entre os subníveis é da ordem de 0,15 eV, que é um valor grande quando comparado com as energias térmicas médias das moléculas em temperatura ambiente, da ordem de 0,025 eV. Consequentemente a molécula irá transferir essa energia de vibração às suas vizinhas e o resultado será uma grande quantidade de moléculas no estado excitado S_1 num curto intervalo de tempo. Nos cintiladores o processo de desexcitação de interesse é a fluorescência, por ocorrer em tempos da ordem de 10^{-8} s ou menos, enquanto que a fosforescência, decorrente de estados metaestáveis, pode ocorrer em intervalos de tempo que variam de microssegundos a horas.

A maior parte da energia de excitação é rapidamente degradada em calor, e somente uma pequena porcentagem é convertida em luz visível ou radiação ultravioleta.

Na fig 4-5 os níveis T_1 , T_2 e T_3 representam estados de tripleto que podem ter origem num processo chamado "cruzamento entre sistemas". A transição desses níveis ao estado fundamental se dá por fosforescência, mas algumas moléculas nesse estado podem ser excitadas novamente ao estado S_1 e decair por fluorescência com um certo atraso em relação aos demais fótons.

Por T_1 ficar abaixo de S_1 , o comprimento de onda desta fosforescência será maior que o do espectro de fluorescência.

A transferência de energia no cintilador plástico ocorre até que toda energia disponível dos anéis aromáticos da solução seja transferida às moléculas do cintilador primário (PPO) nas quais essa energia é transformada em fóton na região do ultravioleta. O cintilador secundário, no caso POPOP, absorve esses fótons e os reemite com menor energia, agora na região do visível. Os anéis benzênicos são os responsáveis pela migração da energia através da molécula.

Se τ representa o tempo de decaimento da fluorescência do nível S_1 , então a intensidade da fluorescência imediata para um tempo t após a excitação pode ser simplesmente:

$$I = I_0 e^{-t/\tau}$$

Como observa-se na fig 4-5 o comprimento das setas representa a energia dos fótons. Pode-se verificar que as setas que representam fluorescência são menores que as que representam absorção indicando que o material é transparente à sua própria fluorescência.

4.4.3 - Cintiladores inorgânicos

Os cintiladores inorgânicos são cristais que contém pequenas quantidades de impurezas que funcionam como ativadoras do processo de luminescência. A teoria das bandas^[17, 29] representa esses cristais como contendo uma banda de valência repleta de elétrons e uma banda de condução quase vazia. A banda de condução encontra-se acima da de valência e ambas estão separadas pela banda proibida, na qual elétrons livres não podem existir.

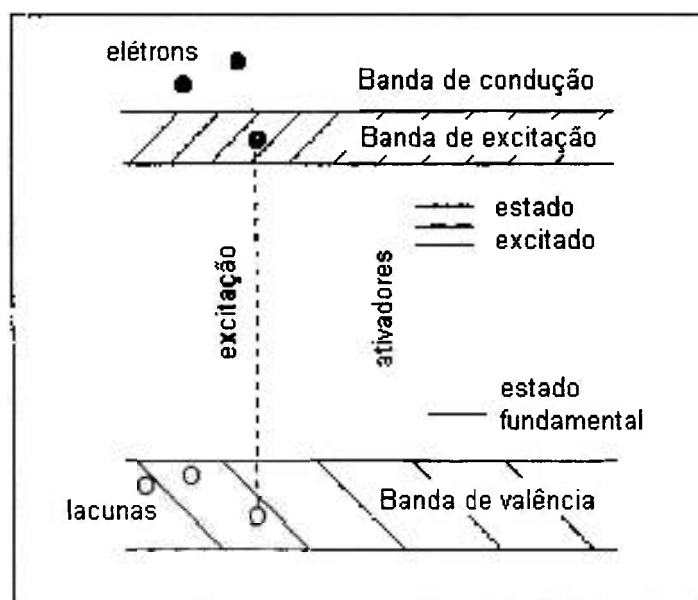


Fig. 4-6^[29] Bandas de energia em cristal cintilador ativado

A passagem da radiação ionizante pode mover elétrons da banda de valência para a banda de condução num processo chamado ionização. O elétron deixa, dessa forma, uma lacuna na banda de valência e um elétron na banda de condução, ambos livres para se moverem independentes dentro da estrutura

cristalina (fig 4-6). Nos cristais puros, o retorno do elétron à banda de valência com emissão de fóton visível, não é o processo mais freqüente. Imperfeições no cristal ou impurezas, chamadas de ativadores, podem criar níveis de energia na banda proibida, em pontos isolados, por todo o cristal, através dos quais os elétrons podem voltar à banda de valência. A lacuna deixada captura um elétron do ativador que, ficando ionizado, neutraliza-se capturando um elétron que foi até a banda de condução. Se o ativador for escolhido convenientemente, funcionará como uma armadilha que ao se neutralizar passará por um estado excitado, de meia-vida da ordem de 10^{-7} s, decaindo para o estado fundamental com emissão de fóton visível.

Alguns cristais inorgânicos conhecidos são NaI(Tl), CsI(Na), ZnS(Ag) e LiI(Eu).

No presente trabalho foi utilizado NaI(Tl) que é mais vantajoso para detecção da radiação gama devido ao elevado número atômico de seus constituintes. Em razão de possuir resposta lenta e necessidade de ser selado hermeticamente, por ser higroscópico, sua utilização para detecção de elétrons é limitada.

5 PARTE EXPERIMENTAL

5.1 - Projeto dos cintiladores

Com o objetivo de construir um detector em geometria 4π sr usando cintilador plástico - para detecção de partículas alfa, beta, elétrons e raios-X - projetou-se os cintiladores em forma de discos a fim de melhor acoplá-los à parte mais sensível do fotocátodo. Um disco inferior, contendo uma depressão coaxial onde é encaixada a arandela com a fonte radioativa, e outro superior que serve como tampa, para garantir a geometria 4π sr, como pode ser visto na figura 5-1.

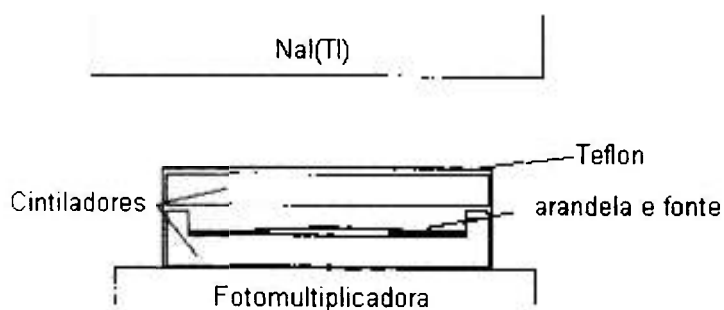


Fig. 5-1 – Corte vertical dos cintiladores com a arandela e a fonte.

Com este projeto:

- a geometria 4π sr é garantida;
- a parte eletrônica usada é bastante simples, já que usa apenas um cristal de NaI(Tl) e uma fotomultiplicadora para o cintilador plástico;
- a troca da fonte pode ser facilmente efetuada, bastando que a tampa seja removida, já que não há necessidade de sobrepor o NaI(Tl) no cintilador plástico.

Usinou-se a peça para ensaios no laboratório utilizando cintilador plástico fabricado pelo próprio IPEN^[14], que possui propriedades similares aos cintiladores comerciais tipo NE102A^[15]. São feitos à base de polímero estireno purificado usado como solvente, acrescido de PPO (1,4 difenil-oxanol) e POPOP 1,4-di-2-(5-fenil-oxazolil)-benzeno respectivamente a 0,5 e 0,05%.

Os discos foram usinados e polidos de modo a tornarem-se transparentes à luz e possuíam as seguintes dimensões:

a) disco inferior: diâmetro de 40 mm para que, dessa forma, pudessem melhor ajustar-se à parte mais sensível do fotocatodo que possui diâmetro de 50 mm; 4 mm de espessura com depressão de 2 mm de profundidade e 30 mm de diâmetro.

b) disco superior: diâmetro de 40 mm e 2 mm de espessura.

O disco inferior do cintilador plástico foi acoplado à fotomultiplicadora RCA 8850 usando-se graxa de silicone, a fim de garantir o acoplamento óptico. Na figura 5-2 pode ser visto o disco inferior acoplado à fotomultiplicadora juntamente com uma peça que foi construída para garantir que o cintilador, além de ficar perfeitamente encaixado no centro da fotomultiplicadora, não se desloque em relação à esta. O conjunto, cintilador e fotomultiplicadora, foi colocado dentro de um tubo cilíndrico metálico preto, como pode ser visto na figura 5-2.

Para medidas de coincidência, há necessidade de que a maior parte da luz gerada pelo plástico seja detectada pela fotomultiplicadora uma vez que, nesse método, a eficiência beta deverá ser próxima da unidade. Para tanto, é necessário detectar a luz emitida no sentido oposto ao da fotomultiplicadora e, com esse objetivo, o disco superior (figura 5-3) foi revestido de material difusor de luz. Esse disco, revestido de Teflon, foi preso à uma tampa de alumínio que se encaixa perfeitamente ao cilindro preto fosco (figura 5-2), o que garante completa vedação contra a luz externa.



Fig. 5-2 - Cintilador acoplado na fotomultiplicadora



Fig. 5-3 - Parte superior do cintilador envolta em Teflon

Teflon e folhas de alumínio foram testados como materiais refletoras mas o primeiro mostrou-se muito mais eficiente do que o segundo, fato observado anteriormente por Hamada^[30]

A seguir, procurou-se verificar a forma do espectro de altura de pulsos obtido por meio do cintilador plástico com essa geometria, usando-se para tanto, fontes de material radioativo depositadas em filme de Collodion metalizado (item 5.2.2). O primeiro radionuclídeo utilizado foi ^{241}Am (item 4.2.7.1), que decai emitindo partículas alfa de 5,4 MeV, facilmente detectáveis pelo cintilador plástico. Utilizando-se o esquema eletrônico da figura 5-4 verificou-se que o espectro assim obtido apresentava dois picos bem distintos em lugar de apenas um como era esperado.



Fig. 5-4 - Sistema eletrônico para registro do espectro.

Com a retirada do cintilador superior verificou-se que o primeiro pico era referente ao cintilador superior e o segundo pico referente ao cintilador inferior. Passou-se a estudar a influência das dimensões dos cintiladores na posição relativa entre os dois picos. Para isso, utilizou-se cintiladores cujas

espessuras variaram de 4 mm a 9 mm e que possuíam depressões de diferentes profundidades e diferentes diâmetros.

Em todos os casos o espectro apresentou dois picos bem definidos para as partículas alfas emitidas pelo ^{241}Am mas esses picos ficavam mais próximos ou mais afastados um do outro dependendo das dimensões, principalmente das espessuras dos cintiladores. Optou-se pelo cintilador com as medidas apresentadas na figura 5-5 por ser este o caso no qual os dois picos ficavam mais próximos entre si. Nestas condições, ocorre maior uniformidade na coleção de luz dos dois cintiladores, já que ambos forneciam pulsos de amplitudes semelhantes. A figura 5-6 corresponde ao espectro obtido usando-se o cintilador da figura 5-5. O pico à direita corresponde ao cintilador superior e o pico localizado à esquerda corresponde ao cintilador inferior.

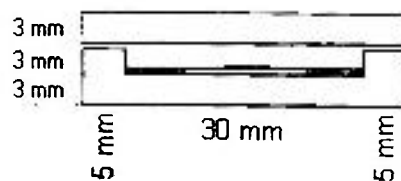


Fig 5-5 - Dimensões do cintilador utilizado

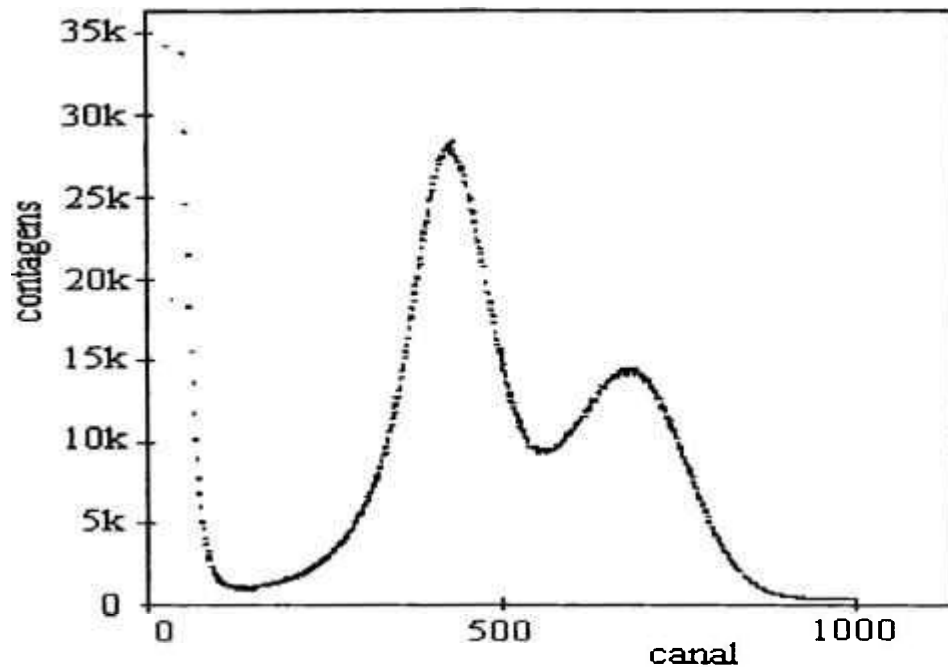


Fig. 5-6 - Espectro do ^{241}Am obtido com o cintilador plástico

Com o objetivo de verificar o comportamento do espectrômetro para um emissor beta, utilizou-se o ^{60}Co , radionuclídeo que decai emitindo partículas beta com energia máxima de 318 keV (item 4.2.7.2). Através do mesmo circuito eletrônico obteve-se o espectro da figura 5-7. No caso dos emissores beta não foi observada diferença considerável na forma do espectro quando se retirou o cintilador superior. Isto pode ser explicado pelo espectro de altura de pulsos para betas que apresenta a forma de uma cauda, o que dificulta a separação dos pulsos provenientes de cada parte do cintilador.

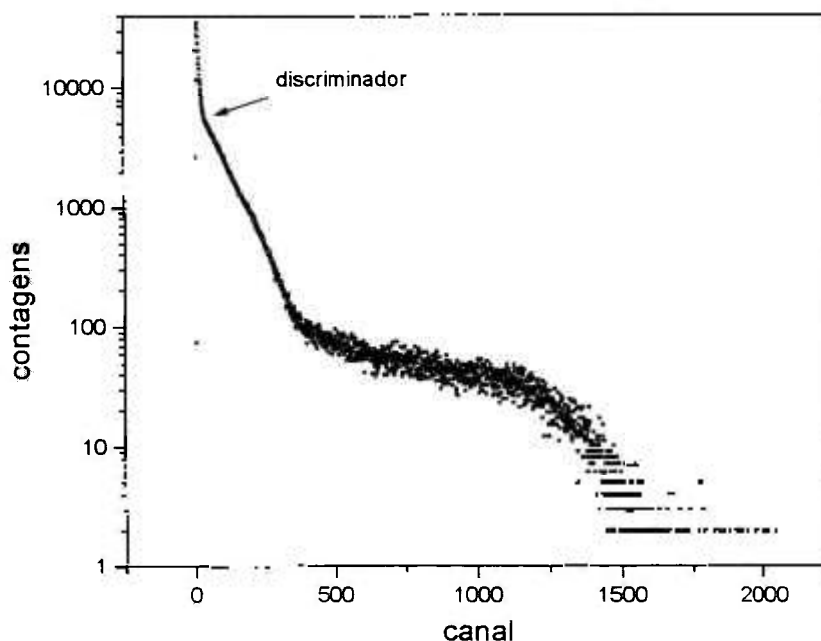


Fig. 5-7 - Espectro do ^{60}Co obtido com o cintilador plástico

Após definir as dimensões do cintilador plástico que seria utilizado passou-se às medidas de coincidência para que fossem determinadas as eficiências alfa (ε_α) e beta (ε_β) do cintilador plástico através das relações N_α/N_γ para cada um dos casos (item 4.2).

Com o objetivo de simplificar a parte eletrônica utilizou-se apenas um cristal de $\text{NaI}(\text{TI})$ para detecção da radiação gama e apenas uma fotomultiplicadora para o cintilador plástico (fig 5-1). Esta configuração é adequada para a detecção de elétrons com energia superior a aproximadamente 20 keV.

Uma distância de 10 cm foi deixada entre o cintilador plástico e o NaI(Tl) para que a troca da fonte pudesse ser efetuada deslocando-se apenas o disco superior do cintilador.

O conjunto contendo o cintilador plástico e um cristal de NaI(Tl) foi montado e acoplado ao sistema eletrônico de coincidências, de acordo com o esquema da figura 5-8.

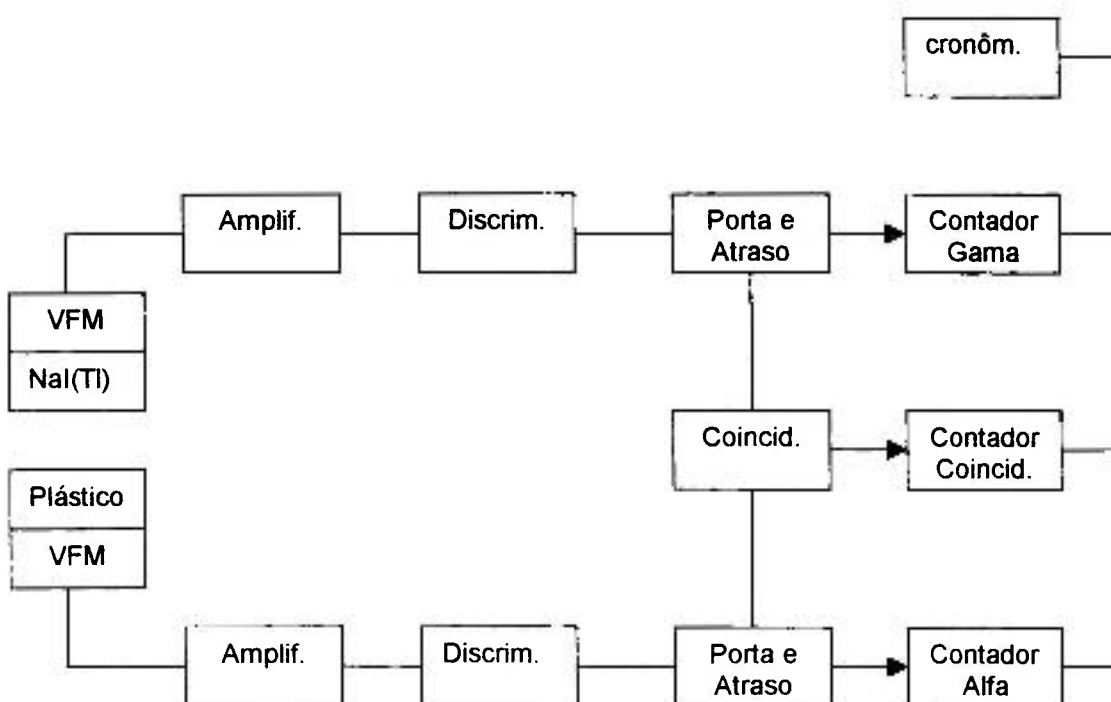


Fig. 5-8 Sistema eletrônico para contagem de coincidência α - γ

No sistema eletrônico usado, os pulsos, tanto da via beta como da via gama, são amplificados e passam por discriminadores. Na via beta o discriminador é posicionado de forma a eliminar apenas o ruído e para a via gama os níveis, inferior e superior, são posicionados de forma a só deixarem passar as

contagens gama referentes ao pico de absorção total da energia de interesse. Após a passagem dos pulsos através dos discriminadores, eles são enviados para um módulo de porta e atraso, seguindo para os contadores de eventos.

O emissor alfa utilizado foi o ^{241}Am para o qual as contagens efetuadas forneceram um valor de 90% para a eficiência alfa (ϵ_α), encontrada através da razão N_α/N_γ .

No caso do emissor beta estudado, ^{60}Co , a eficiência (ϵ_β) não chegou a 20% sendo considerada muito baixa para utilizar-se o método de coincidência que faz a exigência que esta seja próxima da unidade para suas equações terem validade.

Visando melhorar a eficiência beta, procurou-se alterar a geometria da montagem de forma a conseguir maior coleção de luz pela fotomultiplicadora. Para tanto, aumentou-se a espessura da parede do "poço" para 10 mm reduzindo-se o tamanho da arandela que sustenta a fonte para 20 mm de diâmetro externo e 10 mm de diâmetro interno. Esse procedimento além de aumentar a área de contato entre os dois discos diminui a área opaca à luz provocada pela arandela. Além disso reduziu-se a espessura da arandela para 0,1 mm, obtendo-se, desse modo, um aumento no ângulo sólido. As novas dimensões do cintilador podem ser vistas na figura 5-9



Fig 5-9 - Dimensões otimizadas do cintilador plástico

O aumento da espessura da parede lateral e diminuição do diâmetro e da espessura da arandela acarretou aumento das eficiências. A eficiência alfa (ϵ_{α}) aumentou de 90% para 94% e a eficiência beta (ϵ_{β}) de 20% para 60%.

Com estes resultados, definiu-se a forma e dimensões dos discos de cintilador plástico que seriam utilizados nas medidas de coincidência. Verificou-se que a maior parte da luz gerada pelo cintilador superior passa deste para o inferior através da parede lateral desse "poço" fazendo com que a eficiência beta aumente com o aumento da espessura dessa parede.

O contador proporcional utiliza arandelas de aço com diâmetro externo de 40 mm e interno de 20 mm portanto, se as arandelas das fontes a serem calibradas no cintilador tiverem 20 mm de diâmetro externo, as fontes que forem calibradas no contador proporcional podem ser facilmente transferidas para as arandelas do cintilador plástico, já que estas últimas encaixam-se perfeitamente no interior das primeiras.

5.2- Padronização de radionuclídeos

Na padronização de radionuclídeos pelo método de coincidência faz-se as medidas das taxas de contagens beta (N_β), gama (N_γ) e coincidência (N_c) para diferentes valores de eficiência beta, subtrai-se a radiação de fundo, corrige-se para tempo morto e tempo de resolução e traça-se um gráfico de $N_\beta N_\gamma / N_c$ em função de $(1 - N_c / N_\gamma) / (N_c / N_\gamma)$ cuja extrapolação da curva irá fornecer o valor da atividade da fonte (item 4.2). Construída a curva de calibração para um determinado radionuclídeo, os parâmetros de ajuste dessa curva podem ser utilizados na padronização de outras fontes desse mesmo radionuclídeo.

As relações $N_\beta N_\gamma / N_c$ foram calculadas com o auxílio do programa CONTAC^[31] e os dados analisados com o auxílio do programa LINFIT^[32], ambos desenvolvidos no LMN. Este último faz o ajuste dos pontos pelo método dos mínimos quadrados usando a metodologia da matriz de covariância para o cálculo das incertezas e dos parâmetros de extrapolação da curva.

O sistema desenvolvido no presente trabalho, para ser utilizado como um sistema primário, necessita que seus resultados estejam de acordo com os resultados encontrados em outro sistema primário já consagrado. Com o objetivo de verificar a validade do sistema desenvolvido, utilizou-se o sistema de

coincidência existente no LMN do IPEN, $4\pi(PC)-NaI(Tl)$, composto por contador proporcional e cintiladores de iodeto de sódio. Este sistema está em funcionamento a cerca de trinta e oito anos, tendo obtido excelentes resultados em comparações internacionais promovidas pelo Bureau International des Poids et Mesures (BIPM). No item 5.2.1.1.1 são apresentadas as características principais deste sistema.

5.2.1 - Sistemas de coincidência utilizados nas medidas

5.2.1.1 - Características dos detectores

5.2.1.1.1 - $4\pi(PC)-NaI(Tl)$

Dois sistemas deste tipo servem como padrões primários aos diversos sistemas de calibração secundários do LMN, tendo participado de várias Comparações Internacionais além ter sido utilizado em várias dissertações de Mestrado^[11, 20, 21] e teses de Doutorado^[12, 13, 19]. No presente trabalho foram utilizados para que se pudesse fazer uma comparação com o sistema desenvolvido.

- **Sistema I**

- a) **$4\pi(PC)$** - contador proporcional do tipo "pill box" a gás P-10 fluente^[13, 19, 20], em geometria 4π sr, usado para contagens das partículas alfa, beta, elétrons de conversão e raios X. Este sistema apresenta: eficiência para detecção de partículas alfa próxima de 100%; eficiência para detecção de

partículas beta da ordem de 95%; eficiência para detecção de radiação gama menor do que 1%; tempo de recuperação da ordem de 100 ns.

O contador proporcional é constituído por duas partes idênticas feitas em bloco de latão, que possuem um mangueira para entrada e saída de gás, e cuja parte interna, usada para detecção, é de forma aproximadamente cilíndrica medindo 3,0 cm de diâmetro e 7,5 cm de comprimento. Uma dessas partes pode ser vista na figura 5-10. No interior de cada uma dessas partes encontra-se um anodo de aço inoxidável com diâmetro de 25 μm , preso por isoladores de Teflon nas duas extremidades. As duas partes são unidas e vedadas por meio de anéis de borracha. Na figura 5-11 pode-se ver essas duas partes já unidas e, entre elas uma gaveta aberta, também de latão, que contém dois orifícios. O maior, onde é encaixada a fonte radioativa, e o menor que serve para puxar a gaveta. Esse sistema permite que a fonte radioativa seja trocada sem a necessidade de abrir-se o detector.

Ele opera na região proporcional com uma tensão de +1450 V para partículas alfa e +2050 V para partículas beta e possui uma janela fina ($\sim 0,5$ mm de alumínio) na sua parte superior, onde é acoplado o detector gama.

b) NaI(Tl) - um cristal de 50 mm X 50 mm, colocado na janela do contador proporcional, que opera à tensão de +850 V, usado para detecção de radiação gama. Este sistema possui apenas um NaI(Tl) colocado sobre o contador proporcional.

O sistema completo está inserido dentro de uma blindagem de chumbo com duas torres cilíndricas, também de chumbo, que protegem os dois cristais de iodeto de sódio.

- **Sistema II**

a) 4π (PC) - difere do anterior apenas por não possuir janela;

b) NaI(Tl) - dois cristais de 76 mm X 76 mm, usados para detecção de radiação gama, colocados um na parte superior e outro na parte inferior do detector proporcional, conectados a fotomultiplicadoras que operam à tensão de +1100 V.

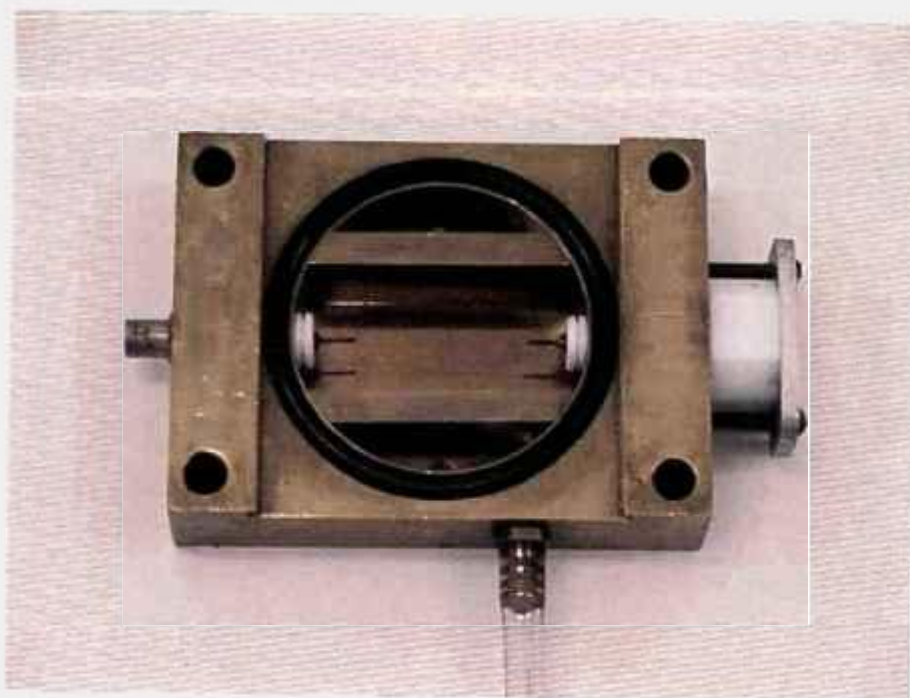


Fig. 5-10 - Interior do Contador Proporcional



Fig. 5-11 - Contador Proporcional dentro da blindagem

5.2.1.1.2 - 4π (PS)-NaI(Tl)

- **Sistema I**

a) 4π (PS) - este é o detector de cintilação plástico desenvolvido no presente trabalho e que se encontra descrito no item 5.1 e apresentado nas figuras 5-2, 5-3 e 5-9.

b) NaI(Tl) - cristal de 76 cm X 76 cm, destinado à detecção de radiação gama, acoplado a uma fotomultiplicadora que opera à tensão de +1100 V e posicionado coaxialmente, a uma distância de 10 cm da fonte radioativa. O cintilador plástico e o NaI(Tl) foram montados de acordo com o arranjo que pode ser observado na figura 5-1. A fim de diminuir a radiação de fundo, todo sistema foi colocado no interior de uma blindagem de chumbo, com 5 cm de espessura.

- **Sistema II**

a) 4π (PS) - mesmo cintilador do sistema I;

b) NaI(Tl) - cristal de 50 mm X 50 mm, destinado à detecção de radiação gama, acoplado a uma fotomultiplicadora que operava à tensão de +800 V. Este detector, devido à sua menor dimensão em relação ao anterior, foi colocado apoiado na tampa de alumínio do cintilador plástico para, dessa forma, aumentar sua eficiência de detecção, como pode ser visto na figura 5-12. O objetivo da alteração foi o de diminuir a contagem de fundo, principalmente para os radionuclídeos com gamas de baixa energia.

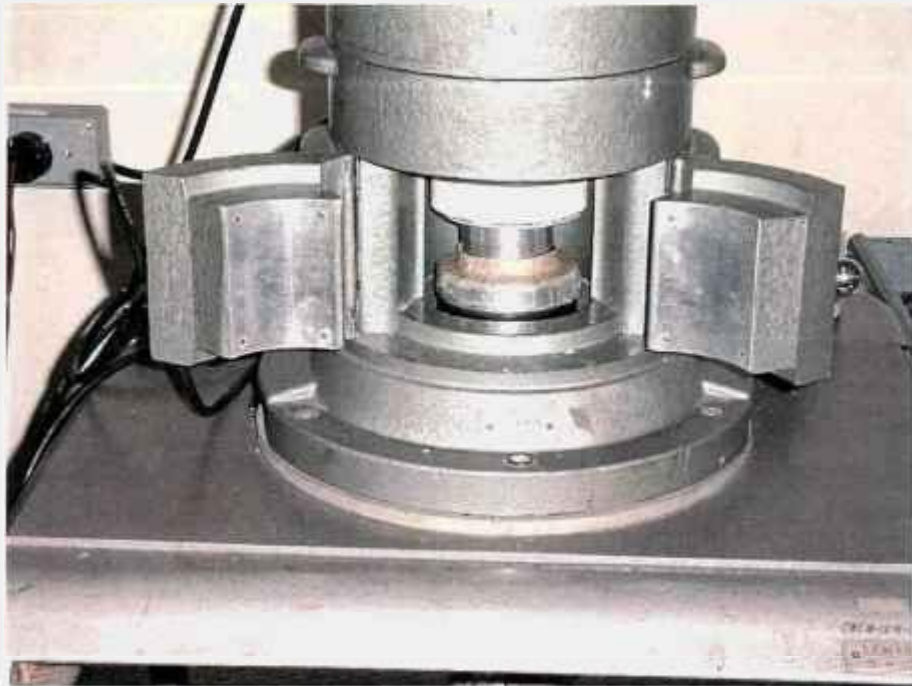


Fig. 5-12 - 4π (PS)-NaI(Tl) - Sistema II, dentro da blindagem

5.2.1.2 - Eletrônica associada

Durante o decorrer do presente trabalho, foram utilizados dois circuitos eletrônicos distintos. O primeiro, já visto na figura 5-8, utilizou contadores de pulsos e impressora para registrar as contagens alfa, gama e de coincidência. Procurando simplificar a parte eletrônica foram estudadas diferentes alternativas na tentativa de substituir o módulo soma, os três contadores de pulsos e a impressora. Isto foi conseguido utilizando um módulo que converte intervalo de tempo entre dois pulsos em amplitude de pulso (*TAC*), juntamente com módulos de atraso e um analisador multicanal, a fim de obter um "espectro de tempos", ou seja, picos de contagens em função do tempo cujas áreas fornecem as contagens N_β , N_γ e N_c .

Para ensaios com o novo circuito eletrônico utilizou-se o $4\pi(PC)-NaI(Tl)$ - Sistema II, em uso no laboratório, e uma fonte de ^{60}Co . Vários circuitos eletrônicos foram experimentados e o que apresentou melhores resultados pode ser visto na figura 5-13.

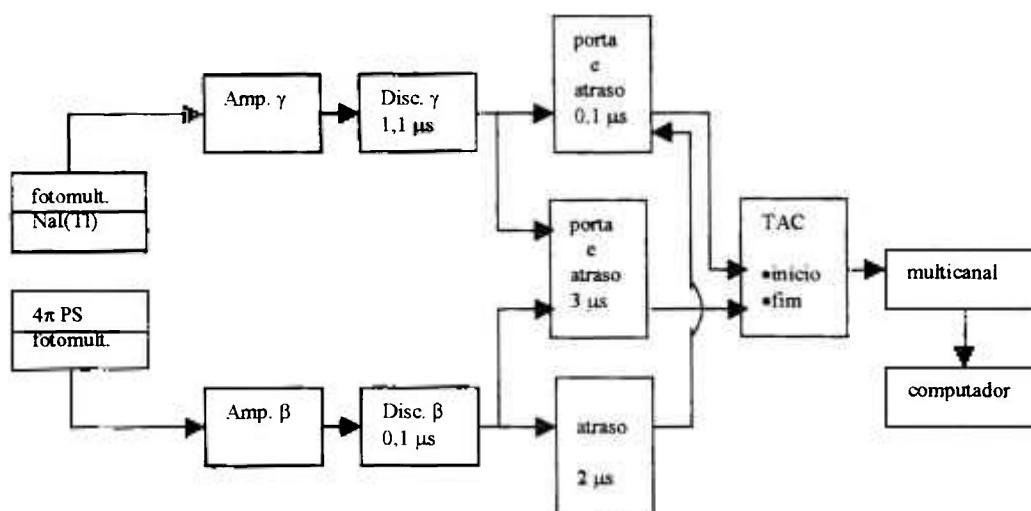


Fig. 5-13 - Circuito eletrônico utilizado na padronização de radionuclídeos nos sistemas $4\pi(\text{PS})\text{-NaI}(\text{TI})$.

Neste circuito observa-se que o sinal do discriminador gama sai com atraso de $1\ \mu\text{s}$ em relação ao sinal do discriminador beta, portanto toda vez que for detectada uma partícula beta esta dará o início no módulo que converte intervalo de tempo entre dois pulsos em amplitude de pulso (*TAC*). Caso não haja gama associado a esse beta, o término será dado pelo sinal proveniente do discriminador beta após ter sofrido um atraso de $1\ \mu\text{s}$ em relação ao anterior. Isto gera um pico no analisador multicanal cuja área corresponde à contagem dos betas que não possuem raio gama associado como pode ser visto na figura 5-14. Se o início for dado pelo beta e o término por um gama associado a ele, tem-se uma contagem de coincidência, que dará origem a um outro pico atrasado de $2\ \mu\text{s}$. O mesmo irá ocorrer se o início for dado por um pulso proveniente do discriminador gama e o término pelo sinal proveniente do discriminador beta. O último pico refere-se à contagem dos raios gama que não tem betas associados.

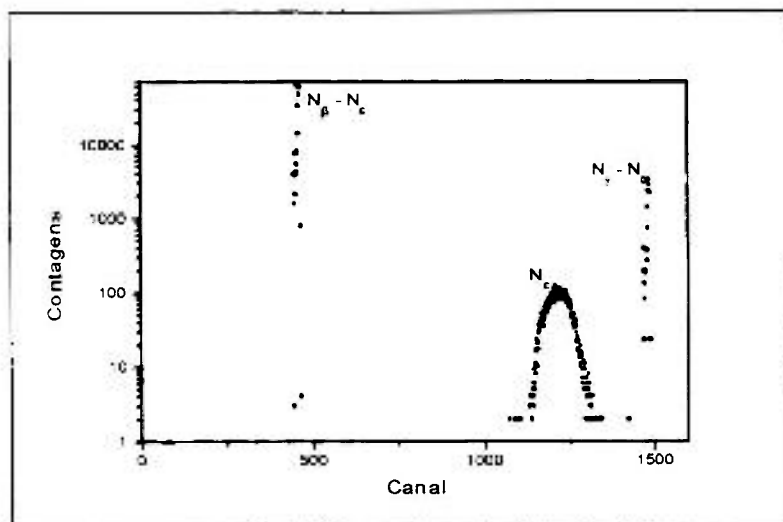


Fig. 5-14 - Contagens em função do tempo - ^{60}Co

Os espectros fornecidos pelo circuito eletrônico descrito foram analisados através do programa CONTAC^[31], desenvolvido no LMN, que fornece os valores da atividade e do parâmetro de ineficiência, juntamente com seus respectivos erros, já corrigidos para decaimento, radiação de fundo, tempo morto e tempo de resolução.

Após diversos ensaios e comparações com o sistema convencional, observou-se que os resultados concordavam dentro das incertezas experimentais associadas. Por esta razão, este circuito passou a ser adotado no laboratório, já que é mais simples que o anterior. O bom funcionamento deste circuito já havia sido verificado em tese de doutorado desenvolvida no Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN^[19], quando foi aplicado a um sistema de coincidência convencional. Pode-se mencionar que em razão do cintilador plástico ser um tipo de detector de resposta muito mais rápida que o detector proporcional, observou-

se que a largura do pico de coincidências, no presente sistema, é menor que aquela obtida no sistema de coincidências convencional.

5.2.2 - Preparação das fontes

As fontes foram preparadas depositando-se alíquotas de solução radioativa sobre filme de Collodion, nitrato de celulose, com densidade superficial variável entre 10 e 20 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$, com uso de picnômetro^[19]. A massa da fonte foi calculada determinando-se a massa do picnômetro antes e depois da deposição, através de uma balança Mettler M5SA, com incerteza de 20 μg .

A secagem da fonte foi feita em dessecador após a aplicação de agente umectante, que diminui a tensão superficial da gota, evitando desse modo a formação de cristais que podem acarretar auto absorção na fonte. Para tanto foi colocada uma gota de Cyastat S. N. (concentração 1%) sobre a alíquota de solução radioativa.

O filme foi sustentado por arandela com 20 mm de diâmetro externo e 10 mm de diâmetro interno feita em aço inoxidável de 0,1 mm de espessura ou lucite de 1 mm de espessura, dependendo das medidas a serem efetuadas.

Algumas fontes utilizadas foram preparadas para serem padronizadas também nos sistemas $4\pi(\text{PC})\text{-NaI}(\text{TI})$, a fim de que pudesse ser verificada a validade do novo sistema. Nesse caso as arandelas utilizadas

mediam 40 mm de diâmetro externo e 20 mm de diâmetro interno com 0,1 mm de espessura e os filmes foram metalizados por vaporização de ouro em alto vácuo, com camada de $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, com o objetivo de uniformizar o campo elétrico no interior do contador proporcional.

Após a padronização nos sistemas $4\pi(\text{PC})\text{-NaI}(\text{TI})$, essas fontes foram transferidas para arandelas menores, com diâmetro externo de 20 mm e interno de 10 mm, para serem calibradas nos sistemas $4\pi(\text{PS})\text{-NaI}(\text{TI})$.

A metalização das fontes só foi necessária para que elas pudessem ser calibradas com o uso do contador proporcional. No sistema composto pelo cintilador plástico esta metalização não só é dispensável como dificulta o processo de coleção da luz emitida pelo cintilador superior devendo, portanto ser evitada sempre que possível.

Alguns ensaios realizados, substituindo a arandela de aço por um substrato de mylar de $18 \mu\text{m}$ de espessura e recobertos de Collodion, apresentaram resultados insatisfatórios, obtendo-se uma eficiência de detecção de 31% para o ^{60}Co . Este resultado é muito inferior ao obtido com a arandela de aço inoxidável, que foi da ordem de 60%.

6 RESULTADOS E DISCUSSÕES

6.1 - Padronização do ^{241}Am ^[26, 33]

As fontes foram preparadas de acordo com o descrito no item 5.2.2 usando-se filme metalizado sustentado por arandela de aço inoxidável. Foram calibradas primeiro no $4\pi(\text{PC}) - \text{NaI}(\text{TI}) - \text{Sistema II}$ e depois transferidas para as arandelas menores para que fossem calibradas no $4\pi(\text{PS})-\text{NaI}(\text{TI}) - \text{Sistema I}$.

Nos dois sistemas utilizou-se o circuito eletrônico da figura 5-13. Os níveis dos discriminadores foram posicionados de modo que os pulsos originários da via alfa fossem considerados logo acima do ruído e os pulsos da via gama foram discriminados no pico de absorção total para a energia de 60 keV do ^{241}Am , a fim de evitar coincidências gama-gama.

No $4\pi(\text{PC}) - \text{NaI}(\text{TI}) - \text{Sistema I}$ (item 5.2.1.1.1), utilizou-se o método de coincidências. O valor encontrado foi extrapolado para eficiência unitária e pode ser encontrado na Tabela 6-1.

Usando-se o $4\pi(PS)-NaI(Tl)$ - Sistema I (item 5.2.1.1.2) variou-se a eficiência alfa alterando-se o nível inferior de discriminação da via alfa, para que se pudesse construir um gráfico da atividade em função do parâmetro de ineficiência e, desta forma, determinar a atividade da fonte através da extrapolação da curva que pode ser vista na figura 6-1.

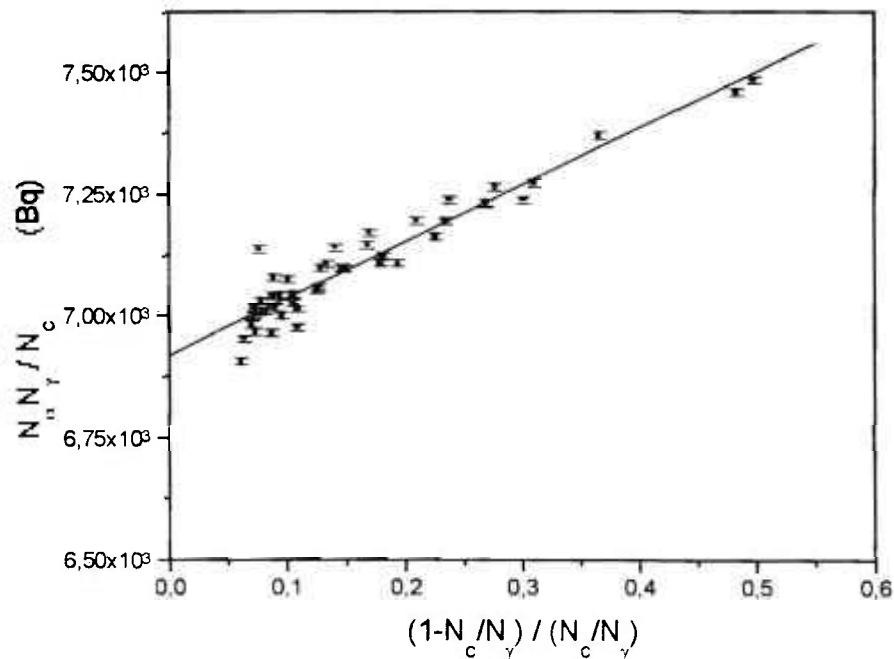


Fig. 6-1 - Atividade em função do parâmetro de ineficiência - ^{241}Am

(Fonte A)

A extrapolação desta curva forneceu resultados que estavam em desacordo com os obtidos com sistema $4\pi(PC)-NaI(Tl)$, sistema de calibração primário, em uso no laboratório. Estes resultados levaram a um estudo mais detalhado da curva utilizada. Observando que, no início da reta, há um ponto bem deslocado acima desta procurou-se verificar se era em razão de algum problema surgido durante a medida ou se havia um pico nessa região.

Como a variação da eficiência foi feita deslocando-se o nível inferior de discriminação as contagens foram repetidas com intervalos de variação menor. Isto levou à curva da figura 6-2, na qual fica claro que existem duas inclinações diferentes, impedindo que o ajuste seja feito por meio de um polinômio de primeiro grau.

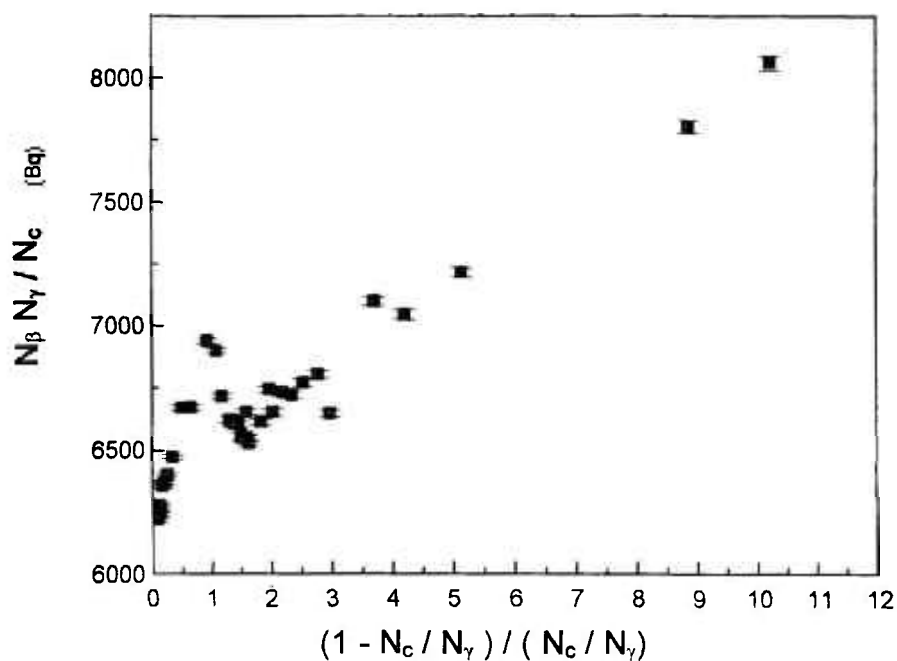


Fig. 6-2 - Atividade em função do parâmetro de ineficiência - ^{241}Am

(Fonte B)

Concluiu-se que o comportamento da curva da atividade em função do parâmetro de ineficiência, apresenta dois trechos com inclinações distintas. Isto pode ser explicado considerando que cada um dos cintiladores, inferior e superior, produz pulsos de amplitudes diferentes e que quando se altera o nível inferior de discriminação, altera-se a eficiência beta-gama ao mesmo tempo, o que pode invalidar o método de coincidências. Posteriormente, verificou-se que

também são detectados os elétrons de conversão produzidos no decaimento. Portanto, a primeira queda abrupta da curva corresponde ao corte, através do discriminador, dos pulsos referentes a esses elétrons que são coletados pelo cintilador superior. A segunda inclinação é referente ao corte dos elétrons que são coletados pelo cintilador inferior.

Diferentes medidas de contagens foram efetuadas variando-se a eficiência alfa através do uso de absorvedores externos, constituídos por Makrofol com 0,080 mm de espessura, colocados envolvendo a fonte^[33]. A curva de extrapolação obtida nestas condições pode ser vista na figura 6-3.

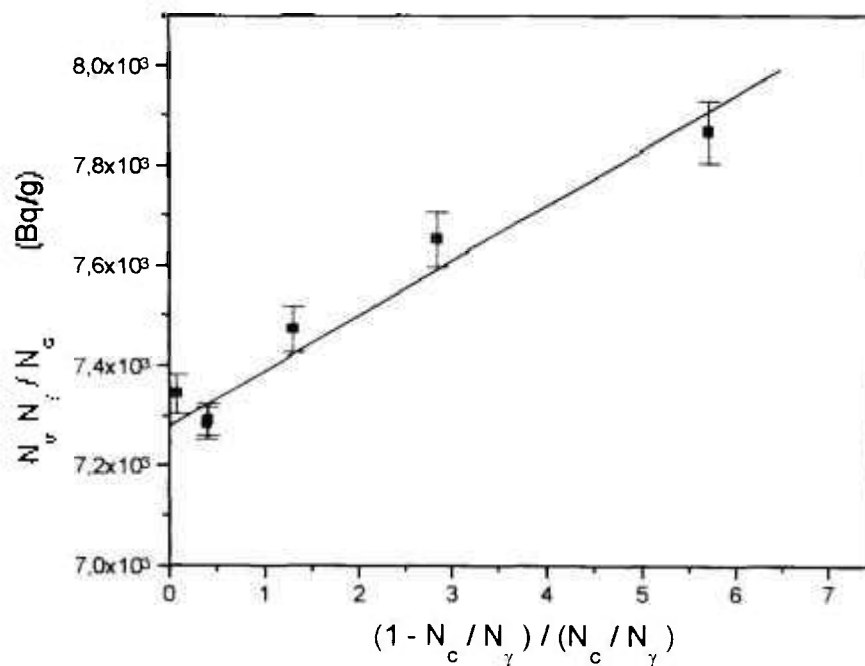


Fig. 6-3 - Atividade em função do parâmetro de ineficiência - ²⁴¹Am

(Fonte C)

Os resultados da atividade do sistema em estudo em comparação ao sistema convencional podem ser vistos na Tabela 6-1 apresentando excelente acordo entre os dois e estando de acordo com o previsto na equação 4.22.

Tabela 6-1 - Padronização do ^{241}Am

Sistema	radionuclídeo	atividade (kBq/g)	inclinação (%)
4 π (PC)-NaI(Tl)	^{241}Am	(7,272 \pm 0,009)	
4 π (PS)-NaI(Tl)	^{241}Am	(7,276 \pm 0,012)	(1,11 \pm 0,59)

As medidas anteriormente feitas, usando-se arandela de lucite e filme não metalizado, forneceram eficiência alfa da ordem de 95%. Dada a impossibilidade de contagem dessas fontes no sistema convencional, foram usadas arandelas de aço inoxidável e filme metalizado. Isto acarretou uma diminuição da eficiência para 89%. Embora a eficiência alfa tenha diminuído os resultados foram satisfatórios.

A reta extrapolada na fig. 6-3 apresenta inclinação de (1,11 \pm 0,59)%. Como pode ser observado o erro na inclinação é grande, porém a sua contribuição para a incerteza na atividade é pequena (menor que 0,1%) uma vez que a eficiência alfa do detector é em torno de 95%.

Na Tabela 4-1 tem-se que os elétrons de conversão de maior energia (37,9 keV) tem intensidade de 34 % o que é muito maior do que a inclinação da curva. Isto mostra que os elétrons de conversão não estão sendo detectados na sua totalidade.

A inclinação da reta não é consequência apenas da eficiência do cintilador para a radiação gama. Este valor de inclinação é bem maior que $(0,152 \pm 0,017)$ encontrado para a eficiência beta-gama o que mostra que a inclinação é também é devida à detecção parcial de elétrons de conversão interna.

Recomenda-se o uso da inclinação da curva para o caso de cálculo da atividade das fontes.

6.2 - Padronização do ^{60}Co ^[26]

Utilizando-se o $4\pi(\text{PS})\text{-NaI}(\text{TI})$ - Sistema I, já descrito no item 5.2.1.1.2 e o circuito eletrônico da figura 5-13, posicionou-se os níveis dos discriminadores de forma que na via beta fosse eliminado apenas o ruído e os pulsos provenientes da via gama fossem discriminados nos picos de absorção

total para a energias de 1173 keV e 1332 keV de modo a evitar a coincidência gama-gama.

Usando-se uma fonte de ^{60}Co previamente calibrada no sistema convencional fez-se medidas da atividade variando-se a eficiência beta por meio do uso de absorvedores externos constituídos de folhas de Makrofol de 0,080 mm de espessura, colocadas envolvendo a fonte. Com os resultados obtidos construiu-se a curva de atividade em função do parâmetro de ineficiência, que pode ser vista na figura 6-4.

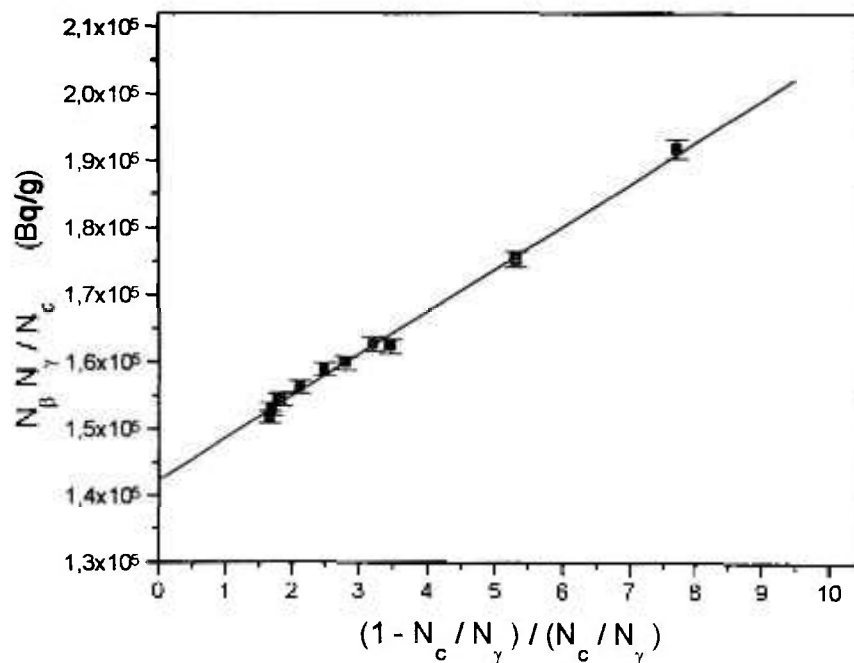


Fig 6-4 - Atividade em função do parâmetro de ineficiência - ^{60}Co

Os resultados são apresentados na Tabela 6-2 e mostram excelente acordo entre os dois sistemas e a equação 4.27.

Tabela 6-2 - Padronização do ^{60}Co

Sistema	radionuclídeo	atividade (kBq/g)	inclinação (%)
4 π (PC)-NaI(Tl)	^{60}Co	(142,72 \pm 0,29)	
4 π (PS)-NaI(Tl)	^{60}Co	(142,42 \pm 0,54)	(4,32 \pm 0,13)

Para o ^{60}Co o valor da inclinação da curva está de acordo com o valor da eficiência beta-gama encontrada e os resultados estão em pleno acordo com a equação 4.27.

6.3 - Padronização do ^{18}F

Diversas fontes de ^{18}F foram preparadas utilizando-se arandelas de aço inoxidável do sistema 4 π (PC)-NaI(Tl) - Sistema II. Essas fontes, depois de serem calibradas no sistema convencional, foram transferidas para as arandelas pequenas de aço inoxidável para serem calibradas no 4 π (PS)-NaI(Tl) - Sistema I, item 5.2.1.1.2.

Utilizando-se o circuito da figura 5-13, os pulsos provenientes da via gama foram discriminados nos picos de absorção total para a energia de 511 keV de modo a evitar coincidências gama-gama. Os pulsos provenientes da via beta foram discriminados apenas para eliminar o ruído eletrônico.

O parâmetro de ineficiência foi variado através da mudança do nível inferior de discriminação e obteve-se uma reta com inclinação nula, dentro da incerteza experimental (figura 6-5).

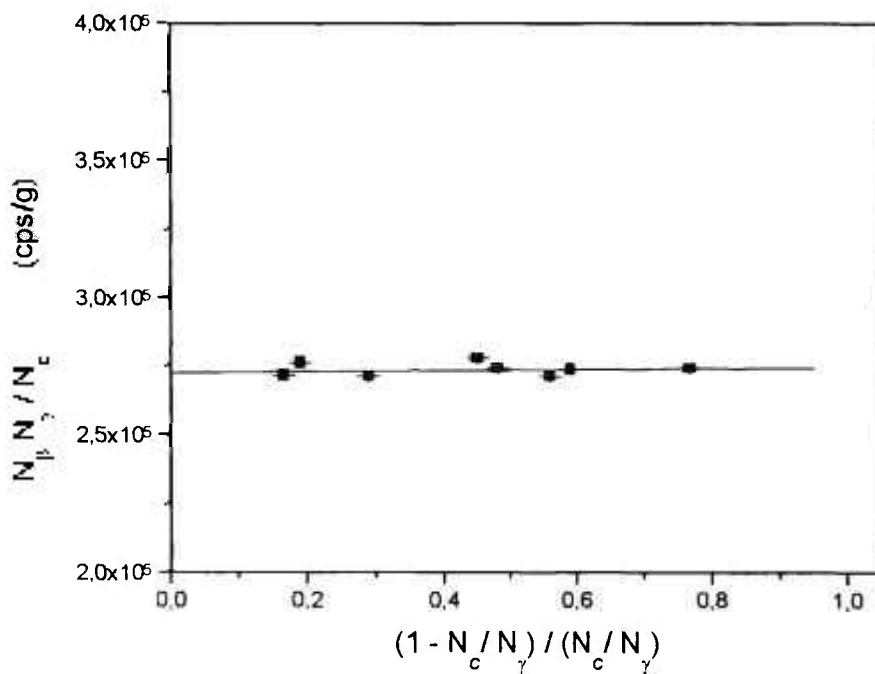


Fig. 6-5 - Atividade em função do parâmetro de ineficiência - fontes de ^{18}F

Os valores de $N_{\beta} N_{\gamma} / N_c$ foram corrigidos para a variação da eficiência beta-gama e o resultado da extrapolação da curva encontra-se na Tabela 6-3 e mostra excelente acordo com as equações 4.31 e entre os dois sistemas.

Tabela 6-3 - Padronização do ^{18}F

Sistema	radionuclídeo	atividade (kBq/g)	inclinação (%)
4 π (PC)-NaI(Tl)	^{18}F	(276,8 \pm 2,0)	
4 π (PS)-NaI(Tl)	^{18}F	(275,2 \pm 1,1)	(0,89 \pm 1,54)

A curva de extrapolação do ^{18}F apresenta inclinação nula dentro da incerteza experimental.

Embora a equação 4.31 mostre claramente que a inclinação deva existir observa-se que, variando a eficiência beta através da variação do nível inferior de discriminação, variou-se igualmente a eficiência beta-gama, pois a inclinação encontrada é nula.

6.4 - Padronização do ^{133}Ba

O Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN padronizou o ^{133}Ba por ocasião da comparação internacional patrocinada pelo Bureau International des Poids et Mesures (BIPM), em 1984^[34]. Fontes calibradas nessa época foram novamente calibradas no sistema convencional, e verificou-se que o mesmo manteve as condições anteriores. Essas mesmas fontes foram transferidas para arandelas de aço do sistema 4 π (PS)-NaI(Tl)- Sistema II a fim de verificar seu

desempenho. Observou-se que a eficiência beta era muito baixa ($< 1\%$) e, por esta razão, alguns cuidados foram tomados, tais como utilização de arandelas de lucite e filmes não metalizados, a fim de aumentar a eficiência de coleção de luz.

Em razão da baixa atividade da solução radioativa original, optou-se por calibrar uma nova solução de ^{133}Ba , com a qual foram preparadas 14 fontes, sendo metade em arandelas de lucite e o restante em arandelas de aço inoxidável, todas sem metalização (os substratos não foram metalizados a fim de permitir uma coleção de luz mais eficiente). As fontes em arandelas de lucite destinavam-se a contagens no sistema $4\pi(\text{PS})\text{-NaI(Tl)}$ - *Sistema II* e as demais seriam calibradas no sistema convencional, $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$ - *Sistema II*.

Inicialmente calibrou-se as fontes no $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$, posicionando os níveis de discriminação, tanto da via beta quanto da via gama, nas mesmas posições utilizadas quando o LMN participou da comparação internacional em 1984, já que seriam utilizados os parâmetros da curva de calibração construída naquela época. Feitas as contagens e encontrado o valor $N_\beta N_\gamma / N_c$ para cada fonte obteve-se o valor da atividade fazendo-se a extrapolação para eficiência unitária. Embora estas fontes não tivessem a camada metalizada verificou-se que a eficiência beta no sistema $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$ não havia sofrido redução considerável quando comparada com a das fontes metalizadas, provavelmente pelo fato do diâmetro do filme ser metade do normalmente usado no sistema convencional e isto não causar distorções importantes no campo elétrico.

Usando-se o $4\pi(PS) - NaI(Tl) - Sistema II$ e o circuito eletrônico da figura 5-13 posicionou-se os discriminadores de forma a que os pulsos provenientes da via gama fossem discriminados nos picos de absorção total para energias de 276 keV até 384 keV e na via beta fosse eliminado apenas o ruído eletrônico. Embora o gama de maior intensidade seja de 81 keV esse pico não foi usado por apresentar também o maior valor de coeficiente de conversão interna. A coincidência medida foi principalmente entre o gama de 356 keV e o elétron de conversão de 45 keV, proveniente da transição gama de 81 keV.

A eficiência beta foi alterada através da variação do nível inferior de discriminação e também com o uso de absorvedores de Makrofol de 0,020 mm e 0,080 mm de espessura. A figura 6-6 apresenta os pontos experimentais com os dois métodos de variação do parâmetro de ineficiência. Não se observa diferença significativa entre os resultados obtidos nas duas condições.

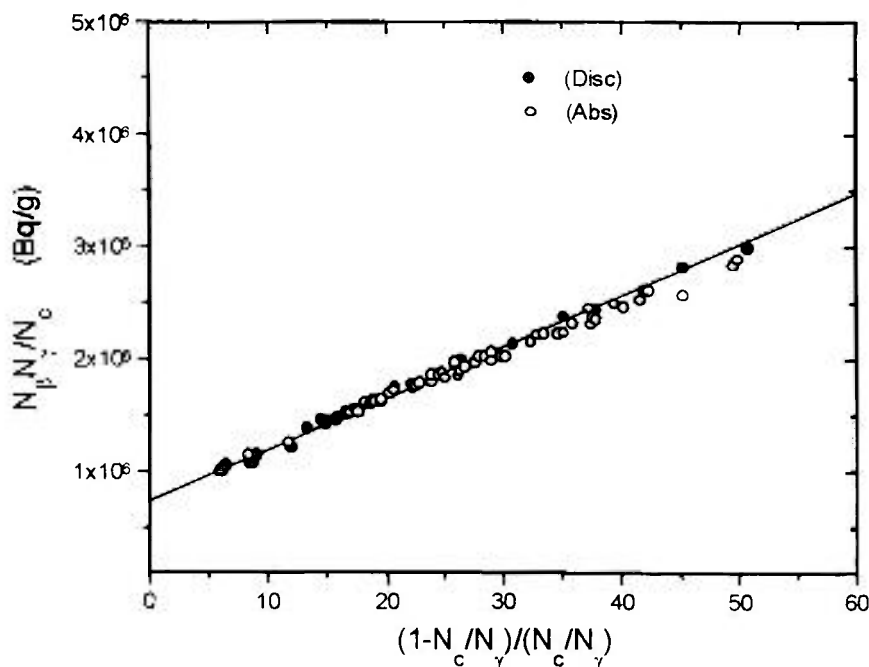


Fig. 6-6 - Atividade em função do parâmetro de ineficiência - solução de ^{133}Ba

A atividade da solução foi calculada por meio da extrapolação da curva. Os valores de atividade obtidos com os dois sistemas de medida encontram-se na tabela 6-4 mostrando excelente acordo entre si e com a equação 4.39.

Tabela 6-4 - Padronização do ^{133}Ba

Sistema	radionuclídeo	atividade (kBq/g)	inclinação (%)
$4\pi(\text{PC})\text{-NaI}(\text{TI})$	^{133}Ba	$(755,5 \pm 2,5)$	
$4\pi(\text{PS})\text{-NaI}(\text{TI})$	^{133}Ba	$(750,3 \pm 4,5)$	$(6,10 \pm 0,08)$

Com relação ao ^{133}Ba a equação 4.39 transforma-se em

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_{\alpha}} = N_0 \frac{1 + \frac{(1 - \epsilon_{\alpha\beta})}{\epsilon_{\alpha\gamma}} \times 0,752(7)}{1 + \frac{(1 - \epsilon_{\alpha\gamma})}{\epsilon_{\alpha\beta}} \times 0,668(10)}$$

quando calculados os valores numéricos das equações 4.33, 4.34, 4.36 e 4.38 utilizando-se os valores das probabilidades de transição simultâneas (T_{ij}) que foram calculados e encontram-se na Tabela 6-5.

Para o ^{133}Ba , embora a eficiência beta tenha sido de apenas 6% os resultados apresentaram excelente acordo.

Tabela 6-5 - Probabilidade de emissão simultânea - ^{133}Ba calculados com base nas tabelas 4-4, 4-5, 4-6 e 4-7

Transição (T_{ij})	Probabilidade (%)
T_{12}	0,002264
T_{13}	0,097530
T_{14}	0,000238
T_{15}	0,002502
T_{17}	0,097530
T_{19}	0,046467
T_{23}	0,002264
T_{25}	0,002264
T_{26}	0,068671
T_{35}	0,002264
T_{36}	0,068671
T_{37}	0,097530
T_{38}	0,636000
T_{45}	0,000238
T_{46}	0,007229

6.5 - Resultados para a eficiência beta-gama do cintilador plástico ($\epsilon_{\beta\gamma}$)

Esta determinação foi efetuada para os radionuclídeos ^{241}Am , ^{60}Co e ^{58}Co , seguindo o procedimento descrito no item 4.3. Para o primeiro radionuclídeo utilizou-se fonte calibrada previamente no sistema de coincidências convencional e para os dois últimos foram utilizados fios previamente calibrados por meio de um espectrômetro de HPGe.

A determinação da eficiência beta-gama foi efetuada por meio da equação 4.40, descrita no item 4.3

Os resultados da eficiência beta-gama assim como os radionuclídeos e os materiais utilizados para absorver as partículas alfa e beta podem ser vistos na Tabela 6-6.

Tabela 6-6 - Eficiência beta-gama

Radionuclídeo	^{241}Am	^{58}Co	^{60}Co
Energia gama (MeV)	0,060	0,810	1,250 (média)
Atividade (kBq)	7,272	141,84	445
material	plástico	chumbo	alumínio
espessura (mm)	0,4	0,4	0,4
eficiência beta-gama (%)	$(0,152 \pm 0,017)$	$(6,57 \pm 0,71)$	$(4,90 \pm 0,64)$

7 - CONCLUSÕES

Pode-se afirmar que os objetivos do presente trabalho foram atingidos. Os valores encontrados na padronização de radionuclídeos mostram que o sistema desenvolvido tem resultados comparáveis com outro sistema de medida absoluta portanto, este sistema pode ser considerado um sistema de padronização primário, para ser aplicado à radionuclídeos que decaem por diferentes modos: emissão alfa, beta positivo, beta negativo e captura eletrônica.

Algumas vantagens em relação ao sistema que utiliza contadores proporcionais foram observadas como: dispensar o uso da mistura gasosa P-10 que é dispendiosa; simplificar a preparação das amostras a serem medidas, uma vez que dispensa a metalização dos filmes que servem de substrato para as fontes radioativas; suas dimensões são bem menores que as do detector proporcional.

Em relação aos cintiladores líquidos apresenta as seguintes vantagens: fácil obtenção dos cintiladores plásticos que são fabricados pelo próprio IPEN; reutilização da fonte, já que no cintilador líquido ela é perdida por ser incorporada ao material cintilador.

Perspectivas futuras podem ser apontadas tais como: a construção de um sistema onde seja possível fazer a contagem de fontes com dimensões maiores e que utilize duas fotomultiplicadoras para eliminação de ruído eletrônico, a fim de que possam ser calibradas fontes de radionuclídeos que decaiam por emissão de elétrons de energia abaixo de 20 keV.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] BAERG, A. P. The efficiency extrapolation method in coincidence counting. *Nucl. Instr. and Meth.*, v. 112, p: 143-150, 1973.
- [2] GANDY, A., Mesure absolue de l'activité des radionucléides par la méthode des coïncidences beta-gamma à l'aide de détecteurs de grand efficacité - Étude des coïncidences instrumentales. *Int. J. Appl. Rad. Isot.*, v. 11, p: 75, 1961.
- [3] GANDY, A., Mesure absolue de l'activité des radionucléides par la méthode des coïncidences beta-gamma à l'aide de détecteurs de grand efficacité - Corrections de temps morts. *Int. J. Appl. Rad. Isot.*, v. 13, p: 501, 1962.
- [4] TAYLOR, J. G. V.. The total internal conversion coefficient of the 279 keV transition following the decay of ^{203}Hg as measured by a new coincidence method. *Can. J. Phys.*, v. 40 (4), p: 383, 1962.
- [5] CAMPION, P. J. The standardization of radioisotopes by beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors. *Int. J. Appl. Rad. Isot.*, v. 4, p: 232-248, 1959.
- [6] BAERG, A. P. Measurement of radioactivity disintegration rate by the coincidence method. *Metrologia*, v. 2 (1), p: 23-32, 1965.
- [7] BAERG, A. P. Absolute measurement of radioactivity. *Metrologia*, v. 3 (4), p: 105-108, 1967.
- [8] BAERG, A. P. Pressurized proportional counters for coincidence measurements. *Nucl. Instr. and Meth.*, v. 112, p: 95-99, 1973.
- [9] DIAS, M. S.; KOSKINAS, M. F., Primary standardization of ^{75}Se radioactive solution. In: *4'th Meeting on Nuclear Applications*, 1997, Minas Gerais, Brasil.
- [10] DIAS, M. S., Calibração de um sistema de câmara de ionização de poço $4\pi\text{-}\gamma$ para medidas de atividade de radionucléidos. 1978. *Dissertação (Mestrado)* - Universidade de São Paulo.

- [11] FONSECA, K. A., Medida Absoluta da Atividade e Determinação da Taxa de Emissão Gama por Decaimento do ^{126}I . 1997. *Dissertação (Mestrado)* - Universidade de São Paulo.
- [12] KOSKINAS, M. F.. Desenvolvimento de um sistema de coincidência para a medida absoluta da atividade de radionuclídeos empregando detectores de barreira de superfície. 1988. *Tese (Doutorado)* - Universidade de São Paulo.
- [13] MOURA, L. P.. Método de Coincidência Generalizado para a Medida Absoluta da Atividade de Radionuclídeos - Aplicação da Determinação do Coeficiente de Conversão Interna da Transição de 279 keV do ^{203}Tl . 1969. *Tese (Doutorado)* - Universidade de Campinas.
- [14] HAMADA, M. M.; MESQUITA, C. H.. Preparação de detectores plásticos cintiladores e caracterização de parâmetros físico-químicos. *In: 2º. Congresso Geral de Energia Nuclear, 24/4 a 29/4, 1988, Rio de Janeiro, Brasil.*
- [15] Plastic scintillators *In: Nuclear Enterprises. Scintillators for the Physical Sciences. Edinburg, Scotland p: 3-11, 1980 (Catálogo técnico).*
- [16] GLOBUS, M.; GRINYOV, B.. Operation characteristics of ionizing radiation detectors based on inorganic and plastic scintillators for nuclear physics and medical instrumentation. *IEEE Transaction no Nuclear Science*, v. 43 (3), p: 1287-1294, 1996.
- [17] KNOLL, G. F.. Radiation detection and measurement. 2th Edition. *John Willey & Sons, Inc.*, 1989.
- [18] PROTOPOPOV, Y. M.; VASIL'CHENKO, V. G.. Radiation damage in plastic scintillators and optical fibers. *Nucl. Instr. Meth. in Physics Research B*, v. 95, p: 496-500, 1995.
- [19] HILÁRIO, K. A. F.. Desenvolvimento de métodos de medida da atividade empregando sistemas de coincidência para radionuclídeos que desintegram pela dupla emissão β^- , β^+ /Captura eletrônica - Aplicação na padronização do ^{192}Ir , ^{152}Eu , e ^{186}Re . 2002. *Tese (Doutorado)* - Universidade de São Paulo.
- [20] MOREIRA, D. S., Medida Absoluta da Taxa de Desintegração e da Probabilidade de Emissão Gama do ^{42}K . 2000. *Dissertação (Mestrado)* - Universidade de São Paulo.
- [21] LAVRAS, W. O., Desenvolvimento de Métodos de Medida de Atividade de Radionuclídeos utilizados em Medicina Nuclear. 2002. *Dissertação (Mestrado)* - Universidade de São Paulo.
- [22] KAWADA, Y.. Decay data measurements of ^{111}In by $4\pi\beta-\gamma$ coincidence spectrometry with a combination of a $4\pi\beta$ counter and a Ge detector. *Nucl. Instr. Meth. in Physics Research A*, v. 241, p: 199-206, 1985.

- [23] REHER, D. F. G.; WOODS, M. J.; ROSOT, E.; SIBBENS, G.; DENEKE, B.; ALTZITZOGLOU, T.; BALLAUX, C.; FUNCK, E.. Standardization of ^{192}Ir . *Nucl. Instr. Meth. in Physics Research A*, v. 312, p: 263-268, 1992.
- [24] CASSETTE, P.; BOUCHARD, J.; CHAUVENET, B.. Standardization of iodine-129 by the TDCR liquid scintillation method and $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence counting. *Nucl. Instr. Meth. in Physics Research A*, v. 339, p:339-342, 1994.
- [25] BRODA, R.; PÉRON, M. N.; CASSETTE, P.; TERLIKOWSKA, T.; HAINOS, D.. Standardization of ^{139}Ce by Liquid Scintillation Counting using Triple to Double Coincidence Ratio Method. *Appl. Radiat. Isot.*, v. 49, p: 1035-1040, 1998.
- [26] BACCARELLI, A. M.; DIAS, M. S.; KOSKINAS, M. F. Coincidence system for standardization of radionuclides using a 4π plastic scintillator detector. *Appl. Radiat. Isot.*, v. 58, p: 239-244, 2002.
- [27] PUTMAN, J. L.. U. K. *Atomic Energy Research Establ. Report I/M*, p: 26, 1957.
- [28] LAGOUTINE, F.; COURAOL, N.; LEGRAND, J.. Table de radionucléides. Laboratoire de Métrologie des Rayonnements Ionisants. Bureau National de Métrologie, 1984.
- [29] PRICE, W. J.; *Nuclear Radiation Detection*. 2nd ed., McGraw-Hill, New York, 1964.
- [30] HAMADA, M. M.; MESQUITA, C. H.. Estudo do desempenho da combinação do cristal de CsI(Tl) com o fotodiodo tipo PIN. In: *4º Congresso Geral de Energia Nuclear*, 1992, Rio de Janeiro, Brasil.
- [31] DIAS, M. S., CONTAC: Programa para cálculo de atividades baseado em medidas com TAC (Time to Amplitude Converter). *Relatório Interno*. IPEN-CNEN/SP, 2001.
- [32] DIAS, M. S., LINFIT: Programa para ajuste por mínimos quadrados com análise de covariância. *Relatório Interno*. IPEN-CNEN/SP, 1999.
- [33] BACCARELLI, A. M.; DIAS, M. S.; KOSKINAS, M. F. Standardization of ^{241}Am by means of coincidence system using 4π plastic scintillator detector. In: *V Regional Congress On Radiation Protection And Safety*, 29/04 a 04/05, 2001, Recife, Brazil.
- [34] RITZ, A. International comparison of activity measurements of a solution of ^{133}Ba . Rapport BIPM - 85/11, 1984.