



AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**PADRONIZAÇÃO DOS RADIONUCLÍDEOS  $^{45}\text{Ca}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  E  
 $^{204}\text{Tl}$  PELO MÉTODO DO TRAÇADOR UTILIZANDO  
SISTEMA DE COINCIDÊNCIA  $4\pi\beta\text{-}\gamma$**

**CLAUDIA REGINA PONTE PONGE-FERREIRA**

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

Orientadora:  
Dra. Marina Fallone Koskinas

São Paulo  
2005

**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**

**Autarquia Associada à Universidade de São Paulo**

**PADRONIZAÇÃO DOS RADIONUCLÍDEOS  $^{45}\text{Ca}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{204}\text{Tl}$  PELO  
MÉTODO DO TRAÇADOR UTILIZANDO SISTEMA DE  
COINCIDÊNCIA  $4\pi\beta\text{-}\gamma$**

**CLAUDIA REGINA PONTE PONGE-FERREIRA**



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

**Orientadora:  
Dra. Marina Fallone Koskinas**

**São Paulo  
2005**

À Anna e Ada

Ao Walter

## **Agradecimentos:**

À Dra. Marina Fallone Koskinas, minha orientadora, pela paciência, constante dedicação e apoio durante os anos em que este trabalho foi desenvolvido;

Ao Dr. Mauro da Silva Dias, pelas contribuições e contínua ajuda nesses anos;

Ao Mauro N. Takeda, pela constante colaboração e amizade;

Aos colegas Denise, Eliezer, Carlos e Hélio pelo incentivo e amizade;

Ao Maurício Marques, por toda a colaboração no laboratório;

À Ione Yamazaki, pela ajuda no preparo das fontes;

A todos os colegas do LMN pelo incentivo e amizade;

Ao Dr. Rajendra Saxena, gerente do Centro do Reator de Pesquisas, pela oportunidade oferecida para a realização deste trabalho;

Ao meu marido, Walter, pela paciência e apoio dispensados durante os anos de realização deste trabalho;

À minha mãe, Nurimar Galastri Ponte, por tudo;

À Margareth Ponge-Ferreira, por assumir tantas vezes a responsabilidade de minhas filhas;

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

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

# **PADRONIZAÇÃO DOS RADIONUCLÍDEOS $^{45}\text{Ca}$ , $^{137}\text{Cs}$ E $^{204}\text{Tl}$ PELO MÉTODO DO TRAÇADOR UTILIZANDO SISTEMA DE COINCIDÊNCIA $4\pi\beta - \gamma$**

**Claudia Regina Ponte Ponge-Ferreira**

## **RESUMO**

Neste trabalho são apresentados os procedimentos adotados para as padronizações dos radionuclídeos emissores beta puros  $^{45}\text{Ca}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{204}\text{Tl}$ . A medida da atividade foi feita no sistema de coincidências  $4\pi\beta-\gamma$  pelo método do traçador. Os radionuclídeos escolhidos como traçadores foram o  $^{60}\text{Co}$  para a padronização do  $^{45}\text{Ca}$  e o  $^{134}\text{Cs}$  para a padronização do  $^{137}\text{Cs}$  e do  $^{204}\text{Tl}$ . A escolha dos traçadores se deve aos valores semelhantes das energias do radionuclídeo beta puro e do traçador. A atividade das soluções radioativas foram determinadas pela técnica de extrapolação da eficiência. As fontes radioativas foram preparadas por duas técnicas distintas: a técnica de solução, em que foram preparadas soluções mistas de emissor beta puro e traçador, sendo posteriormente preparadas as fontes a serem medidas e a técnica de gotas, pela qual as fontes são preparadas depositando-se os radionuclídeos diretamente no substrato da fonte. Os resultados da atividade dos radionuclídeos obtidos com as duas técnicas de preparação foram comparados e apresentaram boa concordância dentro da incerteza experimental.

# STANDARDIZATION OF RADIONUCLIDES $^{45}\text{Ca}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{204}\text{Tl}$ BY TRACING METHOD USING $4\pi\beta\text{-}\gamma$ COINCIDENCE SYSTEM

**Claudia Regina Ponte Ponge-Ferreira**

## ABSTRACT

The procedure followed for the standardization of  $^{45}\text{Ca}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{204}\text{Tl}$  is described. The activity measurements was carried out in a  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  coincidence system by the tracing method. The radionuclides chosen as the  $\beta\text{-}\gamma$  emitting tracer nuclide were  $^{60}\text{Co}$  for the  $^{45}\text{Ca}$  and  $^{134}\text{Cs}$  for  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{204}\text{Tl}$ , because their end-point beta-ray energy are close to the respective beta emitters. The radioactive sources were prepared using two different techniques: one was the drops technique and the other was the solution technique. In the drop technique the sources were prepared by dropping directly on the substrate both solutions (tracer and beta pure). In the other technique a solution of tracer plus beta pure was mixed previously before making the radioactive sources. The activities of the radionuclides obtained with these technique were compared and the values are in agreement within the experimental uncertainties.

## SUMÁRIO

INTRODUÇÃO.....	1
1 FUNDAMENTOS TEÓRICOS.....	3
1.1 Decaimento Beta.....	3
1.2 Decaimento gama.....	5
1.2.1 Processo de conversão interna.....	5
1.3 Interação das partículas beta com a matéria.....	5
1.4 Interação da radiação gama com a matéria.....	6
1.5 Detectores de radiação.....	7
1.6 Métodos de Medida de radionuclídeos.....	10
1.6.1 Método de Coincidência.....	10
1.6.1.1 Técnica da extrapolação da eficiência.....	14
1.6.2 Método do Traçador.....	15
2 PARTE EXPERIMENTAL.....	19
2.1 Preparação das fontes.....	19
2.1.1 Confecção dos substratos de Collodion.....	19
2.1.2 Confecção das fontes radioativas.....	19
2.1.3 Técnicas de preparação das fontes.....	21
2.1.3.1 Técnica da Solução.....	21
2.1.3.2 Técnica das Gotas.....	22
2.2 Arranjo Experimental.....	22

2.2.1 Sistema eletrônico.....	23
2.3 Procedimento de Medida.....	27
2.3.1 Ajuste das condições eletrônicas da via beta.....	28
2.3.2 Ajuste das condições eletrônicas da via gama.....	28
2.4 Cálculo da atividade do emissor beta puro e do traçador.....	29
2.4.1 Cálculo da atividade do traçador.....	29
2.4.2 Cálculo da atividade do emissor beta puro.....	30
3 PADRONIZAÇÃO DOS RADIONUCLÍDEOS BETA EMISSORES.....	32
3.1 Padronização do $^{204}\text{Tl}$ .....	32
3.2 Padronização do $^{45}\text{Ca}$ .....	36
3.3 Padronização do $^{137}\text{Cs}$ .....	41
4 RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	46
4.1 Padronização do $^{204}\text{Tl}$ .....	46
4.2 Padronização do $^{45}\text{Ca}$ .....	50
4.3 Padronização do $^{137}\text{Cs}$ .....	55
5 CONCLUSÕES.....	64
Referências Bibliográficas.....	65



## INTRODUÇÃO

As radiações  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  ou X são empregadas em aplicações tecnológicas em uma grande variedade de setores. Sua utilização vai desde a medicina, em diagnósticos e tratamentos, como na indústria, no estudo do meio ambiente, na pesquisa, etc..

Como outras grandezas físicas sujeitas ao controle de qualidade, estas radiações necessitam da calibração, ou padronização dos sistemas de medida utilizados para medidas. Estes sistemas podem ser classificados como sistemas primários, secundários ou terciários.

Os sistemas de medida de radiação primários, como qualquer método de medida absoluta, não dependem do conhecimento do valor de grandezas auxiliares, como eficiência de detecção ou parâmetros do esquema de decaimento. As fontes radioativas calibradas nestes sistemas são chamadas de fontes padrão.

Os sistemas de medida secundários e terciários são os sistemas que utilizam as fontes padrão para a sua calibração. Para que se possa calibrar estes sistemas de medida de radiação, ou detectores de radiação, é necessário o conhecimento do valor da atividade das fontes radioativas padrões neles utilizados, constituídas de diferentes radionuclídeos.

A padronização de cada radionuclídeo é específica, levando em conta seu esquema de desintegração.

No caso de radionuclídeos que decaem pela emissão  $\beta$ - $\gamma$ , RX- $\gamma$  ou  $\alpha$ - $\gamma$ , o método de calibração mais utilizado é o método de coincidência. Este método possibilita o conhecimento da atividade da fonte radioativa pela medida de duas ou mais radiações simultaneamente emitidas.

O método de coincidência apresenta, em relação aos demais métodos, as vantagens de obtenção de precisões mais altas e possibilidade de aplicação a um grande número de radionuclídeos, até mesmo para aqueles que possuam esquemas de desintegração complexos, desde que tenham em comum a característica de emitir simultaneamente dois ou mais tipos de radiação ( $\beta$ - $\gamma$ , RX- $\gamma$  ou  $\alpha$ - $\gamma$ ) [Moura, 1969].

Na padronização de radionuclídeos emissores beta puros, atualmente os sistemas mais utilizados são: o sistema de coincidência com detector  $4\pi\beta$ - $\gamma$ , empregando-se o método do traçador, que consiste na combinação de um emissor beta puro com um emissor

beta-gama, que fornecerá a eficiência de detecção; e os sistemas de cintilação líquida com soluções cintiladoras que empregam o  $^3\text{H}$  como padrão de eficiência.

O objetivo deste trabalho é o desenvolvimento do método do traçador na padronização de emissores beta puros, utilizando o sistema de coincidências  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ .

Além da determinação da atividade do emissor beta puro, foi feito um estudo para a verificação da eficácia de diferentes técnicas utilizadas na preparação das fontes.

Tal comparação foi realizada com a finalidade de verificar diferenças entre os resultados das atividades usando-se um ou outro procedimento. Com isso, procurou-se encontrar a maneira mais simples e eficaz de se medir a atividade de um emissor beta puro.

Neste trabalho foram realizadas as padronizações de três radionuclídeos emissores  $\beta$  puros:  $^{204}\text{Tl}$ ,  $^{45}\text{Ca}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , e utilizados como traçadores, respectivamente,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  e  $^{134}\text{Cs}$ . A escolha dos traçadores se deve à semelhança entre seus valores de energia beta máxima e esses valores dos emissores beta puros.

No capítulo 1 estão os fundamentos teóricos, onde são apresentados os decaimentos nucleares  $\beta$  e  $\gamma$  estudados, as formas de interação das radiações  $\beta$  e  $\gamma$  com a matéria, assim como os detectores utilizados neste trabalho. Neste capítulo estão também descritos os métodos de coincidência e do traçador.

O capítulo 2 trata da parte experimental, onde é descrita a preparação das fontes radioativas com o uso de diferentes técnicas, e é feita a descrição do sistema eletrônico utilizado, bem como do procedimento de medida e do cálculo da atividade.

As padronizações dos três radionuclídeos emissores  $\beta$  puros são apresentadas no capítulo 3.

No capítulo 4 estão apresentados os resultados e as discussões das padronizações realizadas.

No capítulo 5 estão as conclusões e as propostas para estudos futuros.

# 1 FUNDAMENTOS TEÓRICOS

A desintegração radioativa ou decaimento nuclear é a emissão de partículas ou radiação eletromagnética, ou ambos, que ocorre quando nuclídeos radioativos estão instáveis. Estar instável significa que no núcleo do átomo há um desequilíbrio entre o número de prótons e de nêutrons, existindo então a procura pelo equilíbrio de ambos, através da conversão de uma partícula em outra.

Ao se desintegrar, o radionuclídeo se torna outro elemento químico, o chamado elemento filho; este pode estar no estado estável, ou fundamental, ou pode estar ainda instável, havendo então nova emissão de radiação.

O decaimento nuclear fornece informações sobre centenas de espécies nucleares, como dados sobre os níveis de energia e esquemas de decaimento, assim como da estrutura e propriedades do núcleo atômico.

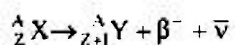
## 1.1 Decaimento Beta

A grande maioria dos nuclídeos radioativos decai para seu estado fundamental através da emissão de partículas beta, o chamado decaimento beta. Neste decaimento, o número de massa  $A$  permanece inalterado e o número atômico  $Z$  sofre uma alteração.

A partícula beta é qualquer elétron emitido do núcleo do átomo, podendo-se distinguir partículas beta negativas ( $\beta^-$ ) das partículas beta positivas ( $\beta^+$ ).

Neste decaimento ocorre a criação do neutrino. O neutrino é uma partícula cujas propriedades foram selecionadas de tal forma que o decaimento beta pudesse acontecer sem violar quaisquer das leis de conservação. Assim, cada desintegração beta deve envolver a emissão simultânea de um elétron e um neutrino.

Quando houver excesso de nêutrons, há a mudança de um nêutron em um próton, ocorrendo o decaimento  $\beta^-$ . Este é emitido do núcleo, e a carga nuclear aumenta de uma unidade: o elemento é deslocado em uma posição para a direita na tabela periódica:



onde:

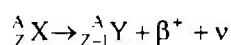
X e Y são as espécies nucleares inicial e final;

Z é o número de prótons;

A é o número de massa, ou o número total de partículas nucleares;

$\bar{\nu}$  é o antineutrino.

Quando houver menos nêutrons que prótons no núcleo, a procura da estabilidade nuclear ocorrerá através da mudança de um próton em um nêutron, ocorrendo o decaimento  $\beta^+$ : este é emitido e a carga nuclear decresce de uma unidade, de Z para Z-1: o elemento é deslocado uma posição para a esquerda na tabela periódica:



A emissão de partículas beta pode ocorrer de diferentes maneiras. Os núclídeos podem decair de um núcleo pai em um núcleo filho diretamente para o estado fundamental, como é o caso dos emissores beta puros. Pode também ocorrer que o núcleo pai venha a popular os níveis excitados do núcleo filho, o qual decai pela emissão de radiação gama ou pelo processo de conversão interna, os emissores beta-gama.

Além dos decaimentos  $\beta^+$  e  $\beta^-$ , um outro processo de decaimento beta é a captura de elétrons. Neste processo, quando o núcleo absorve um dos elétrons de uma camada atômica, sua carga Z é alterada para Z-1. O átomo permanece neutro, mas é deixado num estado excitado devido à vacância que foi criada em uma de suas camadas internas. Essas vacâncias levam à emissão de raio X característico [Venverloo, 1971].

A propriedade mais característica da desintegração beta é a distribuição contínua em energia dos elétrons emitidos, propriedade que é única das partículas beta. Ao contrário dos espectros  $\alpha$  e  $\gamma$ , onde o núcleo mostra estados definidos de energia, o espectro  $\beta$  apresenta a transição de um estado a outro descrevendo a distribuição primária de energias da radiação beta. Este caráter contínuo do espectro vem do fato de que, no decaimento beta, a energia é dividida entre as partículas beta e os neutrinos [Venverloo, 1971].

As partículas beta são emitidas com esta distribuição contínua com energias que se estendem de zero até um valor máximo, que varia, para emissores beta conhecidos, entre 15 keV a 15 MeV [Friedlander, 1981].

## 1.2 Decaimento gama

As radiações  $\gamma$  são radiações eletromagnéticas que acompanham as transições nucleares.

Quando um núcleo está excitado pode perder sua energia de excitação, voltando ao estado fundamental, de diferentes formas. A forma mais comum de perda de energia é a emissão de radiação eletromagnética, ou radiação  $\gamma$ , sendo que ocorre mudança de energia sem alteração nos valores de  $Z$  e  $A$ . Esta desexcitação pode acontecer diretamente de um estado de energia excitado ao estado fundamental, ou, o que é mais freqüente, pode envolver estados excitados intermediários.

As radiações  $\gamma$  possuem uma freqüência determinada por sua energia  $E=h\nu$ , cujos valores se encontram no intervalo de aproximadamente 10 keV a 7 MeV [Friedlander,1981].

### 1.2.1 Processo de conversão interna

A emissão de radiação gama concorre com a emissão de elétrons de conversão interna. Neste processo, ao se encontrar excitado após a emissão de radiação beta, por exemplo, o núcleo não emite uma radiação gama para atingir o estado fundamental. Ao invés disso, a energia de excitação é transferida a um dos elétrons do átomo, que é ejetado com a energia

$$E_e = E_{ex} - E_b$$

onde:

$E_{ex}$  é a energia de excitação transferida ao elétron ejetado;

$E_b$  é a energia de ligação na camada em que estava o elétron ejetado.

## 1.3 Interação das partículas beta com a matéria

As partículas  $\beta$  interagem com a matéria desde o momento em que são emitidas pelo núcleo até que sejam absorvidas. Sua absorção ocorre envolvendo ionização e excitação ou produção de radiação. No caso de uma absorção por ionização e excitação, a interação se dará entre as partículas  $\beta$  e os elétrons dos átomos do absorvedor. A partícula  $\beta$  perde sua

energia cinética nas colisões, e uma pequena parte se espalha, refazendo aproximadamente o mesmo caminho, o retroespalhamento [Venverloo, 1971].

As partículas beta de baixa energia são rapidamente absorvidas mesmo em absorvedores de pouca espessura [Knoll, 1999]. Para partículas beta de alta energia há um mecanismo adicional de perda de energia: quando um elétron é acelerado no campo Coulombiano de um núcleo, este perde energia por emissão de radiação. Esta energia aparece como um espectro contínuo de raio X, é a chamada radiação de Bremsstrahlung.

Os efeitos combinados de espectro contínuo e espalhamento levam a uma lei de absorção aproximadamente exponencial para partículas beta de uma dada energia máxima [Knoll, 1999]:

$$\frac{I}{I_0} = e^{-nt}$$

onde:

$I$  é a taxa de contagem com absorvedor;

$I_0$  é a taxa de contagem sem absorvedor;

$n$  é o coeficiente que correlaciona a energia máxima de  $\beta$  com um dado absorvedor;

$t$  é a espessura do absorvedor em  $g/cm^2$ .

#### 1.4 Interação da radiação gama com a matéria

Ao interagir com a matéria, a radiação  $\gamma$  não perde energia continuamente ao longo de sua trajetória, como no caso das partículas carregadas. A absorção da radiação  $\gamma$  pela matéria é exponencial, e a distância que percorre é muito maior que a percorrida por uma partícula beta de mesma energia.

Existem três processos principais responsáveis pela perda de energia das radiações  $\gamma$ : Efeito Fotoelétrico, Efeito Compton e Produção de Pares. Esses processos levam a transferência completa ou parcial da energia do raio gama à energia do elétron [Knoll, 1999].

Efeito Fotoelétrico Neste processo, há uma interação entre um fóton e um átomo, sendo que o fóton desaparece completamente. Em seu lugar, um fotoelétron é ejetado por uma das camadas eletrônicas do átomo com uma energia dada por

$$E_e = h\nu - \varepsilon_b$$

onde  $\varepsilon_b$  é a energia de ligação do elétron.

A camada da qual o elétron foi ejetado fica com uma vacância, preenchida em seguida. Pode ocorrer assim a emissão de fótons de raio X característico, ou a emissão de um elétron Auger.

Efeito Compton: Este processo ocorre quando o gama incidente colide com um elétron, de ligação ou livre; neste caso, o fóton transfere somente uma parte de sua energia ao elétron, desviando-se de seu caminho anterior. A energia perdida pode ter qualquer valor entre zero e um valor máximo.

A relação entre perda de energia e ângulo de espalhamento pode ser obtida de condições relativísticas para conservação do momento e energia. A expressão relativística relaciona a energia total  $E$  de uma partícula com seu momento  $p$ :

$$E = (E_0^2 + c^2 p^2)^{1/2}$$

A quantidade  $E_0$  é a energia total da partícula quando esta estiver parada e é dada por  $mc^2$ , onde  $m$  é a massa da partícula.

Produção de pares: Este processo ocorre somente no campo elétrico Coulombiano do núcleo da substância a interagir, quando a energia gama for acima de 1,02 MeV, e com um material de número atômico alto [Venverloo, 1971].

Neste processo, um gama é completamente absorvido e convertido em um elétron e em um pósitron. A energia que permanece após a formação das duas partículas é subtraída da energia do gama e dividida entre os dois. O pósitron recombina-se com um elétron e ambos desaparecem, produzindo dois fótons de 0,51 MeV.

## 1.5 Detectores de radiação

Para a medida da atividade de um radionuclídeo são utilizados sistemas de medição, que consistem em um detector de radiação, onde acontece a interação da radiação com o

sistema, e um equipamento de medição, sua parte eletrônica. Tais sistemas de medição podem ter diferentes tipos de detectores e metodologias de medida, conforme o tipo de radiação e a precisão desejada.

O princípio de funcionamento dos detectores é baseado nas interações das partículas carregadas com a matéria que atravessam, ou seja, nas ionizações e excitações provocadas por elas ao longo de seu caminho.

Existem vários tipos de detectores, com diferentes geometrias de construção, podendo-se classificá-los em dois tipos básicos: detectores a gás e detectores sólidos. Os detectores a gás são as câmaras de ionização, detectores proporcionais e Geiger-Mueller: os detectores sólidos são os detectores cintiladores e semicondutores.

Uma outra forma de classificação relaciona o tipo de operação, em ser ou não do tipo pulso. Na operação de tipo pulso, é utilizado o pulso da saída do detector, que é uma série de sinais separados no tempo, onde cada sinal representa a interação da partícula com o detector. Este é o caso da contagem por um contador eletrônico. No tipo de operação não-pulso de um sistema de detecção, a quantidade medida diretamente é o efeito médio das interações da radiação com o detector.

Atualmente, os detectores utilizados para a medição da radiação beta são o detector proporcional, detector Geiger-Mueller e detector cintilador.

Detectores proporcionais: são detectores a gás desenvolvidos nos anos quarenta que operam através da ionização produzida neles pela passagem de partículas carregadas. Operam sempre no modo pulso e tem sua carga, formada pelo par de íons originais, amplificada através do fenômeno da multiplicação gasosa. Quando a intensidade do campo elétrico no eletrodo central tem um aumento acima de um certo nível, cada elétron original leva a uma avalanche, sendo esta independente de outras avalanches formadas por outros elétrons que não pertençam ao grupo de elétrons originais; sua carga, representada pelo par de íons originais, é amplificada, produzindo pulsos grandes; a carga coletada permanece proporcional ao número de elétrons originais, ou à ionização inicial [Knoll, 1999]. A dependência do tamanho do pulso com a ionização primária possibilita a discriminação entre energias diferentes, ou tipos de radiação diferentes.

O detector proporcional pode, portanto, ser utilizado para determinar a energia de radiações e para a contagem de partículas sem a determinação da energia. Consegu



detectar uma ionização inicial muito baixa, sendo um detector adequado para a medição da radiação beta; além disso, possui grande altura de pulso ao mesmo tempo em que mantém a proporcionalidade.

Sendo seus pulsos grandes, não é necessária muita amplificação: a tensão aplicada, porém, deve ser muito estável, pois o fator de amplificação do gás depende desta tensão, e, sendo assim, a altura do pulso será proporcional à energia da radiação incidente [Venverloo, 1971].

Num detector proporcional com geometria  $4\pi$ , a eficiência de detecção pode ser mantida muito próxima a 100%. Com esta geometria e utilizando-se fontes de partículas beta de pouca massa e confeccionadas em substratos de filmes finos, as correções para espalhamento e absorção fora da fonte são eliminadas. Seu uso é, portanto, adequado para a contagem da radiação beta, onde a auto-absorção desta é minimizada.

Este tipo de sistema é utilizado principalmente como um detector de grande eficiência no método de contagem de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ .

Detectores cintiladores: criados também nos anos quarenta e utilizados até os dias atuais, se baseiam na excitação combinada com ionização, que produz luminescência. Como algumas substâncias emitem luz visível quando expostas à radiação ionizante, a detecção da radiação acontece pela cintilação da luz produzida em certos materiais.

Quando as partículas ionizantes passam através de certos cristais, são emitidas cintilações. No detector de cintilação, esta luz é colhida por um tubo fotomultiplicador, que produz um pulso. Sob condições adequadas, a carga resultante será proporcional à energia da partícula absorvida [Price, 1958].

Como o contador proporcional e a câmara de ionização, o detector cintilador pode ser utilizado para medir a distribuição de energia das partículas, além de contá-las. Pode ser utilizado com todos os tipos de partículas e, atualmente, é o tipo de detector de radiação mais versátil.

Os detectores cintiladores podem ser orgânicos ou inorgânicos:

Detectores cintiladores orgânicos são mais rápidos e produzem menos luz, sendo utilizados para espectroscopia beta. Existem diferentes tipos de detectores orgânicos, entre eles, cristais orgânicos puros, soluções orgânicas líquidas, cintiladores plásticos, etc.

Detectores cintiladores inorgânicos possuem tempo de resposta mais lento, mas melhor saída de luz, sendo utilizados para espectroscopia gama. São adicionadas pequenas quantidades de uma impureza, ou ativadores, para que seja possível a visualização dos fótons na desexcitação. Entre estes detectores estão NaI(Tl), CsI(Tl) e CsI(Na) e LiI(Eu).

### Detector cintilador de NaI(Tl)

O NaI(Tl) é um cristal higroscópico que pode deteriorar quando exposto ao ar, devendo portanto estar encapsulado quando for utilizado. Adicionando-se um traço de iodeto de tálio a um iodeto de sódio cristalino, é produzida uma cintilação de luz muito grande, quando comparada a outros materiais orgânicos. Tal fato é fundamental na espectrometria de radiação gama. Sua resposta para elétrons e radiação gama é praticamente linear, e vem sendo utilizado como padrão nas medições de espectroscopia gama [Knoll,1999].

## **1.6 Métodos de Medida de radionuclídeos**

Um método de medição da atividade independente de qualquer padrão de radioatividade, baseando-se apenas nas contagens e no padrão do tempo são chamados métodos diretos, ou absolutos [NCRP Report, 1984].

O mais utilizado desses métodos é o método de coincidência: este método pode medir diretamente a atividade dos radionuclídeos que decaem pela emissão de duas ou mais radiações coincidentes, sem que haja a necessidade de se conhecer qualquer outro parâmetro.

### **1.6.1 Método de Coincidência**

O método de coincidência foi desenvolvido nos anos 60 [Baerg, 1966; Campion, 1959] para a padronização de radionuclídeos que decaem por emissão de partículas beta seguidas pela emissão de radiação gama.

Para isto foi proposta a utilização de dois detectores, um para cada tipo de radiação, e do uso de um módulo que detectasse os eventos coincidentes. Deste modo, é possível obter-se a atividade somente com o conhecimento de dados observáveis.

No caso simples (uma partícula  $\beta$  seguida de uma radiação  $\gamma$ ), as equações que descrevem o método podem ser escritas como:

$$N_{\beta} = N_0 \varepsilon_{\beta} \quad (1.1)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \varepsilon_{\gamma} \quad (1.2)$$

$$N_c = N_0 \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma} \quad (1.3)$$

Onde:

$N_0$  é a taxa de desintegração da fonte;

$N_{\beta}$  é a taxa de contagem obtida no detector beta;

$N_{\gamma}$  é a taxa de contagem obtida no detector gama;

$\varepsilon_{\beta}$  é a probabilidade de detecção no detector  $\beta$ ;

$\varepsilon_{\gamma}$  é a probabilidade de detecção no detector  $\gamma$ ;

$N_c$  são as taxas de coincidência registradas no módulo de coincidências, correspondendo ao produto das probabilidades de detecção beta e gama.

Multiplicando-se  $N_{\beta}$  por  $N_{\gamma}$  e dividindo-se por  $N_c$ , tem-se:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \quad (1.4)$$

Pode-se então obter a atividade  $N_0$  sem o conhecimento das eficiências dos detectores  $\beta$  e  $\gamma$  para as energias das radiações consideradas.

No caso prático, os detectores utilizados são sensíveis a mais de um tipo de radiação. Assim, mesmo para um radionuclídeo que decai apenas por um beta seguido por um gama, poderá ocorrer a detecção do gama pelo detector da radiação beta, caso o beta não seja detectado, com uma certa eficiência  $\varepsilon_{\beta\gamma}$ .

As equações são então alteradas como:

$$N_{\beta} = N_0 \left[ \varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \varepsilon_{\beta\gamma} \right] \quad (1.5)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \varepsilon_{\gamma} \quad (1.6)$$

$$N_c = N_0 \left[ \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \varepsilon_c \right] \quad (1.7)$$

Desse modo obtém-se:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = \frac{N_0 \left[ \varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \varepsilon_{\beta\gamma} \right] \varepsilon_{\gamma}}{\left[ \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \varepsilon_c \right]} \quad (1.8)$$

onde  $\varepsilon_c$  é a eficiência de detectar uma coincidência  $\gamma$ - $\gamma$ .

Neste caso, não seria mais possível obter a atividade apenas dos valores observáveis. No entanto, quando é feita a medida da via gama apenas no pico de absorção total, a possibilidade de uma coincidência  $\gamma$ - $\gamma$  é eliminada e teremos a equação como:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = \frac{N_0 \left[ \varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \varepsilon_{\beta\gamma} \right]}{\varepsilon_{\beta}} \quad (1.9)$$

sendo  $\varepsilon_{\beta} = N_c/N_{\gamma}$ .

Porém, são raros os radionuclídeos com esquemas de decaimento simples. Em sua maioria os radionuclídeos apresentam esquemas complexos, com  $n$  ramos beta. Neste caso, as equações que descrevem o método sofrem algumas alterações:

$$N_{\beta} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[ \varepsilon_{\beta_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \left( \frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \right] \quad (1.10)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left( \frac{\varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \quad (1.11)$$

$$N_c = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left( \frac{\varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \quad (1.12)$$

A combinação destas equações é dada por:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = \frac{N_0 \sum a_r \left[ \varepsilon_{\beta_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \left( \frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \right] N_0 \sum a_r \left( \frac{\varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r}{N_0 \sum a_r \left( \frac{\varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r} \quad (1.13)$$

onde :

$a_r$  são as abundâncias relativas do r-ésimo grupo beta;

$\varepsilon_{\beta_r}$  é a eficiência para a radiação beta do r-ésimo grupo beta;

$\alpha_r$  é o coeficiente de conversão interna total associado ao r-ésimo grupo beta;

$\varepsilon_{ec}$  é a eficiência do detector beta para elétrons de conversão;

$\varepsilon_{\beta\gamma}$  é a eficiência do detector beta para a radiação gama;

$\varepsilon_{\gamma}$  é a eficiência para a radiação gama do r-ésimo grupo beta.

Simplificando-se as equações, considerando-se implícitas as somatórias, teremos:

$$N_{\beta} = N_0 \left[ \varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \left( \frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right] \quad (1.14)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \left( \frac{\epsilon_{\gamma}}{1+\alpha} \right) \quad (1.15)$$

$$N_c = N_0 \left( \frac{\epsilon_{\beta} \epsilon_{\gamma}}{1+\alpha} \right) \quad (1.16)$$

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left[ 1 + \frac{1 - \epsilon_{\beta}}{\epsilon_{\beta}} \left( \frac{\alpha \epsilon_{cc} + \epsilon_{\beta \gamma}}{1 + \alpha} \right) \right] \quad (1.17)$$

Como pode ser visto pela equação 1.17, a determinação da atividade depende não somente das eficiências de detecção, como da eficiência de detecção para elétrons de conversão, parâmetros do esquema de decaimento, e do coeficiente de conversão interna, o que implica no uso de dados da literatura.

Visando manter o princípio do método, Baerg e Campion [Baerg, 1967; Campion, 1959] propuseram a aplicação da técnica de extrapolação da eficiência.

### 1.6.1.1 Técnica da extrapolação da eficiência

Nesta técnica, que pode ser aplicada à maioria dos radionuclídeos, é utilizada a medida de  $N_{\beta}$  em função da variação do parâmetro da eficiência,  $N_c/N_{\gamma}$ . Desta forma, variando-se  $N_c/N_{\gamma}$ , obtém-se uma relação funcional entre  $N_{\beta}$  e este parâmetro, tal que:

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

Baerg impôs para a validade desta função a condição de que as eficiências de detecção dos grupos beta estejam relacionadas de forma que:

$$\epsilon_{\beta r} = F(\epsilon_{\beta s}) \text{ onde } F \rightarrow 1 \text{ quando } \epsilon_{\beta s} \rightarrow 1$$

onde  $\epsilon_{\beta r}$  são as eficiências de detecção para os diferentes grupos beta e  $\epsilon_{\beta s}$  é a eficiência de um grupo beta arbitrário.

Para que  $\epsilon_{\beta s} \rightarrow 1$  deve haver discriminação das baixas energias como parâmetro de variação das eficiências, o que na prática se consegue com a absorção beta pelo uso de absorvedores.

Além disso, como condição imposta pelo método, os valores das probabilidades de detecção  $\varepsilon_{cc}$ ,  $\varepsilon_{\gamma}$ , e  $\varepsilon_{\beta\gamma}$  devem permanecer constantes ou nulos no intervalo de variação  $N_c/N_{\gamma}$ .

Para um intervalo limitado de variação do parâmetro da eficiência, e no caso de ser possível isolar apenas um grupo beta por discriminação gama, esta função é linear.

Escrevendo  $N_{\beta}$  de forma generalizada, como o resultado de uma função  $F$  do parâmetro de eficiência  $N_c/N_{\gamma}$ :

$$N_{\beta} = N_0 F(N_c/N_{\gamma}) \quad (1.18)$$

denominada função generalizada, onde:

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

Esta equação generalizada pode ser escrita de forma mais conveniente para uma solução gráfica utilizando-se a razão  $N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$  como variável dependente e  $(1-N_c/N_{\gamma})/(N_c/N_{\gamma})$  como variável independente, obtendo-se uma função  $G$ , cuja variação é mais lenta que a função  $F$ :

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} = N_0 G\left[\frac{1-N_c/N_{\gamma}}{N_c/N_{\gamma}}\right] \quad (1.19)$$

Onde:

$$G \rightarrow 1 \text{ e } N_{\beta}N_{\gamma}/N_c \rightarrow N_0 \text{ quando } (1-N_c/N_{\gamma})/(N_c/N_{\gamma}) \rightarrow 0$$

Quando esta função é um polinômio de grau 1, pode-se determinar através de seu coeficiente angular a correção para o esquema de desintegração, e através de seu coeficiente linear, obtém-se o valor de  $N_0$ .

### 1.6.2 Método do Traçador

Apesar da grande variedade de radionuclídeos que podem ser medidos através do método de coincidência, os emissores beta puros representam uma exceção dentro dos elementos susceptíveis a ser medidos por este método. Por apresentarem apenas um tipo de

radiação. tornam impraticável a medição de coincidência.. Não seria possível, portanto, a determinação da eficiência do detector diretamente da medida.

Neste contexto, foi desenvolvido por Baerg o método do traçador. no qual faz-se a combinação do emissor  $\beta$  puro com um emissor  $\beta$ - $\gamma$ , denominado traçador [Campion, 1960; Baerg, 1963; Williams, 1964]. Este método torna possível a medição dos radionuclídeos emissores beta puros pelo método de coincidência, já que a eficiência da medida será fornecida pelo traçador.

O radionuclídeo utilizado como traçador deve possuir energia beta máxima de valor próximo à energia beta máxima do emissor beta puro, de forma que apresentem um comportamento semelhante [Baerg, 1963]. Além disso, ambos os radionuclídeos devem ser quimicamente compatíveis.

Para medidas de radionuclídeos com esquemas de decaimento complexo num detector  $4\pi\beta$ - $\gamma$ , a eficiência do detector  $\beta$  de um dado grupo  $\beta$  pode ser representado, sob certas condições, por uma função F da eficiência do traçador  $\epsilon_{tr}$  [Baerg, 1973]. Assim, a eficiência de detecção  $\beta$ ,  $\epsilon_{\beta p}$ , pode ser aproximada de um polinômio de ineficiência  $(1-\epsilon_{tr})$  da seguinte forma:

$$\epsilon_{\beta p} = f(1 - \epsilon_{tr}) = 1 + c_1(1 - \epsilon_{tr}) + c_2(1 - \epsilon_{tr})^2 + \dots$$

onde  $f \rightarrow 1$  quando  $\epsilon_{tr} \rightarrow 1$

No caso da medição de uma fonte mista, composta por ambos os radionuclídeos. o número de eventos detectados no detector beta é dado por:

$$N_{\beta(\beta_p + tr)} = N_{0\beta_p} \epsilon_{\beta\beta_p} + N_{0tr} \left[ \epsilon_{\beta_{tr}} + (1 - \epsilon_{\beta_{tr}}) \left( \frac{\alpha_{tr} \epsilon_{ec_{tr}} + \epsilon_{\beta\gamma_{tr}}}{1 + \alpha_{tr}} \right) \right] \quad (1.20)$$

No detector gama. o número de eventos detectados, provenientes do traçador. será dado por:

$$N_{\gamma} = N_{0tr} \epsilon_{\gamma_{tr}} \left( \frac{1}{1 + \alpha_{tr}} \right) \quad (1.21)$$

Os eventos detectados no canal de coincidência serão dados por:



$$N_{c_{tr}} = N_0 \varepsilon_{\beta_{tr}} \varepsilon_{\gamma_{tr}} \frac{1}{1 + \alpha_{tr}} \quad (1.22)$$

onde:

$N_{\beta_{(\beta p+tr)}}$  é a taxa de contagem do contador proporcional devido à fonte mista;

$N_{0tr}$  é a atividade do traçador da fonte mista;

$N_{0\beta p}$  é a atividade do beta puro;

$\varepsilon_{\beta_{\beta p}}$  é a eficiência  $\beta$  para o beta puro.

$\varepsilon_{\gamma_{tr}}$  é a eficiência gama para o traçador na fonte mista;

$N_c$  são os eventos de coincidência detectados no canal de coincidência;

$\varepsilon_{\beta_{tr}}$  é a eficiência beta para o traçador na fonte mista.

Quando um emissor beta puro e um traçador são combinados, existe uma relação entre suas eficiências de detecção. Esta relação pode ser definida por uma função polinomial G, onde:

$$\frac{\left(1 - \varepsilon_{\beta_{\beta p}}\right)}{\varepsilon_{\beta_{\beta p}}} = G \left( \frac{1 - \varepsilon_{\beta_{tr}}}{\varepsilon_{\beta_{tr}}} \right) \quad (1.23)$$

Como a eficiência do traçador  $\varepsilon_{\beta_{tr}}$  não pode ser sempre obtida com a precisão desejada dos dados de contagem, é conveniente escrever a expressão envolvendo as taxas de contagem:

$$\frac{N_{\beta_{(\beta p+tr)}} N_{\gamma_{tr}}}{N_{c_{tr}}} - N_{0tr} = N_{0\beta p} \left[ 1 + G' \left( \frac{1 - N_{c_{tr}}/N_{\gamma_{tr}}}{N_{c_{tr}}/N_{\gamma_{tr}}} \right) \right] \quad (1.24)$$

A função  $G'$  é ajustada pelo método dos mínimos quadrados e a extrapolação fornece o valor de  $N_{0\beta p}$ .

Sendo que  $(N_{\beta(\beta p+tr)} N_{\gamma tr}/N_{ctr}) - N_{0tr}$  estará em função de  $(1 - N_{ctr}/N_{\gamma tr}) / (N_{ctr}/N_{\gamma tr})$ , teremos que:

quando  $(1 - N_{ctr}/N_{\gamma tr}) / (N_{ctr}/N_{\gamma tr}) \rightarrow 0$ ,  $(N_{\beta(\beta p+tr)} N_{\gamma tr}/N_{ctr}) - N_{0tr} \rightarrow N_{0\beta p}$ .

Nestas equações, já estão incluídas as correções para a radiação de fundo, decaimento, tempo morto e coincidências acidentais.

## 2 PARTE EXPERIMENTAL

A parte experimental foi desenvolvida utilizando-se o sistema de coincidência  $4\pi(\text{PC})\text{-NaI}(\text{Tl})$  tanto para a padronização do radionuclídeo emissor  $\beta\text{-}\gamma$  (traçador) como para a padronização do emissor beta puro, pela medida das fontes mistas beta puro e traçador.

As fontes do traçador e as fontes mistas (traçador + beta puro) utilizadas foram confeccionadas em filmes finos para minimizar a auto-absorção beta, conforme descrito no item a seguir.

### 2.1 Preparação das fontes

#### 2.1.1 Confeção dos substratos de Collodion

Para o preparo das fontes é necessária inicialmente a confecção dos substratos, que são filmes finos de nitrato de celulose (Collodion elástico).

Estes filmes são feitos gotejando-se alíquotas de collodion elástico diluído em acetato de isoamila na proporção de 1:1 sobre uma superfície líquida ( $\text{H}_2\text{O}$  destilada e deionizada), formando um filme com espessura de aproximadamente  $10 \mu\text{g cm}^{-2}$ . Sobre o filme são colocadas arandelas de aço inox de 4 cm de diâmetro externo e diâmetro interno de 2 cm com espessura de 0,1 mm. Ao entrar em contato com as arandelas, o filme adere a elas, e estas são recortadas cuidadosamente, a fim de não romper a película aderida. Estes substratos são retirados e colocados para secar à temperatura ambiente. Posteriormente, os filmes são metalizados com ouro nas duas faces de modo a torná-los condutores, uma vez que as fontes radioativas são colocadas no centro do detector proporcional.

#### 2.1.2 Confeção das fontes radioativas

As fontes radioativas são preparadas depositando-se alíquotas conhecidas da solução em estudo na parte central dos substratos. Utiliza-se para isso um picnômetro de polietileno (Figura 2.1).

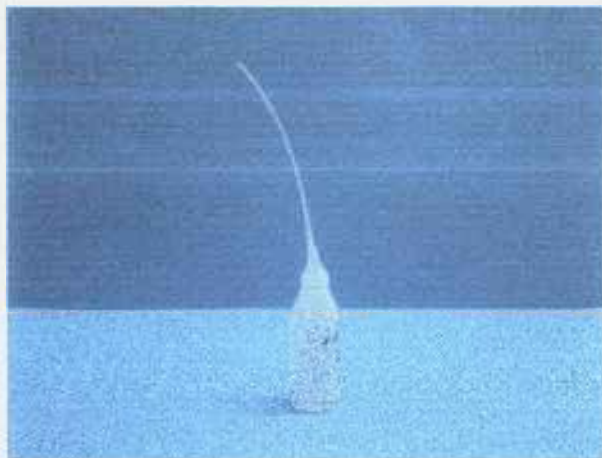


Figura 2.1: Picnômetro

Para a determinação das massas das fontes emprega-se a técnica do picnômetro [Campion, 1975]. Nesta técnica, o picnômetro é pesado antes e depois da deposição da alíquota no substrato. A diferença entre esses dois valores é a massa da fonte. A pesagem é feita em uma balança analítica Sartorius MC 21S, com incerteza de 20  $\mu\text{g}$  (figura 2.2).

A secagem das fontes é feita em dessecador ou com jato de nitrogênio aquecido à temperatura aproximada de 45°C [Willye, 1970].



Figura 2.2 - Balança analítica

### 2.1.3 Técnicas de preparação das fontes

As fontes de  $^{45}\text{Ca}$  e  $^{137}\text{Cs}$  foram preparadas empregando-se duas técnicas distintas, descritas a seguir, para sua comparação e validação.

#### 2.1.3.1 Técnica da Solução

A técnica da solução consiste em preparar uma solução mista homogênea com alíquotas conhecidas de emissor beta-gama (traçador) e beta puro, de modo a conhecer-se a proporção das duas soluções (figura 2.3).



Figura 2.3- Vidros com as soluções

As massas de beta puro e traçador de cada fonte são determinadas pelas expressões 2.1 e 2.2, respectivamente:

$$m_{\beta p} = \frac{m_{s\beta p}}{m_{s\beta p} + m_{str}} m_f \quad (2.1)$$

$$m_{tr} = \frac{m_{str}}{m_{s\beta} + m_{str}} m_f \quad (2.2)$$

onde:

$m_{\beta p}$  é a massa de beta puro na fonte da solução mista;

$m_{s\beta}$  é a massa da solução de beta puro na solução mista;

$m_{str}$  é a massa da solução de traçador na solução mista;

$m_f$  é a massa da fonte da solução mista;

$m_{tr}$  é a massa de traçador na fonte da solução mista.

### 2.1.3.2 Técnica das Gotas

Esta técnica consiste em depositar-se, individualmente e sobrepostas, alíquotas conhecidas de cada uma das soluções, beta puro e traçador, sobre os substratos. Esta técnica requer menos etapas na preparação das fontes, já que os radionuclídeos são depositados diretamente sobre os filmes de Collodion.

A massa das fontes foi determinada pelo método do picnômetro.

## 2.2 Arranjo Experimental

O sistema de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  utilizado neste trabalho consiste de dois tipos de detectores: um contador proporcional, utilizado para a medição das partículas beta, e dois cristais cintiladores, para detecção da radiação gama.

O contador proporcional, com geometria  $4\pi$ , é preenchido com gás P-10 (90% de argônio com 10% de metano), operado a uma pressão de 0,1 MPa e a uma tensão de 2050V.

Este contador é constituído por dois semi-cilindros de latão simétricos: entre eles há uma placa de latão deslizante com um orifício para o posicionamento da fonte. No momento da medida, a fonte colocada na placa deslizante fica no centro do detector (figura 2.4). Cada um dos semi-cilindros possui como anodo um fio de aço inoxidável de diâmetro de 25 $\mu\text{m}$ , fixado por isoladores de teflon. Estes anodos possuem conexões soldadas, que permitem o fornecimento da alta tensão e a coleta dos sinais [Lavras, 2002].



Figura 2.4 : Sistema de detecção

Os detectores cintiladores utilizados são um par de cristais planos de NaI(Tl) de 76mm x 76 mm, colocados sobre e sob o detector proporcional. Os NaI(Tl) foram operados a 1100V, e apresentam uma resolução de 10% para 795 keV do  $^{134}\text{Cs}$ .

### 2.2.1 Sistema eletrônico

O sistema eletrônico utilizado, cujo diagrama de blocos é apresentado na figura 2.6, pode ser dividido em três canais principais: a via beta, que corresponde ao sinal proveniente do detector proporcional; a via gama, que corresponde ao sinal proveniente dos cristais cintiladores; e a via TAC (time to amplitude converter), correspondente à coleção dos dados.

A figura 2.5 mostra o sistema eletrônico utilizado nas padronizações.

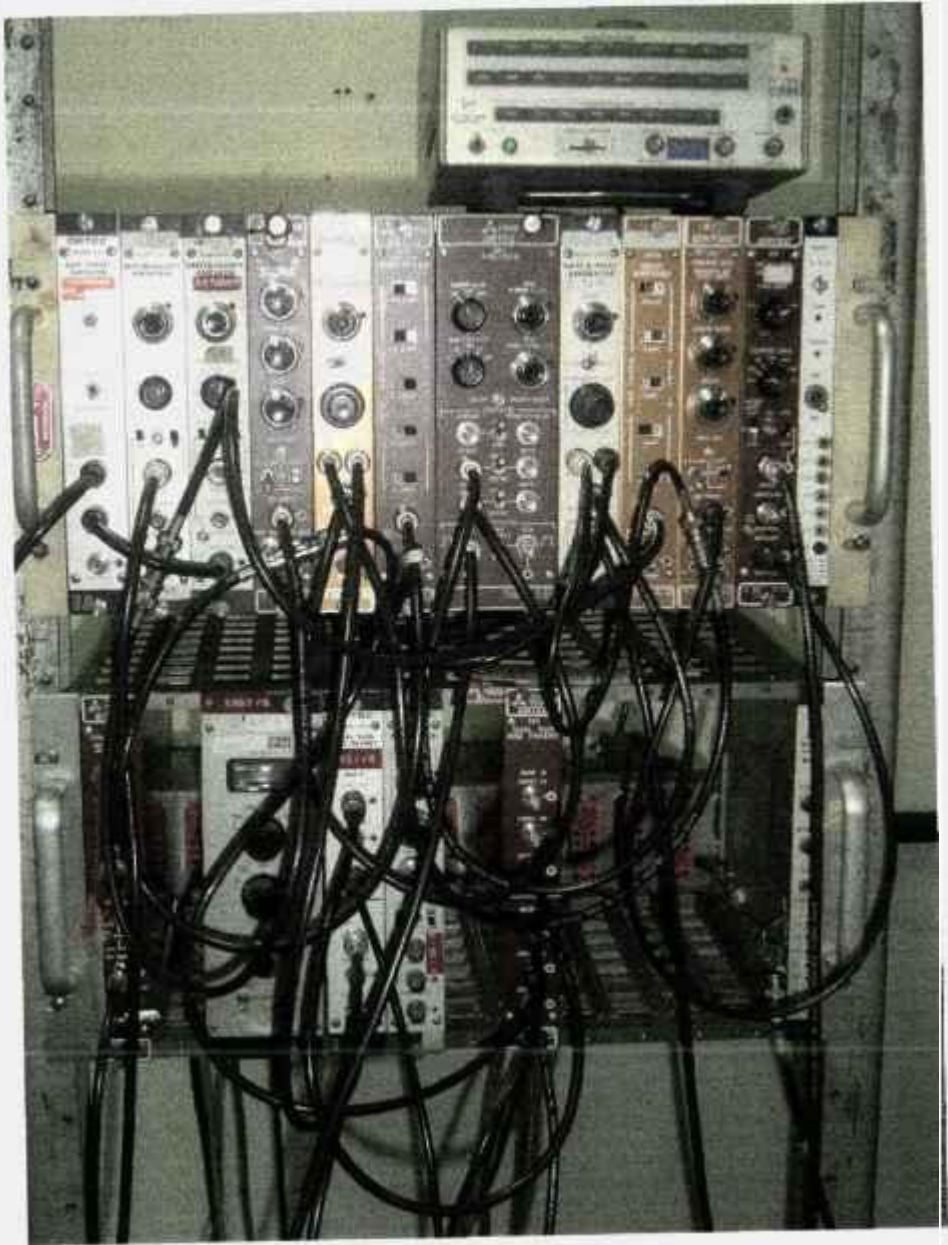


Figura 2.5: Sistema eletrônico associado ao método de coincidência



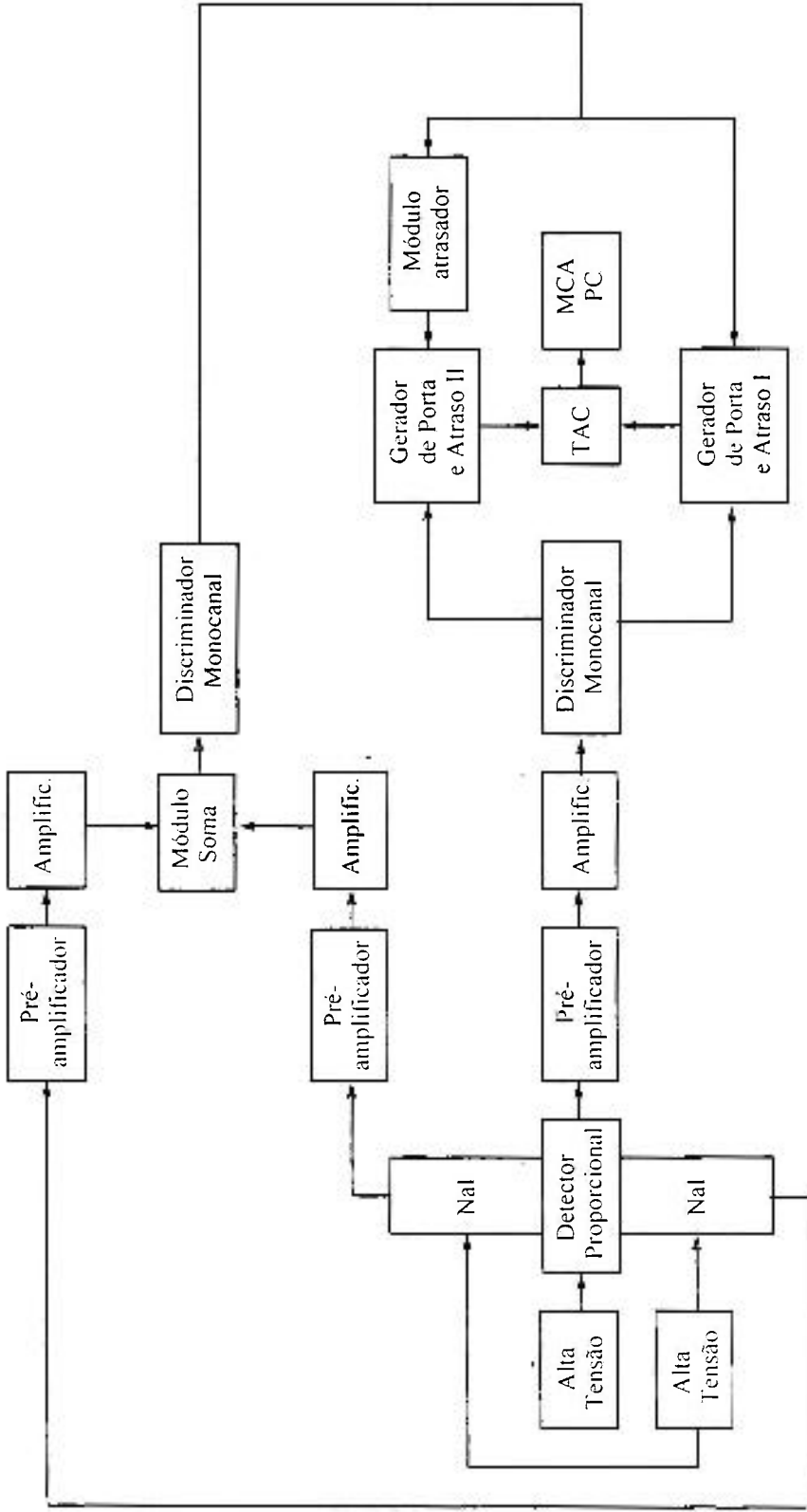


Figura 2.6: Diagrama de blocos do sistema de coincidência

### **Via Beta**

A medida na via beta é feita de modo integral, isto é, o sinal do detector proporcional é pré-amplificado e depois enviado ao amplificador, sendo estabelecido um ganho tal que permita que todas as partículas beta detectadas sejam coletadas. Este sinal é por sua vez enviado a um módulo discriminador, analisador de altura de pulso, monocanal (timing single channel analyzer-SCA). Este módulo, com controle de tempo, é operado de modo integral, discriminando-se apenas o ruído eletrônico. Após a discriminação, o sinal é enviado a dois geradores de porta e atraso (gate and delay generator 1 e 2), para a formação do pulso lógico posicionado no tempo, sendo em seguida enviado ao módulo TAC, conforme o diagrama de blocos (figura 2.6).

### **Via Gama**

Os sinais provenientes dos detectores cintiladores são enviados, depois de pré-amplificados, para dois amplificadores, onde é feito o ajuste para que as amplitudes dos pulsos possam ser somadas em um módulo soma. O sinal do módulo soma é enviado a um discriminador (SCA) operado em modo diferencial, onde será discriminado o intervalo de amplitude correspondente ao fotopico de absorção total selecionado. Este sinal é enviado simultaneamente para os dois geradores de porta e atraso (1 e 2). O sinal a ser enviado ao gerador 2 passa por um módulo atrasador (delay amplifier), recebendo atraso adicional de modo que não ocorram sobreposições no tempo. Os sinais dos dois geradores são enviados ao módulo TAC.

### **Via TAC**

Para registro dos pulsos, o sistema utiliza um conversor de tempo para amplitude de pulso (TAC) associado ao analisador multicanal (MCA). Os pulsos enviados pelos dois módulos geradores provenientes das vias beta e gama são enviados para o TAC em suas entradas início (start) e término (stop). O módulo TAC, após receber o sinal de início fica aguardando um sinal de término; ao recebê-lo, transforma esta informação de tempo em amplitude de pulso, e a envia ao MCA, dando origem no espectro aos picos beta, gama e de coincidência.

Na figura 2.7 é apresentado um espectro típico utilizando o TAC. O primeiro pico corresponde aos pulsos do contador proporcional, o segundo corresponde a pulsos de coincidência e o terceiro é devido a pulsos gama. O primeiro e o terceiro picos não incluem eventos de coincidência.

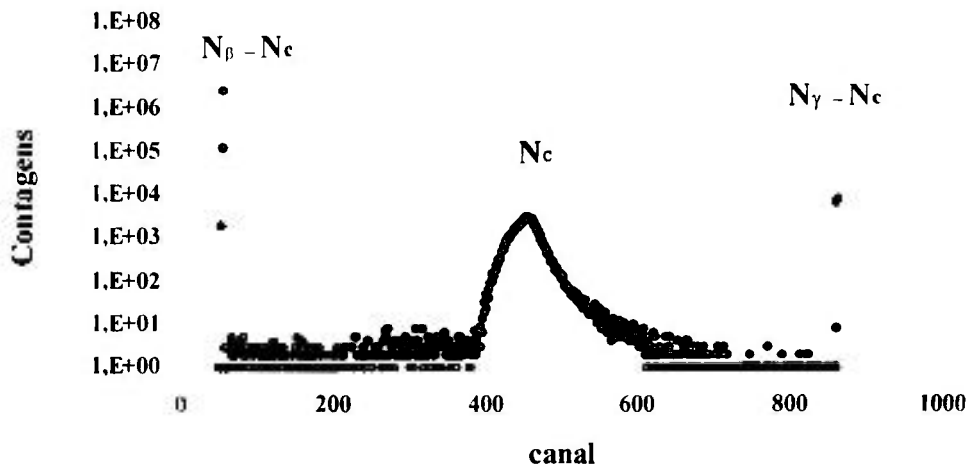


Figura 2.7: Espectro do TAC registrado pelo multicanal

As contagens beta são obtidas pela integração do primeiro pico ( $N_{\beta} - N_c$ ) com o pico de coincidências ( $N_c$ ); as contagens gama são obtidas pela integração do terceiro pico ( $N_{\gamma} - N_c$ ) com o pico de coincidências e as contagens de coincidência são obtidas pela integração do pico central ( $N_c$ ).

A escolha dos atrasos dos pulsos beta e gama é feita em função das taxas de contagens e do tempo morto do multicanal, que dependem do canal. Como as contagens beta são sempre maiores, uma vez que a eficiência beta é alta comparada com a eficiência gama, para que o tempo morto seja o menor possível, posiciona-se o sinal beta nos canais iniciais.

### 2.3 Procedimento de Medida

Para a padronização dos radionuclídeos no sistema de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ , inicialmente foram medidas as fontes contendo apenas o elemento traçador, determinando-se sua atividade específica. Posteriormente, foram medidas as fontes dos elementos beta puro misturados com o traçador, preparadas pelas técnicas descritas em 2.1.3.

Na medição propriamente dita, após a introdução da fonte no detector, devem ser estabelecidas as condições de medida tanto da via beta como da via gama, conforme descrito a seguir:

### **2.3.1 Ajuste das condições eletrônicas da via beta**

Para a escolha do ganho de amplificação adequado e verificação do nível de discriminação para eliminação do ruído, utiliza-se um sistema eletrônico auxiliar (figura 2.8).

Neste sistema, o sinal do amplificador é enviado simultaneamente para um módulo atrasador (delay amplifier) e para o discriminador, passando para o gerador de porta e atraso. Estes sinais são enviados ao MCA, no qual pode ser visualizado o espectro beta diretamente do amplificador ou após passar pela discriminação. Esta seleção é feita no MCA, com o módulo porta (gate) posicionado em medida direta ou em medida em coincidência.

O módulo atrasador é utilizado para permitir que o sinal direto do amplificador e o sinal do gerador cheguem ao mesmo tempo no MCA.

### **2.3.2 Ajuste das condições eletrônicas da via gama**

Como no sistema são empregados dois cristais de NaI(Tl), inicialmente faz-se a escolha dos ganhos dos amplificadores, para que os espectros gama sejam coincidentes. Os sinais são enviados ao módulo somador.

Posteriormente, utiliza-se o sistema eletrônico auxiliar apresentado na figura 2.8 para discriminação dos níveis de energia do fotopico de absorção total selecionado para a medida. Utiliza-se o MCA de modo semelhante ao descrito para a via beta.

Após estes ajustes, faz-se a escolha dos tempos de atraso das duas vias, de modo que os sinais enviados ao TAC e posteriormente ao MCA não fiquem sobrepostos.

O tempo de cada medida é fixado no MCA, sendo da ordem de 2000 segundos.

A medida da radiação de fundo é feita de modo análogo, retirando-se a fonte do detector. O tempo de medida da radiação de fundo é da ordem de 1000 segundos.

Os espectros resultantes das medidas da fonte e da radiação de fundo são gravados no microcomputador acoplado ao MCA.

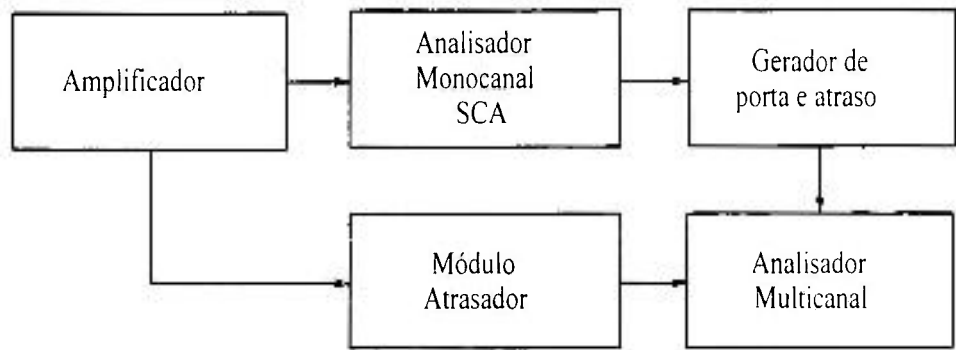


Figura 2.8: Sistema eletrônico auxiliar utilizado para discriminação das energias selecionadas

## 2.4 Cálculo da atividade do emissor beta puro e traçador

### 2.4.1 Cálculo da atividade do traçador

O cálculo da atividade do traçador é feito pelo programa CONTAC desenvolvido no laboratório de Metrologia Nuclear [Dias, 2001].

Este programa faz a leitura do espectro da fonte e do espectro da radiação de fundo, subtraindo a radiação de fundo ponto a ponto, fornecendo a razão  $N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$ , os parâmetros de eficiência  $N_c/N_{\gamma}$  e de ineficiência  $(1-N_c/N_{\gamma})/(N_c/N_{\gamma})$  com as respectivas incertezas.

Nos resultados são aplicadas as seguintes correções:

- Correção para tempo morto obtida da razão tempo de medida/tempo real, fornecidos pelo MCA ;

- Correção de decaimento, que considera o decaimento durante a medida obtido pela expressão:

$$N_r = N \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}} e^{\lambda(t_m - t_r)} \quad (2.3)$$

onde:

$N_r$  é a taxa de desintegração na data de referência;

$N$  é a taxa de desintegração na data da medida;

$t$  é o tempo da medida;

$t_r$  é a data de referência;

$t_m$  é a data da medida;

$\lambda$  é a constante de decaimento.

- Correção para coincidências espúrias, calculado pelo formalismo de Cox- Isham [Cox- Isham, 1977];

- As incertezas são calculadas utilizando-se a metodologia de análise de covariância, que é uma forma de representação das incertezas em dados experimentais. Fornece a incerteza total e informações sobre a existência de um nível de correlação entre as incertezas dos parâmetros da medida.

A análise de covariância é realizada pelo programa LINFIT (Dias, 1999).

#### **2.4.2 Cálculo da atividade do emissor beta puro**

Para este cálculo, foi desenvolvido um programa denominado CONTACT [Dias, 2004] que é uma modificação do programa CONTAC descrito no sub-item anterior.

Neste programa, é fornecido como dado de entrada a atividade do traçador previamente determinada. O programa fornece a razão  $[N_{\beta(\beta p + tr)} N_{\gamma tr} / N_{ctr}] - N_{0tr}$ , assim como os parâmetros de ineficiência, que são posteriormente analisados para obtenção da atividade do emissor beta puro.

Após a medida de todas as fontes, é selecionada a fonte que apresenta maior eficiência beta. Com esta fonte faz-se a variação da eficiência pelo uso de absorvedores externos de Collodion e de alumínio, colocados sobre e sob a fonte. Em uma medida típica são colocados inicialmente de um a três filmes de Collodion, com a espessura média de  $35 \mu\text{g cm}^{-2}$ , alternando-se os lados da fonte.

Tal procedimento é repetido a cada medida até que o valor da eficiência inicial varie em aproximadamente quatro vezes. Caso a fonte em estudo fique danificada, recomeça-se o procedimento com outra fonte.

Com os diferentes valores de atividade e ineficiência  $(1 - N_c/N_\gamma) / (N_c/N_\gamma)$  das diferentes fontes, os dados medidos são analisados pelo programa LINFIT [Dias, 1999], que utiliza o método dos mínimos quadrados. Os resultados são colocados num gráfico.

cujas ordenadas são as contagens beta e a abscissa os valores das ineficiências obtidas nas medidas. Segundo a técnica da extrapolação linear da eficiência, o valor da atividade é o valor extrapolado.

### 3 PADRONIZAÇÃO DOS RADIONUCLÍDEOS BETA EMISSORES

#### 3.1 Padronização do $^{204}\text{Tl}$

A padronização de uma solução do emissor  $\beta^-$  puro  $^{204}\text{Tl}$  foi realizada, sendo que o  $^{134}\text{Cs}$  foi o radionuclídeo utilizado como traçador. A escolha do  $^{134}\text{Cs}$  para traçador se deve ao valor semelhante de suas energias  $\beta$  máximas: 763,4 keV do  $^{204}\text{Tl}$  e 657,8 keV do  $^{134}\text{Cs}$ .

O  $^{204}\text{Tl}$  decai com uma meia-vida de  $(1381 \pm 7)$  dias [Lagoutine, 1984] para o estado fundamental do  $^{204}\text{Pb}$  pela emissão  $\beta^-$  (97%), e para o estado fundamental do  $^{204}\text{Hg}$  por captura de elétrons (3%), como mostrado na figura 3.1 [Lagoutine, 1984].

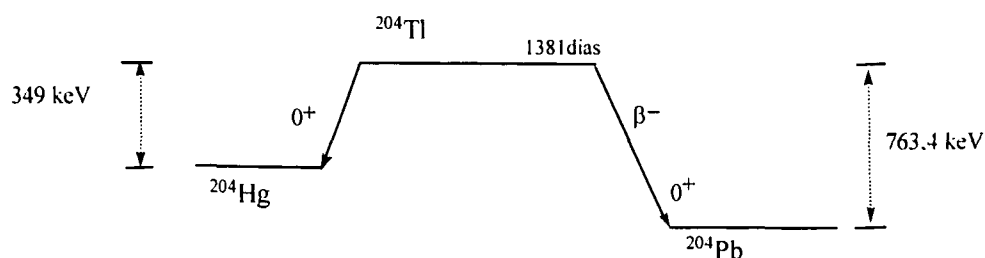


Figura 3.1: Esquema de Decaimento do  $^{204}\text{Tl}$  [Lagoutine, 1984] – Energias em keV

Na tabela 3.1 são apresentadas as radiações, principais energias e intensidades absolutas emitidas no decaimento do  $^{204}\text{Tl}$  [Lagoutine, 1984].

Tabela 3.1: Dados do esquema de decaimento do  $^{204}\text{Tl}$

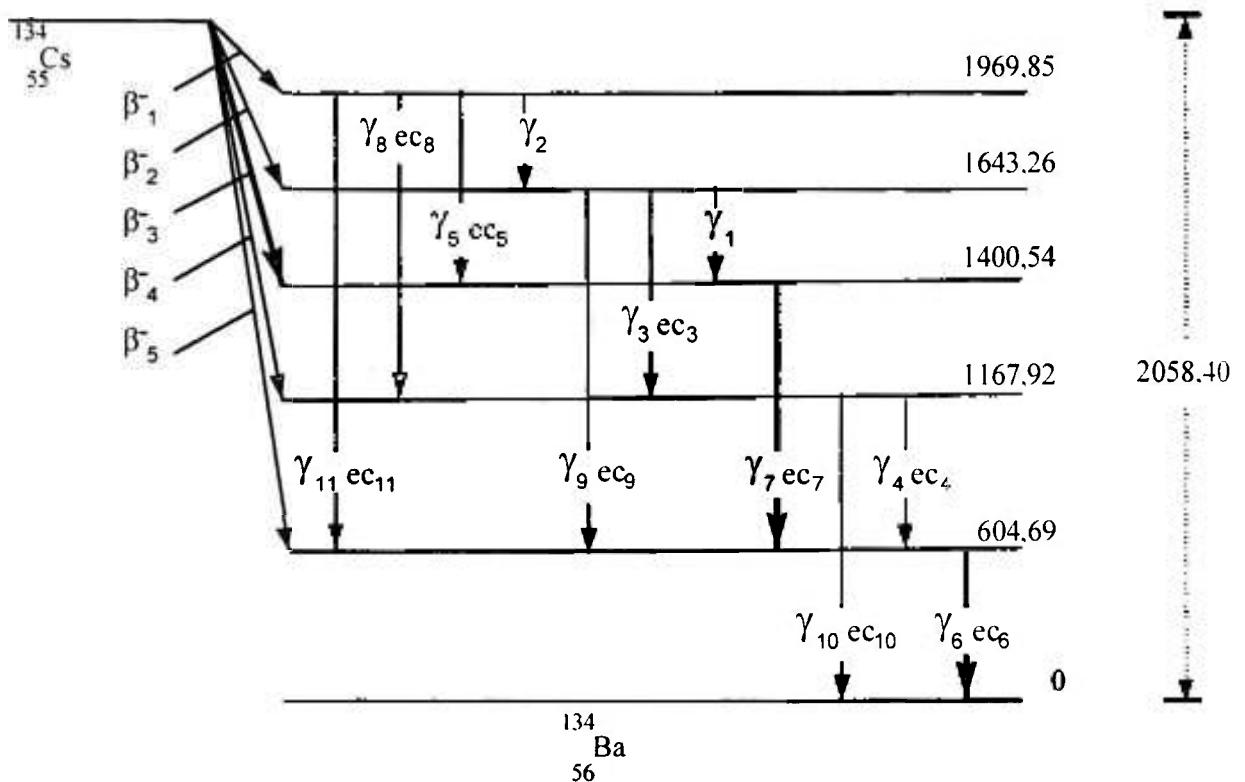
	Energia (keV)	Intensidade Absoluta(%)
Radiação $\beta^-$ máxima	$763,4 \pm 0,2$	$97,4 \pm 0,1$
Captura eletrônica	$349,0 \pm 5$	$2,6 \pm 0,1$
Rendimento de luminescência $\omega_K$	$0,966 \pm 0,020$	
Rendimento de luminescência $\omega_L$	$0,37 \pm 0,04$	



Tabela 3.1: Dados do esquema de decaimento do  $^{204}\text{Tl}$  - Continuação

Probabilidade relativa para captura de elétrons $P_K$	$0,588 \pm 0,006$
Probabilidade relativa para captura de elétrons $P_L$	$0,300 \pm 0,004$

O  $^{134}\text{Cs}$  é um radionuclídeo emissor  $\beta$ - $\gamma$ , que decai com uma meia-vida de  $(2,066 \pm 0,001)$  anos [Lagoutine, 1984] com emissão beta, populando os estados excitados do  $^{134}\text{Ba}$ , como mostrado na figura 3.2.

Figura 3.2: Esquema de Decaimento do  $^{134}\text{Cs}$  [Lagoutine, 1984] – Energias em keV

Na tabela 3.2 são apresentadas as principais energias e intensidades absolutas emitidas no decaimento do  $^{134}\text{Cs}$  [Lagoutine, 1984].

Tabela 3.2: Dados do esquema de decaimento do  $^{134}\text{Cs}$ 

Tipos de Radiação	Energia (keV)	Intensidade Absoluta(%)
$\beta_1^-$ máxima	$88,5 \pm 0,4$	$27,2 \pm 0,2$
$\beta_2^-$ máxima	$415,1 \pm 0,4$	$2,50 \pm 0,05$
$\beta_3^-$ máxima	$657,8 \pm 0,4$	$70,2 \pm 0,4$
$\beta_4^-$ máxima	$890,5 \pm 0,4$	$0,04 \pm 0,03$
$\beta_5^-$ máxima	$1453,7 \pm 0,4$	$0,008 \pm 0,006$
Captura eletrônica	$369 \pm 3$	$0,0003 \pm 0,0001$
$\gamma_1$ (Ba)	$242,8 \pm 0,1$	$0,021 \pm 0,001$
$\gamma_2$ (Ba)	$326,5 \pm 0,1$	$0,014 \pm 0,001$
$\gamma_3$ (Ba)	$475,34 \pm 0,02$	$1,52 \pm 0,02$
$\gamma_4$ (Ba)	$563,23 \pm 0,02$	$8,44 \pm 0,03$
$\gamma_5$ (Ba)	$569,32 \pm 0,02$	$15,54 \pm 0,05$
$\gamma_6$ (Ba)	$604,69 \pm 0,02$	$98,21 \pm 0,04$
$\gamma_7$ (Ba)	$795,84 \pm 0,01$	$85,78 \pm 0,03$
$\gamma_8$ (Ba)	$801,93 \pm 0,02$	$8,73 \pm 0,02$
$\gamma$ (Xe)	$847,0 \pm 0,2$	$0,0003 \pm 0,0001$
$\gamma_9$ (Ba)	$1038,55 \pm 0,020$	$0,993 \pm 0,004$
$\gamma_{10}$ (Ba)	$1167,92 \pm 0,02$	$1,794 \pm 0,008$
$\gamma_{11}$ (Ba)	$1365,16 \pm 0,02$	$3,018 \pm 0,013$

As equações para o método do traçador na padronização do  $^{204}\text{Tl}$  são:

$$N_{\beta_{(Tl+Cs)}} = N_{0Tl} \varepsilon_{\beta Tl} + N_{0Cs} \left[ \varepsilon_{\beta Cs} + (1 - \varepsilon_{\beta Cs}) \left( \frac{\alpha_{Cs} \varepsilon_{ec Cs} + \varepsilon_{\beta \gamma Cs}}{1 + \alpha_{Cs}} \right) \right] \quad (3.1)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \varepsilon_{\gamma Cs} \left( \frac{1}{1 + \alpha_{Cs}} \right) \quad (3.2)$$

$$N_c = N_0 \epsilon_{\beta Cs} \epsilon_{\gamma Cs} \frac{1}{1 + \alpha_{Cs}} \quad (3.3)$$

onde:

$N_{\beta(Tl+Cs)}$  é a taxa de contagem do contador proporcional devido a fonte mista;

$N_{0Tl}$  é a taxa de desintegração beta do  $^{204}Tl$ ;

$\epsilon_{\beta Tl}$  é a eficiência beta do  $^{204}Tl$ ;

$N_{0Cs}$  é a atividade do traçador  $^{134}Cs$  depositado na fonte mista;

$\epsilon_{\beta Cs}$  é a eficiência do traçador na fonte mista, obtida por  $N_c/N_\gamma$ ;

$\alpha_{Cs}$  é o coeficiente de conversão interna total associado ao traçador  $^{134}Cs$ ;

$\epsilon_{ecCs}$  é a eficiência de detecção do elétron de conversão associada ao traçador  $^{134}Cs$ ;

$\epsilon_{\beta\gamma Cs}$  é a eficiência da detecção gama do detector beta para o traçador  $^{134}Cs$ ;

$N_\gamma$  é a taxa de contagem gama;

$\epsilon_{\gamma Cs}$  é a eficiência da detecção gama;

$N_c$  é a taxa de contagem de coincidências.

Quando o emissor  $\beta$  puro e o traçador  $\beta$ - $\gamma$  são combinados em uma única fonte, uma relação funcional existe entre as eficiências de detecção [ICRU, 1994]. Esta relação pode ser definida por uma função polinomial  $G$  onde:

$$(1 - \epsilon_{\beta Tl}) / \epsilon_{\beta Tl} = G((1 - \epsilon_{\beta Cs}) / \epsilon_{\beta Cs}) \quad (3.4)$$

Aplicando a técnica de extrapolação, pode-se escrever a expressão como:

$$\frac{N_{\beta(Tl+Cs)} N_\gamma}{N_c} - N_{0Cs} = N_{0\beta Tl} \left[ 1 + G'((1 - \epsilon_{\beta Cs}) / \epsilon_{\beta Cs}) \right] \quad (3.5)$$

A função  $G'$  foi ajustada pelo método dos mínimos quadrados utilizando-se o programa LINFIT [Dias, 1999]. A extrapolação para  $(1 - \epsilon_{\beta Cs}) / \epsilon_{\beta Cs} = 0$  fornece o valor esperado  $N_{0\beta Tl}$ .

No cálculo da atividade foram incluídas as correções para radiação de fundo, decaimento, tempo morto e coincidências acidentais.

A atividade final é dada por:

$$N_0 = \frac{N_{0\beta Tl}}{I_\beta + \epsilon_{ce} I_{ce}} \quad (3.6)$$

onde:

$N_0$  é a taxa de desintegração do  $^{204}Tl$ ;

$I_\beta$  and  $I_{ce}$  são as intensidades absolutas do decaimento beta e da captura de elétrons;

$\epsilon_{ce}$  é a eficiência dos eventos da captura de elétrons.

No caso do  $^{204}Tl$ , a eficiência dos eventos de captura de elétrons é dominada pela detecção de elétrons Auger, porque o contador proporcional possui baixa eficiência para raios X de 8 - 83 keV.

Negligenciando as transições acima da camada L, o valor de  $\epsilon_{ce}$  é dado por aproximadamente:

$$\epsilon_{ce} = \epsilon_{AcK} P_K (1 - \omega_K) + \epsilon_{AeL} P_L (1 - \omega_L) - \epsilon_{AcK} \epsilon_{AeL} P_K P_L (1 - \omega_K)(1 - \omega_L) \quad (3.7)$$

Onde:

K e L correspondem às camadas K e L, respectivamente;

$\omega_K$  e  $\omega_L$  são os rendimentos de luminescência;

$\epsilon_{AcK}$  e  $\epsilon_{AeL}$  são as eficiências de detecção para elétrons Auger;

$P_K$  e  $P_L$  são as probabilidades relativas para captura de elétrons.

A parte final desta equação leva em conta a detecção simultânea de elétrons Auger K e L, que no caso do  $^{204}Tl$  é pequena.

Para esta padronização foram preparadas 8 fontes de  $^{134}Cs$  e 8 fontes mistas de  $^{204}Tl$  e  $^{134}Cs$  pela técnica de deposição de gotas descrita em 2.1.3.2. A solução de  $^{204}Tl$  foi alvo de

uma comparação internacional patrocinada pelo BIPM (Bureau International de Poids et Mesures).

A medida, seja das fontes mistas como do traçador  $^{134}\text{Cs}$ , foi feita selecionando-se as energias gama na faixa de (795,84 + 801,93) keV do  $^{134}\text{Cs}$ , por apresentar menor valor da correção para o esquema de decaimento.

### 3.2 Padronização do $^{45}\text{Ca}$

Para a padronização do  $^{45}\text{Ca}$  foi selecionado como traçador o  $^{60}\text{Co}$ , pois este emite um  $\beta$  máximo de 317,89 keV, próximo do valor do  $\beta$  máximo do  $^{45}\text{Ca}$ , que é de 256,9 keV.

O  $^{45}\text{Ca}$  decai com uma meia-vida de  $(163 \pm 1)$  dias [Lagoutine,1984] por emissão beta, 0,0017% populando o estado excitado do  $^{45}\text{Sc}$  e 99,9983% decaindo para o estado fundamental, com energia de  $(256,9 \pm 1,0)$  keV como mostra a figura 3.3. Como a probabilidade de emissão gama é muito baixa, ele pode ser considerado um radionuclídeo emissor beta puro.

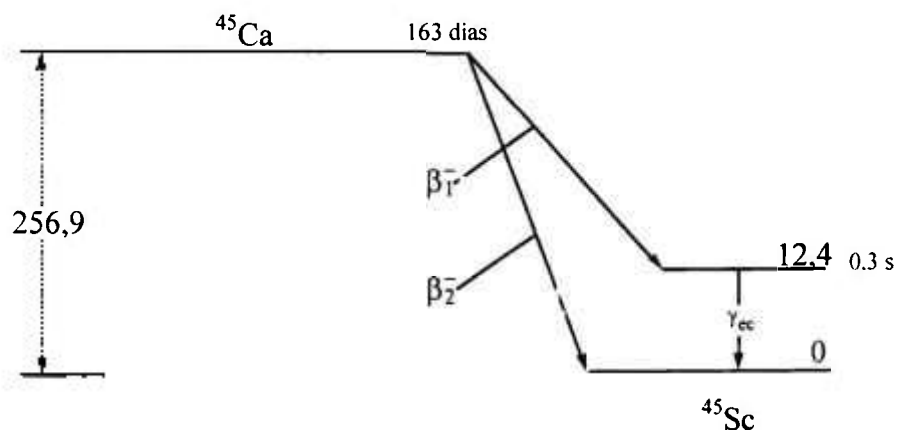


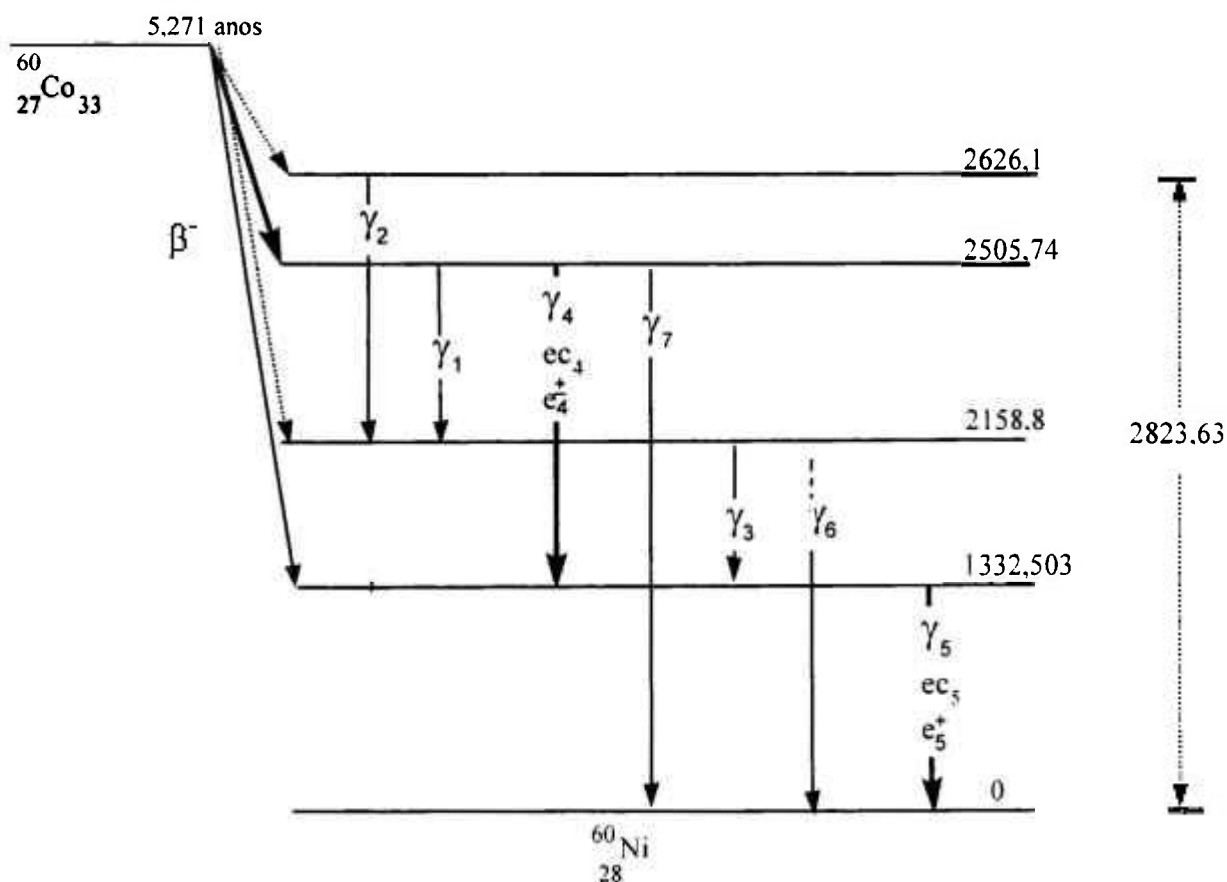
Figura 3.3: Esquema de decaimento do  $^{45}\text{Ca}$  [Lagoutine,1984] – Energias em keV

Na tabela 3.3 são apresentadas as principais energias e intensidades absolutas emitidas no decaimento do  $^{45}\text{Ca}$  [Lagoutine, 1984].

Tabela 3.3: Dados do esquema de decaimento do  $^{45}\text{Ca}$ 

Tipos de Radiação	Energia (keV)	Intensidade Absoluta(%)
$\beta_1^-$ máxima	$244,5 \pm 1,3$	$0,0017 \pm 0,0008$
$\beta_2^-$ máxima	$256,9 \pm 1,0$	99,9983
$\gamma_1$	$12,40 \pm 0,3$	$0,0017 \pm 0,0008$

O  $^{60}\text{Co}$  decai com uma meia-vida de  $(5,271 \pm 0,002)$  anos [Lagoutine.1984] por emissão beta, populando os níveis excitados do  $^{60}\text{Ni}$ , que decai para o estado fundamental com emissão de radiação gama de  $(1332,503 \pm 0,005)$  keV e  $(1173,239 \pm 0,004)$  keV, conforme mostrado na figura 3.4.

Figura 3.4: Esquema de Decaimento do  $^{60}\text{Co}$  [Lagoutine.1984] – Energias em keV

Na tabela 3.4 são apresentadas as principais energias e intensidades absolutas das radiações emitidas no decaimento do  $^{60}\text{Co}$  [Lagoutine, 1984].

Tabela 3.4: Dados do esquema de decaimento do  $^{60}\text{Co}$

Tipos de Radiação	Energia (keV)	Intensidade Absoluta(%)
$\beta_1^-$ máxima	$197,5 \pm 0,2$	$\leq 0,002$
$\beta_2^-$ máxima	$317,89 \pm 0,11$	$99,92 \pm 0,03$
$\beta_3^-$ máxima	$664,83 \pm 0,20$	$\leq 0,002$
$\beta_4^-$ máxima	$1491,13 \pm 0,12$	$0,08 \pm 0,02$
$\gamma_1$	$346,93 \pm 0,07$	$0,0075 \pm 0,0005$
$\gamma_2$	$467,3 \pm 0,2$	$\leq 0,002$
$\gamma_3$	$826,28 \pm 0,09$	$0,0076 \pm 0,0008$
$\gamma_4$	$1173,239 \pm 0,004$	$99,91 \pm 0,02$
$\gamma_5$	$1332,503 \pm 0,005$	$99,9989 \pm 0,0006$
$\gamma_6$	$2158,77 \pm 0,09$	$0,0011 \pm 0,0002$
$\gamma_7$	$2505,75 \pm 0,03$	$(2,0 \pm 0,4) \times 10^{-6}$

As equações para o método do traçador na padronização do  $^{45}\text{Ca}$  são:

$$N_{\beta_{(\text{Ca}+\text{Co})}} = N_{0\text{Ca}} \varepsilon_{\beta\text{Ca}} + N_{0\text{Co}} \left[ \varepsilon_{\beta\text{Co}} + (1 - \varepsilon_{\beta\text{Co}}) \left( \frac{\alpha_{\text{Co}} \varepsilon_{\text{ecCo}} + \varepsilon_{\beta\gamma\text{Co}}}{1 + \alpha_{\text{Co}}} \right) \right] \quad (3.8)$$

$$N_{\gamma} = N_{0\text{Co}} \varepsilon_{\gamma\text{Co}} \left( \frac{1}{1 + \alpha_{\text{Co}}} \right) \quad (3.9)$$

$$N_c = N_{0\text{Co}} \varepsilon_{\beta\text{Co}} \varepsilon_{\gamma\text{Co}} \frac{1}{1 + \alpha_{\text{Co}}} \quad (3.10)$$

Os termos estão definidos conforme nas equações 3.1, 3.2 e 3.3, considerando-se as modificações para os radionuclídeos beta puro e traçador.

A função polinomial G existente entre as eficiências de detecção pode ser definida como:

$$\left(1 - \varepsilon_{\beta\text{Ca}}\right) / \varepsilon_{\beta\text{Ca}} = G \left( \left(1 - \varepsilon_{\beta\text{Co}}\right) / \varepsilon_{\beta\text{Co}} \right) \quad (3.11)$$

Reescrevendo a função, envolvendo apenas as taxas  $\beta$ - $\gamma$  observadas e as taxas de coincidência:

$$\frac{N_{\beta(\text{Ca}+\text{Co})}N_{\gamma\text{Co}}}{N_{c\text{Co}}} - N_{0\text{Co}} = N_{0\text{Ca}} \left[ 1 + G' \left( \left(1 - \frac{N_{c\text{Co}}}{N_{\gamma\text{Co}}}\right) / \frac{N_{c\text{Co}}}{N_{\gamma\text{Co}}} \right) \right] \quad (3.12)$$

O valor de  $N_{0\text{Ca}}$  é obtido através da extrapolação :

$$\left(1 - N_{c\text{Co}}/N_{\gamma\text{Co}}\right) / N_{c\text{Co}}/N_{\gamma\text{Co}} = 0 \quad (3.13)$$

No cálculo da atividade foram incluídas as correções para radiação de fundo, decaimento, tempo morto e coincidências acidentais.

Para a padronização do  $^{45}\text{Ca}$  foram feitas fontes utilizando as duas técnicas de preparo, técnica de solução e a técnica de gotas.

Foram preparadas três fontes da solução de traçador ( $^{60}\text{Co}$ ). Pela técnica de solução, foram preparadas duas soluções com diferentes proporções de traçador e beta puro: 1:1 e 1:2, identificadas como solução S1 e S2. Tal procedimento foi adotado para que se pudesse verificar eventuais diferenças em seus resultados.

Pela técnica de gotas foram preparadas seis fontes, e este grupo foi denominado G.

As medidas foram realizadas selecionando-se as duas radiações gama principais do  $^{60}\text{Co}$ ,  $(1332,503 \pm 0,005)$  keV e  $(1173,239 \pm 0,004)$  keV.

Para a obtenção da curva de extrapolação foram selecionadas as fontes de maior eficiência. Estas fontes tiveram sua eficiência variada pelo uso de absorvedores externos.



### 3.3 Padronização do $^{137}\text{Cs}$

Com o intuito de utilizar o método do traçador com outro radionuclídeo emissor  $\beta$  puro, foi selecionado o  $^{137}\text{Cs}$ , utilizando-se como traçador o  $^{134}\text{Cs}$ .

O decaimento deste nuclídeo, mostrado na figura 3.5, ocorre com uma meia-vida de  $(30,15 \pm 0,06)$  anos [Lagoutine,1984]. O  $^{137}\text{Cs}$  decai para o estado fundamental com emissão beta de  $(1173,2 \pm 0,9)$  keV, (5,4 %), e pela emissão beta de  $(511,5 \pm 0,9)$  keV, (94,6 %), populando o estado meta-estável do  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ , que decai com meia-vida de  $(2,554 \pm 0,002)$  minutos [Lagoutine,1984] para o estado fundamental pela emissão de uma radiação gama de  $(661,662 \pm 0,003)$  keV.

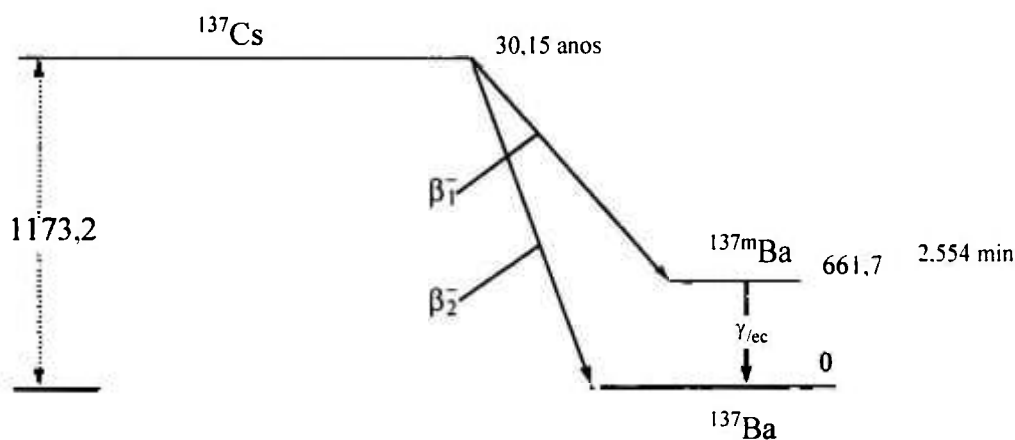


Figura 3.5: Esquema de decaimento do  $^{137}\text{Cs}$  [Lagoutine,1984] – Energias em keV

Na tabela 3.5 são apresentadas as principais energias e intensidades absolutas das radiações emitidas no decaimento do  $^{137}\text{Cs}$  [Lagoutine, 1984].

Tabela 3.5: Dados do esquema de decaimento do  $^{137}\text{Cs}$ 

Tipos de Radiação	Energia (keV)	Intensidade Absoluta(%)
$\beta_1$ máxima	$511,5 \pm 0,9$	$94,6 \pm 0,3$
$\beta_2$ máxima	$1173,2 \pm 0,9$	$5,4 \pm 0,3$
$\gamma$	$661,662 \pm 0,003$	$94,6 \pm 0,3$

Apesar da existência da radiação gama, o decaimento beta do  $^{137}\text{Cs}$  não é acompanhado desta radiação, devido ao valor da meia-vida do estado meta-estável, de  $(2,554 \pm 0.002)$  minutos.

A meia-vida longa do estado meta-estável torna o método de coincidência impraticável, sendo que a eficiência de detecção beta não pode ser medida diretamente. Contudo, a medição da coincidência será possível utilizando-se o método do traçador [Sahagia, 1981; Srivastava, 1977].

A escolha do  $^{134}\text{Cs}$  como traçador se deve ao fato deste nuclídeo ter preferência no caso da padronização do  $^{137}\text{Cs}$  [Rytz, 1985], pois, por ser o mesmo elemento químico que o  $^{137}\text{Cs}$ , assegura a uniformidade da mistura de ambos, além da proximidade dos valores de suas energias máximas,  $(657,8 \pm 0,4)$  keV do  $^{134}\text{Cs}$  e  $(511,5 \pm 0,9)$  keV do  $^{137}\text{Cs}$ .

A descrição do  $^{134}\text{Cs}$ , utilizado como traçador, encontra-se no item 3.1, por ter sido utilizado nas duas padronizações.

As medidas foram realizadas selecionando-se as energias gama na faixa de  $(795,84 + 801,93)$  keV do  $^{134}\text{Cs}$ .

As equações de coincidência aplicadas à mistura  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$  são dadas por:

$$N_{\beta(Cs7+Cs4)} = N_{0Cs7} \left( \varepsilon_{\beta Cs7} + C \right) + N_{0Cs4} \left[ \varepsilon_{\beta Cs4} + \left( 1 - \varepsilon_{\beta Cs4} \right) \left( \frac{\alpha_{Cs4} \varepsilon_{ecCs4} + \varepsilon_{\beta\gamma Cs4}}{1 + \alpha_{Cs4}} \right) \right] \quad (3.1)$$

$$N_{\gamma} = N_{0} \varepsilon_{\gamma Cs4} \frac{1}{1 + \alpha_{Cs4}} \quad (3.15)$$

$$N_c = N_0 \varepsilon_{\beta Cs4} \varepsilon_{\gamma Cs4} \frac{1}{1 + \alpha_{Cs4}} \quad (3.16)$$

Os termos estão definidos conforme nas equações 3.1, 3.2 e 3.3, considerando-se as modificações para os radionuclídeos beta puro e traçador.

A função polinomial G existente entre as eficiências de detecção pode ser definida como:

$$\left(1 - \varepsilon_{\beta Cs7}\right) / \varepsilon_{\beta Cs7} = G \left( \left(1 - \varepsilon_{\beta Cs4}\right) / \varepsilon_{\beta Cs4} \right) \quad (3.17)$$

Reescrevendo a função, envolvendo apenas as taxas  $\beta$ - $\gamma$  observadas e as taxas de coincidência:

$$\frac{N_{\beta (Cs7+Cs4)} N_{\gamma Cs4}}{N_{cCs4}} - N_{0Cs4} = N_{0Cs7} \left[ 1 + C + G' \left( \left( \frac{1 - N_{cCs4}}{N_{\gamma Cs4}} \right) / \left( \frac{N_{cCs4}}{N_{\gamma Cs4}} \right) \right) \right] \quad (3.18)$$

O termo C expressa a contribuição dos elétrons de conversão contados no detector  $\beta$  com eficiência  $\varepsilon_{\beta}$  e das radiações gama não convertidas contados com eficiência  $\varepsilon_{\beta\gamma}$ :

$$C = \frac{b}{(1 + \alpha)_{Cs7}} \left( \alpha_p \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma} \right) \quad (3.19)$$

Onde:

b é a probabilidade de emissão beta ao nível meta-estável do  $^{137m}\text{Ba}$ ;

$\varepsilon_{\beta\gamma}$  é a eficiência de detecção gama do  $^{137m}\text{Ba}$  no detector beta;

$\varepsilon_{ec}$  é a eficiência de detecção do elétron de conversão associada ao  $^{137m}\text{Ba}$  no detector beta;

$\alpha_{Cs7}$  é o coeficiente de conversão interna total associado ao  $^{137m}\text{Ba}$ .

Para a padronização das fontes mistas de  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{134}\text{Cs}$ , foram utilizadas as duas técnicas de preparação de fontes anteriormente citadas. Adotou-se o procedimento de medir-se três vezes cada uma das fontes a cada acréscimo de filmes, a fim de se evitar erros sistemáticos de medida, tendo sido todos os resultados utilizados na análise dos dados.

Na confecção das fontes para esta padronização foi utilizada somente a razão 1:1.

Foram preparadas um total de 24 fontes, sendo 6 fontes de traçador ( $^{134}\text{Cs}$ ), 6 fontes de beta puro ( $^{137}\text{Cs}$ ), e 6 fontes de cada técnica com as fontes mistas beta puro e traçador.

O grupo de fontes preparadas pela técnica de solução utilizando o  $^{134}\text{Cs}$  como traçador foi denominado S e o grupo preparado pela técnica de gotas que utilizou o mesmo traçador foi denominado G.

Ao se fazer as medidas das fontes de  $^{137}\text{Cs}$  com o traçador  $^{134}\text{Cs}$ , foi necessário evitar a detecção no canal  $\gamma$  do pico de 661,6 keV do  $^{137}\text{Cs}$ , que se localiza muito próximo ao pico de 604,9 keV do  $^{134}\text{Cs}$  (figura 3.6), aumentando o nível de discriminação. Assim fica assegurado que os eventos associados ao decaimento do  $^{137}\text{Cs}$  não interfiram nesta medida.

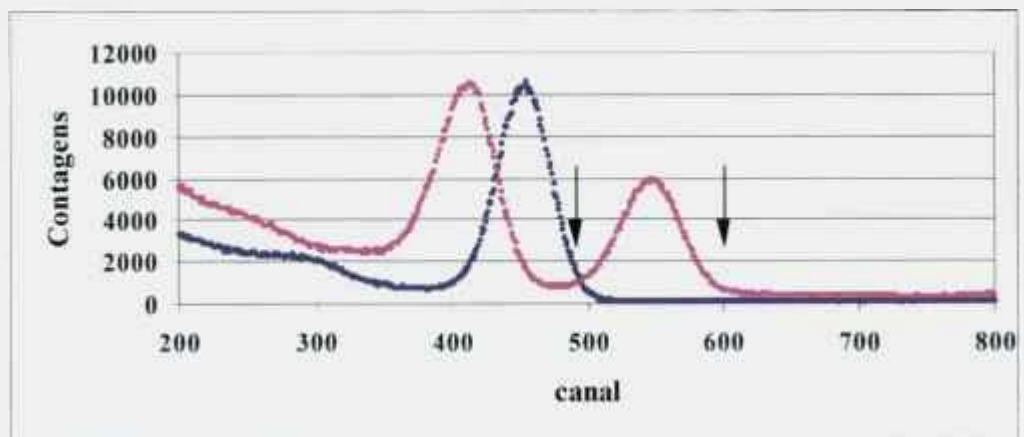


Figura 3.6: Espectro do  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{134}\text{Cs}$  registrado no multicanal

Na figura pode-se notar a proximidade dos espectros mencionados. A curva na cor rosa representa o espectro do  $^{134}\text{Cs}$  e na cor azul o espectro do  $^{137}\text{Cs}$ .

As setas indicam o local do espectro onde foi feita a discriminação da janela gama, a fim de que o  $^{137}\text{Cs}$  não interferisse na medida.

## 4 RESULTADOS E DISCUSSÕES

### 4.1 Padronização do $^{204}\text{Tl}$

Na tabela 4.1 são apresentados os valores de atividade com respectiva eficiência obtidos para o  $^{134}\text{Cs}$ . O valor da atividade obtida considerada foi a média dessas medidas, e a incerteza considerada foi o desvio-padrão. A medida, tanto das fontes mistas como do  $^{134}\text{Cs}$ , foi feita selecionando-se as energias gama de (795,84 + 801,93) keV.

Tabela 4.1: Resultados da padronização do  $^{134}\text{Cs}$

Fonte	Eficiência	Atividade Espec. (kBqg <sup>-1</sup> )	Incerteza (%)
1	0,8561	96,35	0,13
2	0,8551	96,62	0,13
3	0,8541	96,00	0,18
4	0,8536	96,05	0,26
5	0,8368	95,90	0,17
6	0,8319	95,63	0,10
7	0,8280	96,16	0,19
8	0,7892	96,80	0,16
9	0,7704	96,45	0,16
10	0,7699	96,37	0,12
11	0,7679	95,52	0,17
12	0,7635	96,84	0,17
13	0,7584	95,80	0,17
14	0,7408	96,08	0,25
<b>Valor médio</b>		<b>96,18</b>	<b>0,33</b>

Na tabela 4.2 são apresentados os resultados da calibração do  $^{204}\text{Tl}$  com o traçador  $^{134}\text{Cs}$ , bem como os valores das eficiências e ineficiências beta.

Para a determinação do valor  $N_{0\beta}$ , os valores apresentados na tabela 4.2 foram combinados com os valores adicionais obtidos de uma medida anteriormente feita (pontos 37-54) [Dias, 2003], empregando-se a função normalizada:

$$\left( \frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} - N_{0Cs} \right) \frac{1}{N_{0Tl}} \quad (4.1)$$

em função do parâmetro de ineficiência.

A eficiência  $\beta$  foi variada de 82% a 62% utilizando-se absorvedores de Collodion sobre e sob a fonte.

Tabela 4.2: Resultados da padronização do  $^{204}\text{Tl}$  com  $^{134}\text{Cs}$

Medida	$N_c / N_{\gamma}$	$(1 - N_c / N_{\gamma}) / N_c / N_{\gamma}$	$(N_{\beta}N_{\gamma} / N_c)$ $\times 10^5$	$((N_{\beta}N_{\gamma} / N_c) - N_{0tr}) / N_0$
1	0,8195 ± 0,0024	0,2203 ± 0,0036	1,137 ± 0,007	1,160 ± 0,006
2	0,8163 ± 0,0023	0,2251 ± 0,0035	1,140 ± 0,007	1,164 ± 0,006
3	0,8047 ± 0,0023	0,2427 ± 0,0030	1,141 ± 0,007	1,164 ± 0,006
4	0,7860 ± 0,0037	0,2723 ± 0,0061	1,165 ± 0,007	1,189 ± 0,006
5	0,7828 ± 0,0048	0,2775 ± 0,0079	1,172 ± 0,007	1,196 ± 0,006
6	0,7759 ± 0,0049	0,2888 ± 0,0081	1,186 ± 0,007	1,210 ± 0,006
7	0,7976 ± 0,0038	0,2537 ± 0,0060	1,166 ± 0,007	1,190 ± 0,006
8	0,7929 ± 0,0030	0,2613 ± 0,0048	1,171 ± 0,007	1,195 ± 0,006
9	0,7876 ± 0,0029	0,2697 ± 0,0047	1,178 ± 0,007	1,202 ± 0,006
10	0,7774 ± 0,0040	0,2864 ± 0,0066	1,186 ± 0,007	1,211 ± 0,006
11	0,7810 ± 0,0036	0,2804 ± 0,0060	1,198 ± 0,008	1,222 ± 0,006
12	0,7760 ± 0,0039	0,2886 ± 0,0065	1,212 ± 0,008	1,237 ± 0,006
13	0,7751 ± 0,0039	0,2901 ± 0,0065	1,216 ± 0,008	1,241 ± 0,006
14	0,7648 ± 0,0040	0,3075 ± 0,0068	1,216 ± 0,008	1,241 ± 0,006
15	0,7894 ± 0,0037	0,2667 ± 0,0060	1,184 ± 0,007	1,208 ± 0,006
16	0,7940 ± 0,0040	0,2595 ± 0,0056	1,172 ± 0,007	1,196 ± 0,006
17	0,7909 ± 0,0036	0,2644 ± 0,0057	1,177 ± 0,007	1,201 ± 0,006
18	0,7810 ± 0,0039	0,2804 ± 0,0063	1,180 ± 0,007	1,204 ± 0,006
19	0,7745 ± 0,0037	0,2911 ± 0,0061	1,199 ± 0,008	1,223 ± 0,006
20	0,7922 ± 0,0037	0,2623 ± 0,0058	1,183 ± 0,007	1,207 ± 0,006
21	0,7861 ± 0,0026	0,2721 ± 0,0058	1,199 ± 0,008	1,224 ± 0,006
22	0,7689 ± 0,0026	0,3006 ± 0,0058	1,193 ± 0,008	1,218 ± 0,006
23	0,7271 ± 0,0026	0,3754 ± 0,0058	1,233 ± 0,008	1,258 ± 0,006
24	0,6504 ± 0,0020	0,5374 ± 0,0048	1,284 ± 0,008	1,310 ± 0,007
25	0,6252 ± 0,0020	0,5996 ± 0,0052	1,283 ± 0,008	1,309 ± 0,007
26	0,6528 ± 0,0015	0,5318 ± 0,0035	1,281 ± 0,008	1,308 ± 0,007
27	0,7931 ± 0,0025	0,2609 ± 0,0040	1,158 ± 0,007	1,181 ± 0,006
28	0,7924 ± 0,0025	0,2620 ± 0,0040	1,162 ± 0,007	1,186 ± 0,006
29	0,7695 ± 0,0026	0,2996 ± 0,0043	1,185 ± 0,007	1,209 ± 0,006
30	0,7690 ± 0,0026	0,3005 ± 0,0044	1,172 ± 0,007	1,196 ± 0,006
31	0,7599 ± 0,0018	0,3159 ± 0,0031	1,181 ± 0,007	1,205 ± 0,006

Tabela 4.2: Resultados da padronização do  $^{204}\text{Tl}$  com  $^{134}\text{Cs}$  - Continuação

32	$0,7502 \pm 0,0026$	$0,3330 \pm 0,0047$	$1,199 \pm 0,008$	$1,224 \pm 0,006$
33	$0,7574 \pm 0,0027$	$0,3203 \pm 0,0047$	$1,189 \pm 0,007$	$1,213 \pm 0,006$
34	$0,7502 \pm 0,0026$	$0,3330 \pm 0,0047$	$1,201 \pm 0,008$	$1,225 \pm 0,006$
35	$0,7474 \pm 0,0026$	$0,3381 \pm 0,0047$	$1,207 \pm 0,008$	$1,232 \pm 0,002$
36	$0,6949 \pm 0,0021$	$0,4391 \pm 0,0043$	$1,238 \pm 0,008$	$1,263 \pm 0,002$
37	$0,9167 \pm 0,0024$	$0,0909 \pm 0,0036$	$6,579 \pm 0,036$	$1,073 \pm 0,002$
38	$0,9132 \pm 0,0023$	$0,0951 \pm 0,0035$	$6,612 \pm 0,021$	$1,078 \pm 0,002$
39	$0,9104 \pm 0,0023$	$0,0985 \pm 0,0030$	$6,665 \pm 0,023$	$1,087 \pm 0,002$
40	$0,9101 \pm 0,0037$	$0,0988 \pm 0,0061$	$6,661 \pm 0,027$	$1,086 \pm 0,002$
41	$0,9060 \pm 0,0048$	$0,1037 \pm 0,0079$	$6,621 \pm 0,021$	$1,080 \pm 0,002$
42	$0,9059 \pm 0,0049$	$0,1039 \pm 0,0081$	$6,676 \pm 0,027$	$1,089 \pm 0,002$
43	$0,9009 \pm 0,0038$	$0,1099 \pm 0,0060$	$6,728 \pm 0,026$	$1,097 \pm 0,002$
44	$0,8932 \pm 0,0030$	$0,1196 \pm 0,0048$	$6,719 \pm 0,030$	$1,096 \pm 0,002$
45	$0,8845 \pm 0,0029$	$0,1306 \pm 0,0047$	$6,770 \pm 0,028$	$1,104 \pm 0,002$
46	$0,8616 \pm 0,0040$	$0,1607 \pm 0,0066$	$6,968 \pm 0,031$	$1,136 \pm 0,002$
47	$0,8487 \pm 0,0036$	$0,1783 \pm 0,0060$	$7,011 \pm 0,031$	$1,143 \pm 0,002$
48	$0,8395 \pm 0,0039$	$0,1913 \pm 0,0065$	$7,028 \pm 0,027$	$1,146 \pm 0,002$
49	$0,8163 \pm 0,0039$	$0,2250 \pm 0,0065$	$7,202 \pm 0,023$	$1,174 \pm 0,002$
50	$0,8045 \pm 0,0039$	$0,2430 \pm 0,0065$	$7,278 \pm 0,044$	$1,187 \pm 0,002$
51	$0,7719 \pm 0,0040$	$0,2956 \pm 0,0068$	$7,454 \pm 0,042$	$1,215 \pm 0,002$
52	$0,7528 \pm 0,0037$	$0,3285 \pm 0,0060$	$7,532 \pm 0,038$	$1,228 \pm 0,002$
53	$0,7328 \pm 0,0036$	$0,3646 \pm 0,0060$	$7,722 \pm 0,031$	$1,259 \pm 0,003$
54	$0,7154 \pm 0,0040$	$0,3979 \pm 0,0056$	$7,790 \pm 0,031$	$1,270 \pm 0,003$

O valor de  $N_{0\beta\text{Tl-204}}$  foi obtido por meio de um processo iterativo de busca de  $\chi^2$  mínimo [Dias, 2003].

Na figura 4.1 é apresentada a curva de extrapolação onde todos os pontos normalizados foram incluídos. A curva ajustada foi obtida pelo programa LINFIT, tendo ajustado um polinômio de grau 2.

A atividade final foi obtida dividindo-se o valor extrapolado pelas abundâncias dos ramos  $\beta$  e captura eletrônica como descrito na equação 3.4.

Na tabela 4.3 são apresentados os valores das eficiências consideradas para captura eletrônica e elétron Auger para o sistema de coincidências  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  do LMN.

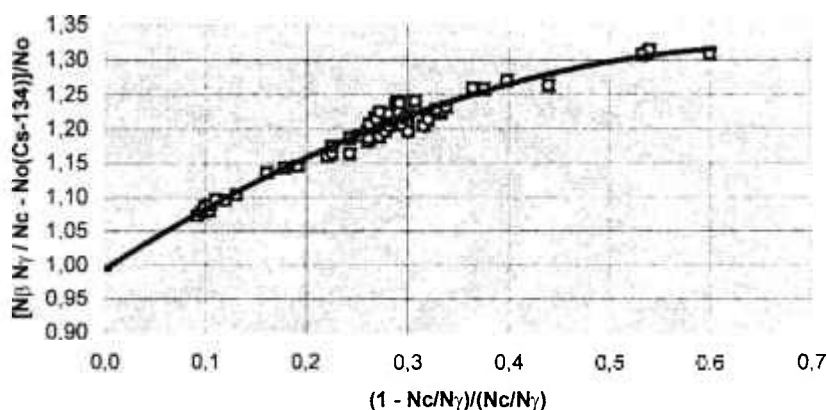


Figura 4.1: Curva de extrapolação da solução de  $^{204}\text{Tl}$  e  $^{134}\text{Cs}$

Tabela 4.3: Eficiências consideradas para o sistema de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  do LMN para captura eletrônica e elétron Auger

Eficiências (Lagoutine, 1983)	Valores
$\epsilon_{ce}$	1 para elétrons Auger K $0,75 \pm 0,25$ para elétrons Auger L
$\epsilon_{AK}$	$0,00065 \pm 0,00008$
$\epsilon_{AL}$	$0,0169 \pm 0,0005$

O fator de correção  $(I_\beta + \epsilon_{ce}I_{ce})$ , descrito na equação 3.6, obtido foi de  $0,9843 + 0,0054$ .

Pela comparação internacional de 1997, o valor extrapolado  $N_{0\beta} = a_{01} = 61,33 \text{ kBq g}^{-1}$ , sendo a função do ajuste:  $y = a_0 + a_1x + a_2x^2$ .

O melhor valor encontrado no método iterativo foi aquele que apresentou ao mesmo tempo menor  $\chi^2$  e valor mais próximo de 1, conforme a tabela 4.4:



Tabela 4.4: Valores utilizados no método iterativo em busca do menor  $\chi^2$ 

$a_{01}(x10^3)$	$a_{02}(x10^5)$	$a_0$	$\chi^2$
61,33	1,0	1,0106 (31)	4,84
<b>61,33</b>	<b>0,985</b>	<b>0,9981 (31)</b>	<b>2,61</b>
61,33	0,975	0,9898 (31)	2,41
61,33	0,980	0,9940 (31)	2,37
61,33	0,978	0,9923 (31)	2,35

O melhor valor encontrado para  $a_{02}$  foi  $0,985 \times 10^5$ .

O valor final da atividade foi de  $(100,07 \pm 0,92)$  kBq g<sup>-1</sup>.

## 4.2 Padronização do <sup>45</sup>Ca

Na tabela 4.5 são apresentados os valores de atividade com respectiva eficiência obtidos para o <sup>60</sup>Co. O valor da atividade obtida considerada foi a média dessas medidas. A medida, seja das fontes mistas como do <sup>60</sup>Co, foi feita selecionando-se as duas energias gama principais.

Tabela 4.5: Resultados da padronização do <sup>60</sup>Co

Fonte	Eficiência	Atividade Espec. (kBq/g)	Incerteza (%)
1	0,92277	204,74	0,16
2	0,92344	204,59	0,16
3	0,91715	205,15	0,17
4	0,91117	204,55	0,13
5	0,92320	204,25	0,12
<b>Valor médio</b>		<b>204,66</b>	<b>0,07</b>

A atividade do traçador foi obtida pela média de cinco fontes.

As eficiências foram variadas de 89% a 75% para o grupo S1, conforme a tabela 4.6, de 91% a 82% para o grupo S2, conforme tabela 4.7 e 90% a 77% para o grupo G1, conforme a tabela 4.8, utilizando-se absorvedores de Collodion.

Tabela 4.6: Resultados da padronização do  $^{45}\text{Ca}$  com  $^{60}\text{Co}$ - S1

Medida	$N_c/N_\gamma$	$(1 - N_c/N_\gamma) / (N_c/N_\gamma)$	$(N_\beta N_\gamma / N_c) \times 10^3$ (cps)
1	$0,8690 \pm 0,0013$	$0,1507 \pm 0,0017$	$155,76 \pm 0,56$
2	$0,8696 \pm 0,0010$	$0,1500 \pm 0,0013$	$154,46 \pm 0,52$
3	$0,8926 \pm 0,0005$	$0,1203 \pm 0,0006$	$152,69 \pm 0,50$
4	$0,8434 \pm 0,0005$	$0,1857 \pm 0,0008$	$151,51 \pm 0,50$
5	$0,8358 \pm 0,0007$	$0,1964 \pm 0,0011$	$149,68 \pm 0,51$
6	$0,8241 \pm 0,0005$	$0,2134 \pm 0,0008$	$150,49 \pm 0,50$
7	$0,8020 \pm 0,0008$	$0,2469 \pm 0,0013$	$149,72 \pm 0,51$
8	$0,7990 \pm 0,0008$	$0,2516 \pm 0,0013$	$150,04 \pm 0,51$
9	$0,7489 \pm 0,0009$	$0,3353 \pm 0,0016$	$147,98 \pm 0,50$
10	$0,7544 \pm 0,0009$	$0,3256 \pm 0,0015$	$145,77 \pm 0,50$

Tabela 4.7: Resultados da padronização do  $^{45}\text{Ca}$  com  $^{60}\text{Co}$ - S2

Medida	$N_c/N_\gamma$	$(1 - N_c/N_\gamma) / (N_c/N_\gamma)$	$(N_\beta N_\gamma / N_c) \times 10^3$ (cps)
1	$0,9096 \pm 0,0008$	$0,0994 \pm 0,0009$	$159,54 \pm 0,53$
2	$0,9137 \pm 0,0008$	$0,0945 \pm 0,0009$	$161,20 \pm 0,53$
3	$0,8873 \pm 0,0007$	$0,1270 \pm 0,0009$	$155,86 \pm 0,51$
4	$0,8987 \pm 0,0006$	$0,1127 \pm 0,0007$	$157,18 \pm 0,52$
5	$0,8922 \pm 0,0008$	$0,1208 \pm 0,0010$	$154,56 \pm 0,53$
6	$0,8763 \pm 0,0005$	$0,1411 \pm 0,0007$	$155,90 \pm 0,51$
7	$0,8670 \pm 0,0009$	$0,1534 \pm 0,0012$	$154,39 \pm 0,52$
8	$0,8341 \pm 0,0009$	$0,1989 \pm 0,0014$	$156,46 \pm 0,53$
9	$0,8233 \pm 0,0010$	$0,2146 \pm 0,0014$	$156,86 \pm 0,55$
10	$0,8330 \pm 0,0010$	$0,2005 \pm 0,0014$	$154,82 \pm 0,53$

Tabela 4.8: Resultados da padronização do  $^{45}\text{Ca}$  com  $^{60}\text{Co}$ - Gotas 1

Medida	$N_c/N_\gamma$	$(1 - N_c/N_\gamma) / (N_c/N_\gamma)$	$(N_\beta N_\gamma / N_c) \times 10^3$ (cps/g)
1	$0,8857 \pm 0,0007$	$0,1291 \pm 0,6632$	$147,39 \pm 0,49$
2	$0,8560 \pm 0,0005$	$0,1682 \pm 0,4277$	$144,74 \pm 0,48$
3	$0,8321 \pm 0,0008$	$0,2018 \pm 0,5697$	$144,45 \pm 0,49$
4	$0,8006 \pm 0,0008$	$0,2491 \pm 0,5241$	$143,75 \pm 0,49$
5	$0,7910 \pm 0,0008$	$0,2643 \pm 0,5128$	$145,15 \pm 0,49$
6	$0,7724 \pm 0,0006$	$0,2947 \pm 0,3560$	$142,45 \pm 0,48$
7	$0,8965 \pm 0,0009$	$0,1154 \pm 0,9245$	$156,25 \pm 0,53$
8	$0,8954 \pm 0,0006$	$0,1168 \pm 0,6484$	$155,14 \pm 0,53$

Com esses dados foram construídas as curvas apresentadas nas figuras 4.2, 4.3 e 4.4. O ajuste das curvas foi obtido a partir do programa LINFIT (Dias, 1999), que, utilizando o método dos mínimos quadrados, fornece a matriz de covariância dos parâmetros de ajuste, apresentados nas tabelas 4.9, 4.10 e 4.11.

Tabela 4.9: Parâmetros e matriz de covariância relativos à curva do S1- $^{45}\text{Ca}$ 

Parâmetro	Valor obtido	Incerteza	Matriz de Covariância	
A	158,35	0,54	288,81	
B	-34,89	2,33	-1195,92	5443,28

Tabela 4.10: Parâmetros e matriz de covariância relativos à curva do S2- $^{45}\text{Ca}$ 

Parâmetro	Valor obtido	Incerteza	Matriz de Covariância	
A	158,97	0,57	322,10	
B	-16,39	3,86	-2096,63	14930,90

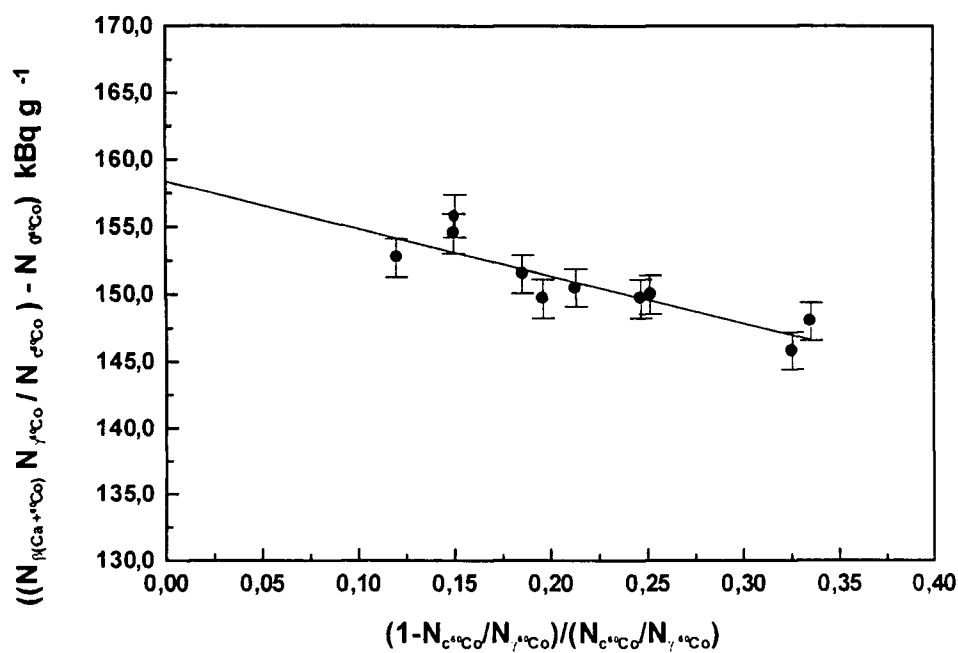
Tabela 4.11: Parâmetros e matriz de covariância relativos à curva do G1-<sup>45</sup>Ca

Parâmetro	Valor obtido	Incerteza	Matriz de Covariância
A	158,16	0,55	302,01
B	-56,68	2,67	-1389,70      7121,69

Os resultados da padronização estão na tabela 4.12:

Tabela 4.12: Resultados da padronização do <sup>45</sup>Ca

Técnica	Atividade (kBq/g)
S1	158,3 ± 1,5
S2	159,0 ± 2,3
G1	158,2 ± 2,4

Figura 4.2: Curva de extrapolação da solução de <sup>45</sup>Ca e <sup>60</sup>Co -S1

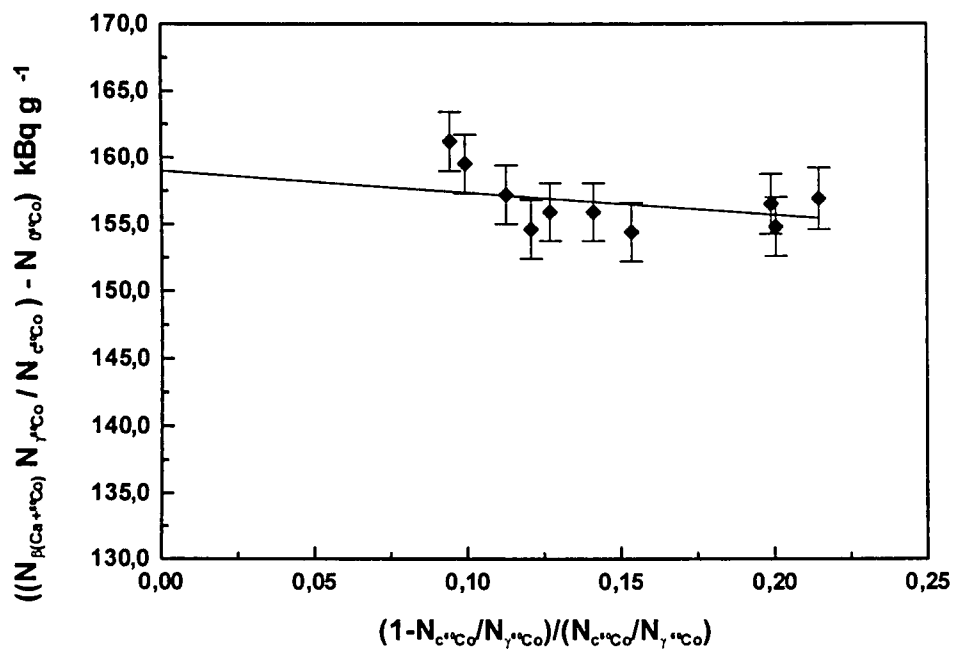


Figura 4.3: Curva de extrapolação da solução de  $^{45}\text{Ca}$  e  $^{60}\text{Co}$  S2

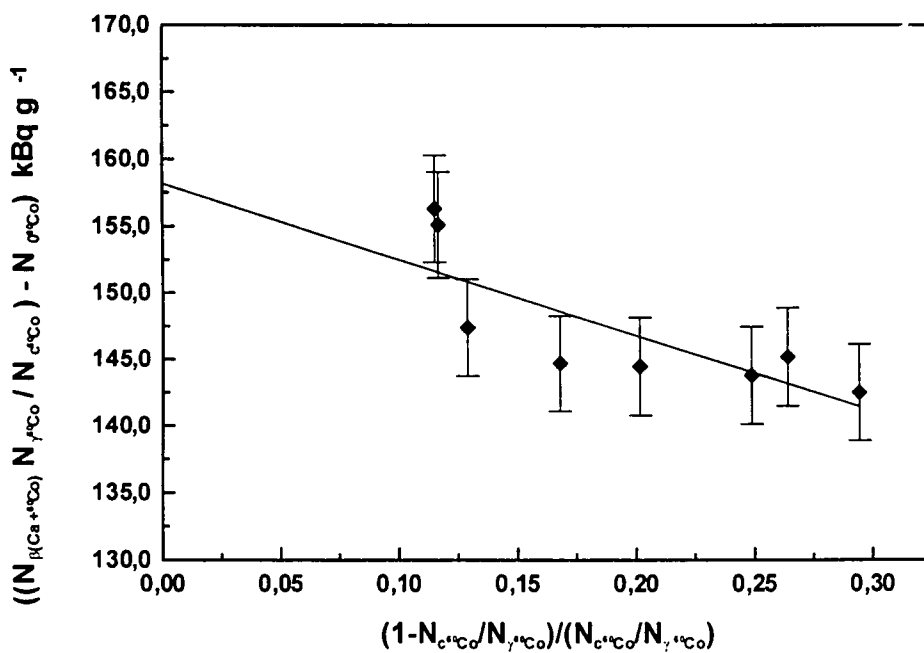


Figura 4.4: Curva de extrapolação da solução de  $^{45}\text{Ca}$  e  $^{60}\text{Co}$  - Gotas 1

A atividade das duas soluções mistas de  $^{45}\text{Ca}$  foi concordante dentro da incerteza experimental, o que demonstra que a variação da proporção de traçador para emissor beta puro não é relevante.

Do mesmo modo os resultados obtidos com as fontes preparadas pela técnica de gotas são concordantes com os resultados das duas soluções mistas.

O resultado demonstra a validade dos dois métodos adotados.

### 4.3 Padronização do $^{137}\text{Cs}$

Na tabela 4.13 são apresentados os valores de atividade com respectiva eficiência obtidos para o traçador  $^{134}\text{Cs}$ . O valor da atividade obtida considerada foi a média dessas medidas. A medida, seja das fontes mistas como do  $^{134}\text{Cs}$ , foi feita selecionando-se as energias gama na faixa de (795,84 + 801,93) keV.

A atividade do traçador, obtida pela média de seis fontes, foi de  $(61,45 \pm 0,13)$  kBq g<sup>-1</sup>.

Como não houve alteração significativa nos resultados da padronização do  $^{45}\text{Ca}$  utilizando-se diferentes proporções de beta puro e traçador, na padronização do  $^{137}\text{Cs}$  foi utilizada somente a razão 1:1.

Tabela 4.13 : Resultados da padronização do  $^{134}\text{Cs}$

Fonte	Eficiência	Atividade espec. (kBq g <sup>-1</sup> )	Incerteza (%)
1	0.83964	61,09	0,13
2	0.86850	61,55	0,13
3	0.88052	61,37	0,17
4	0.86298	61,47	0,23
5	0.85665	61,56	0,18
6	0.83469	61,66	0,24
<b>Valor médio</b>		<b>61,45</b>	<b>0,13</b>

Para a padronização do  $^{137}\text{Cs}$  com traçador de  $^{134}\text{Cs}$  foram medidas as fontes de tipo G e S. Os resultados das padronizações estão apresentados nas tabelas 4.14 e 4.15.

Tabela 4.14: Resultados da padronização do  $^{137}\text{Cs}$  com  $^{134}\text{Cs}$ - Gotas (G)

Medida	$N_c/N_\gamma$	$(1 - N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$(N_\beta N_\gamma/N_c)$ (cps)
1	$0,8218 \pm 0,0012$	$0,2168 \pm 0,0018$	$183,95 \pm 0,42$
2	$0,8228 \pm 0,0012$	$0,2153 \pm 0,0018$	$184,39 \pm 0,42$
3	$0,8161 \pm 0,0012$	$0,2254 \pm 0,0018$	$187,01 \pm 0,43$
4	$0,8303 \pm 0,0013$	$0,2044 \pm 0,0019$	$185,03 \pm 0,43$
5	$0,8280 \pm 0,0013$	$0,2078 \pm 0,0019$	$185,63 \pm 0,43$
6	$0,8300 \pm 0,0013$	$0,2048 \pm 0,0019$	$184,02 \pm 0,42$
7	$0,7905 \pm 0,0013$	$0,2650 \pm 0,0021$	$190,19 \pm 0,44$
8	$0,7906 \pm 0,0013$	$0,2649 \pm 0,0021$	$190,17 \pm 0,44$
9	$0,7931 \pm 0,0009$	$0,2608 \pm 0,0015$	$188,50 \pm 0,40$
10	$0,7887 \pm 0,0013$	$0,2678 \pm 0,0021$	$190,01 \pm 0,46$
11	$0,8195 \pm 0,0009$	$0,2202 \pm 0,0014$	$187,63 \pm 0,37$
12	$0,8126 \pm 0,0019$	$0,2306 \pm 0,0029$	$185,22 \pm 0,56$
13	$0,8155 \pm 0,0019$	$0,2262 \pm 0,0029$	$184,08 \pm 0,55$
14	$0,8103 \pm 0,0019$	$0,2341 \pm 0,0029$	$186,04 \pm 0,56$
15	$0,8086 \pm 0,0020$	$0,2367 \pm 0,0030$	$185,97 \pm 0,56$
16	$0,8098 \pm 0,0020$	$0,2348 \pm 0,0030$	$184,87 \pm 0,55$
17	$0,8092 \pm 0,0020$	$0,2358 \pm 0,0030$	$185,39 \pm 0,56$
18	$0,8055 \pm 0,002$	$0,2415 \pm 0,0031$	$184,94 \pm 0,55$
19	$0,8042 \pm 0,0020$	$0,2435 \pm 0,0031$	$185,68 \pm 0,56$
20	$0,7749 \pm 0,0021$	$0,2904 \pm 0,0036$	$189,12 \pm 0,62$
21	$0,7739 \pm 0,0021$	$0,2922 \pm 0,0036$	$189,95 \pm 0,63$
22	$0,7776 \pm 0,0021$	$0,2860 \pm 0,0035$	$187,61 \pm 0,60$
23	$0,8290 \pm 0,0012$	$0,2063 \pm 0,0017$	$180,20 \pm 0,40$
24	$0,8194 \pm 0,0022$	$0,2204 \pm 0,0003$	$183,62 \pm 0,59$
25	$0,8089 \pm 0,0022$	$0,2362 \pm 0,0003$	$184,81 \pm 0,59$
26	$0,8064 \pm 0,0022$	$0,2400 \pm 0,0003$	$186,02 \pm 0,59$
27	$0,7953 \pm 0,0011$	$0,2573 \pm 0,0018$	$187,71 \pm 0,41$
28	$0,7967 \pm 0,0022$	$0,2552 \pm 0,0035$	$187,74 \pm 0,62$

Tabela 4.14: Resultados da padronização do  $^{137}\text{Cs}$  com  $^{134}\text{Cs}$ - Gotas (G)-Continuação

29	$0,7999 \pm 0,0022$	$0,2501 \pm 0,0034$	$186,34 \pm 0,61$
30	$0,7920 \pm 0,0022$	$0,2626 \pm 0,0036$	$188,03 \pm 0,62$
31	$0,7920 \pm 0,0023$	$0,2626 \pm 0,0036$	$187,92 \pm 0,62$
32	$0,7899 \pm 0,0023$	$0,2660 \pm 0,0036$	$188,62 \pm 0,64$
33	$0,7834 \pm 0,0019$	$0,2765 \pm 0,0031$	$189,76 \pm 0,55$
34	$0,7634 \pm 0,0018$	$0,3100 \pm 0,0031$	$192,73 \pm 0,56$
35	$0,7542 \pm 0,0016$	$0,3260 \pm 0,0027$	$192,90 \pm 0,52$
36	$0,7311 \pm 0,0019$	$0,3677 \pm 0,0036$	$195,63 \pm 0,63$
37	$0,7245 \pm 0,0020$	$0,3802 \pm 0,0038$	$195,77 \pm 0,63$
38	$0,6414 \pm 0,0020$	$0,5590 \pm 0,0049$	$206,62 \pm 0,72$
39	$0,6217 \pm 0,0021$	$0,6086 \pm 0,0054$	$204,13 \pm 0,75$
40	$0,7110 \pm 0,0020$	$0,4066 \pm 0,0039$	$197,71 \pm 0,65$
41	$0,6985 \pm 0,0017$	$0,4316 \pm 0,0036$	$200,72 \pm 0,60$
42	$0,6852 \pm 0,0020$	$0,4595 \pm 0,0042$	$204,21 \pm 0,69$
43	$0,6295 \pm 0,0021$	$0,5886 \pm 0,0053$	$206,72 \pm 0,76$
44	$0,6010 \pm 0,0022$	$0,6640 \pm 0,0061$	$208,48 \pm 0,83$
45	$0,6763 \pm 0,0021$	$0,4786 \pm 0,0046$	$207,11 \pm 0,72$
46	$0,6779 \pm 0,0021$	$0,4752 \pm 0,0047$	$205,52 \pm 0,74$
47	$0,6190 \pm 0,0017$	$0,6155 \pm 0,0045$	$211,46 \pm 0,70$
48	$0,5986 \pm 0,0018$	$0,6706 \pm 0,0050$	$209,38 \pm 0,71$
49	$0,5721 \pm 0,0021$	$0,7478 \pm 0,0065$	$211,22 \pm 0,87$
50	$0,6754 \pm 0,0021$	$0,4806 \pm 0,0045$	$203,60 \pm 0,71$



Tabela 4.15: Resultados da padronização do  $^{137}\text{Cs}$  com  $^{134}\text{Cs}$ - Solução (S)

Medida	$N_c/N_\gamma$	$(1 - N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$(N_\beta N_\gamma/N_c)$ (cps)
1	$0,7812 \pm 0,0025$	$0,2801 \pm 0,0041$	$187,79 \pm 0,72$
2	$0,7640 \pm 0,0026$	$0,3088 \pm 0,0044$	$193,04 \pm 0,66$
3	$0,7707 \pm 0,0018$	$0,2975 \pm 0,0031$	$191,32 \pm 0,46$
4	$0,7730 \pm 0,0018$	$0,2936 \pm 0,0030$	$190,29 \pm 0,46$
5	$0,7720 \pm 0,0025$	$0,2953 \pm 0,0041$	$189,45 \pm 0,61$
6	$0,7713 \pm 0,0025$	$0,2966 \pm 0,0041$	$189,62 \pm 0,61$
7	$0,7755 \pm 0,0024$	$0,2895 \pm 0,0041$	$188,32 \pm 0,60$
8	$0,7731 \pm 0,0039$	$0,2934 \pm 0,0065$	$191,73 \pm 0,98$
9	$0,7768 \pm 0,0038$	$0,2873 \pm 0,0064$	$189,70 \pm 0,95$
10	$0,7851 \pm 0,0037$	$0,2738 \pm 0,0060$	$187,44 \pm 0,90$
11	$0,7661 \pm 0,5012$	$0,3053 \pm 0,0065$	$190,88 \pm 0,97$
12	$0,7688 \pm 0,5002$	$0,3008 \pm 0,0065$	$190,07 \pm 0,95$
13	$0,7903 \pm 0,0049$	$0,2653 \pm 0,0078$	$185,96 \pm 1,15$
14	$0,7877 \pm 0,0049$	$0,2696 \pm 0,0079$	$186,81 \pm 1,18$
15	$0,7916 \pm 0,0049$	$0,2633 \pm 0,0079$	$185,83 \pm 1,17$
16	$0,7681 \pm 0,0038$	$0,3018 \pm 0,0064$	$190,04 \pm 0,95$
17	$0,7727 \pm 0,0023$	$0,2941 \pm 0,0038$	$188,55 \pm 0,57$
18	$0,7477 \pm 0,0038$	$0,3374 \pm 0,0068$	$193,30 \pm 1,00$
19	$0,7463 \pm 0,0038$	$0,3399 \pm 0,0069$	$193,65 \pm 1,01$
20	$0,7476 \pm 0,0038$	$0,3377 \pm 0,0068$	$193,20 \pm 1,00$
21	$0,7301 \pm 0,0039$	$0,3696 \pm 0,0073$	$196,31 \pm 1,06$
22	$0,7293 \pm 0,0038$	$0,3712 \pm 0,0072$	$196,15 \pm 1,04$
23	$0,7340 \pm 0,0039$	$0,3625 \pm 0,0072$	$194,79 \pm 1,03$
24	$0,7212 \pm 0,0021$	$0,3866 \pm 0,0040$	$197,24 \pm 0,57$
25	$0,7220 \pm 0,0039$	$0,3850 \pm 0,0074$	$197,19 \pm 1,06$
26	$0,7270 \pm 0,0039$	$0,3755 \pm 0,0073$	$195,57 \pm 1,06$
27	$0,7138 \pm 0,0040$	$0,4010 \pm 0,0078$	$197,75 \pm 1,11$

Tabela 4.15: Resultados da padronização do  $^{137}\text{Cs}$  com  $^{134}\text{Cs}$ - Solução (S) - Continuação

28	$0,7142 \pm 0,0040$	$0,4002 \pm 0,0078$	$197,90 \pm 1,11$
29	$0,7125 \pm 0,0040$	$0,4034 \pm 0,0078$	$198,79 \pm 1,11$
30	$0,7105 \pm 0,0041$	$0,4075 \pm 0,0081$	$197,98 \pm 1,15$
31	$0,7096 \pm 0,0041$	$0,4093 \pm 0,0081$	$198,57 \pm 1,15$
32	$0,7058 \pm 0,0041$	$0,4169 \pm 0,0083$	$199,45 \pm 1,18$
33	$0,6993 \pm 0,0040$	$0,4300 \pm 0,0082$	$199,78 \pm 1,16$
34	$0,6970 \pm 0,0040$	$0,4347 \pm 0,0083$	$200,54 \pm 1,16$
35	$0,6996 \pm 0,0021$	$0,4294 \pm 0,0043$	$199,62 \pm 0,60$
36	$0,6539 \pm 0,0041$	$0,5292 \pm 0,0095$	$203,21 \pm 1,28$
37	$0,6682 \pm 0,0040$	$0,4967 \pm 0,0090$	$199,64 \pm 1,22$
38	$0,6592 \pm 0,0041$	$0,5170 \pm 0,0093$	$201,64 \pm 1,25$
39	$0,6502 \pm 0,0041$	$0,5380 \pm 0,0096$	$204,91 \pm 1,29$
40	$0,6363 \pm 0,0047$	$0,5717 \pm 0,0116$	$203,52 \pm 1,51$
41	$0,6319 \pm 0,0046$	$0,5826 \pm 0,0116$	$205,50 \pm 1,52$
42	$0,6961 \pm 0,0041$	$0,4366 \pm 0,0084$	$198,27 \pm 1,17$
43	$0,6903 \pm 0,0025$	$0,4486 \pm 0,0052$	$200,34 \pm 0,72$
44	$0,6893 \pm 0,0025$	$0,4508 \pm 0,0052$	$200,90 \pm 0,72$
45	$0,6892 \pm 0,0041$	$0,4510 \pm 0,0086$	$198,90 \pm 0,12$
46	$0,6761 \pm 0,0041$	$0,4790 \pm 0,0090$	$203,57 \pm 1,24$
47	$0,6844 \pm 0,0042$	$0,4612 \pm 0,0089$	$200,46 \pm 1,22$
48	$0,6711 \pm 0,0030$	$0,4900 \pm 0,0067$	$203,10 \pm 0,93$
49	$0,6723 \pm 0,0042$	$0,4874 \pm 0,0093$	$202,86 \pm 1,28$
50	$0,6734 \pm 0,0042$	$0,4851 \pm 0,0093$	$202,23 \pm 1,27$
51	$0,6192 \pm 0,0043$	$0,6149 \pm 0,0111$	$207,52 \pm 1,43$
52	$0,6184 \pm 0,0044$	$0,6171 \pm 0,0115$	$208,03 \pm 1,48$
53	$0,6113 \pm 0,0044$	$0,6357 \pm 0,0117$	$210,70 \pm 1,52$
54	$0,5888 \pm 0,0043$	$0,6985 \pm 0,0125$	$211,11 \pm 1,56$
55	$0,5996 \pm 0,0043$	$0,6677 \pm 0,0120$	$206,55 \pm 1,49$
56	$0,5936 \pm 0,0043$	$0,6847 \pm 0,0122$	$209,38 \pm 1,53$

Tabela 4.15: Resultados da padronização do  $^{137}\text{Cs}$  com  $^{134}\text{Cs}$ - Solução (S)- Continuação

57	$0,6611 \pm 0,0030$	$0,5127 \pm 0,0069$	$205,22 \pm 0,94$
58	$0,6586 \pm 0,0043$	$0,5185 \pm 0,0100$	$205,52 \pm 1,36$
59	$0,6568 \pm 0,0044$	$0,5226 \pm 0,0102$	$202,90 \pm 1,38$
60	$0,6220 \pm 0,0044$	$0,6077 \pm 0,0114$	$205,76 \pm 1,46$
61	$0,6156 \pm 0,0044$	$0,6245 \pm 0,0117$	$208,21 \pm 1,52$
62	$0,6131 \pm 0,0044$	$0,6312 \pm 0,0118$	$209,37 \pm 1,53$
63	$0,5892 \pm 0,0043$	$0,6972 \pm 0,0123$	$209,44 \pm 1,53$
64	$0,5927 \pm 0,0043$	$0,6871 \pm 0,0122$	$206,58 \pm 1,51$
65	$0,5886 \pm 0,0043$	$0,6990 \pm 0,0124$	$208,30 \pm 1,52$
66	$0,6401 \pm 0,0042$	$0,5623 \pm 0,0103$	$207,23 \pm 1,37$
67	$0,6419 \pm 0,0042$	$0,5579 \pm 0,0102$	$206,76 \pm 1,36$
68	$0,6508 \pm 0,0042$	$0,5367 \pm 0,010$	$203,30 \pm 1,34$
69	$0,6017 \pm 0,0043$	$0,6618 \pm 0,0119$	$209,96 \pm 1,51$
70	$0,6042 \pm 0,0043$	$0,6550 \pm 0,0118$	$209,00 \pm 1,48$
71	$0,5932 \pm 0,0043$	$0,6858 \pm 0,0122$	$206,06 \pm 1,50$
72	$0,5904 \pm 0,0043$	$0,6937 \pm 0,0123$	$207,40 \pm 1,51$
73	$0,5856 \pm 0,0043$	$0,7076 \pm 0,0125$	$209,49 \pm 1,55$
74	$0,5748 \pm 0,0043$	$0,7397 \pm 0,0131$	$210,51 \pm 1,60$
75	$0,5649 \pm 0,0044$	$0,7701 \pm 0,0137$	$209,78 \pm 1,64$
76	$0,5709 \pm 0,0032$	$0,7517 \pm 0,0098$	$209,29 \pm 1,17$
77	$0,5526 \pm 0,0044$	$0,8296 \pm 0,0146$	$207,96 \pm 1,64$
78	$0,5443 \pm 0,0043$	$0,8372 \pm 0,0147$	$212,28 \pm 1,70$
79	$0,5519 \pm 0,0043$	$0,8120 \pm 0,0142$	$208,24 \pm 1,64$
80	$0,5286 \pm 0,0043$	$0,8918 \pm 0,0154$	$212,42 \pm 1,74$
81	$0,5314 \pm 0,0043$	$0,8817 \pm 0,0152$	$210,82 \pm 1,71$
82	$0,5314 \pm 0,0043$	$0,8817 \pm 0,0152$	$210,81 \pm 1,71$

Nas figuras 4.5 e 4.6 são apresentadas as curvas de extrapolação obtidas a partir destes dados. A eficiência foi variada de 83% a 57% no caso do método direto e de 79% a 53% para o método de mistura.

O ajuste das curvas foi obtido a partir do programa LINFIT (Dias, 1999), que, utilizando o método dos mínimos quadrados, fornece a matriz de covariância dos parâmetros de ajuste, apresentados nas tabelas 4.16 e 4.17.

Os resultados finais da extrapolação do  $^{137}\text{Cs}$  estão na tabela 4.18.

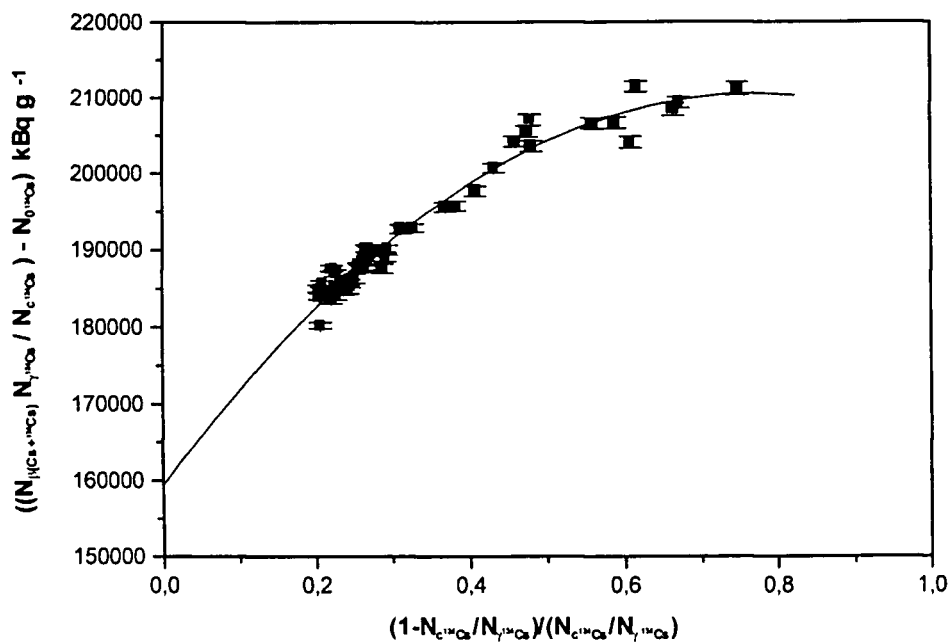


Figura 4.5: Curva de extrapolação da solução de  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{134}\text{Cs}$  - G

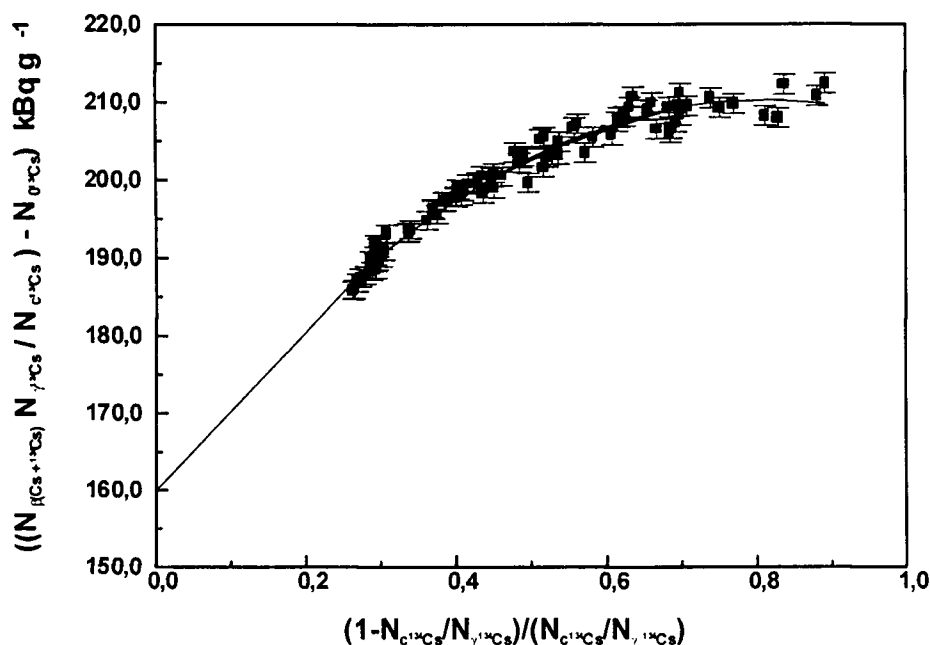


Figura 4.6: Curva de extrapolação da solução de  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{134}\text{Cs}$  - S

Tabela 4.16: Parâmetros e matriz de covariância relativos à curva do  $^{137}\text{Cs}$  com  $^{134}\text{Cs}$ : Gotas (G)

Parâmetro	Valor obtido	Incerteza	Matriz de Covariância		
A	161,31	0,65	417,63		
B	122,42	3,40	-1929,07	11575,80	
C	-75,39	4,13	2304,64	-13864,30	17093,50

Tabela 4.17: Parâmetros e matriz de covariância relativos à curva do  $^{137}\text{Cs}$  com  $^{134}\text{Cs}$ : Solução (S)

Parâmetro	Valor obtido	Incerteza	Matriz de Covariância		
A	159,03	1,11	1232,67		
B	128,47	4,67	-4906,40	21801,10	
C	-80,84	4,56	4644,05	-21019,10	20833,90

Tabela 4.18: Resultados da padronização do  $^{137}\text{Cs}$ 

<b>Técnica</b>	<b>Valor extrapolado</b>
G	$161,3 \pm 2,6$
S	$159,0 \pm 1,1$
<b>Média</b>	<b><math>159,4 \pm 1,0</math></b>

Os valores apresentados nesta tabela apresentam o resultado do valor extrapolado do ajuste polinomial obtido para as duas curvas, que tem o valor  $N_0(1+C)$ .

Para a obtenção da taxa de desintegração, o valor extrapolado foi dividido por  $(1+C)$ .

Os valores dos parâmetros da literatura utilizados para o cálculo do fator C (equação 3.14) estão apresentados na tabela 4.19.

Tabela 4.19: Valores de  $b$ ,  $\alpha_t$  e  $\epsilon_{\beta\gamma}$  da literatura

	<b>Parâmetros</b>	<b>Valores</b>
Rytz (1985)	$b$ (grupo $\beta^-$ para o $^{137m}\text{Ba}$ )	$0.9461 \pm 0.0023$
Lagoutine (1984)	$\alpha_t$ (do $^{137m}\text{Ba}$ )	$0.1097 \pm 0.0010$
Moura (1969)	$\epsilon_{\beta\gamma}$ (para raios $\gamma$ de 661,6 keV)	$0.0025 \pm 0.0002$
	$\epsilon_{\alpha\beta}$	I

Através desses parâmetros foi calculado o fator C, cujo valor é  $0.0957 \pm 0.0007$ .

O valor da atividade final do  $^{137}\text{Cs}$  foi calculado a partir da média dos valores obtidos entre as duas técnicas de preparação de fontes:  $(145,6 \pm 1,4) \text{ kBq g}^{-1}$ .

Como esperado, os resultados obtidos para os dois modos de preparação de fontes foram concordantes dentro da incerteza experimental.

## 5. CONCLUSÕES

No presente trabalho, foram padronizados os radionuclídeos  $^{45}\text{Ca}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{204}\text{Tl}$  pelo método do traçador no sistema de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  conforme objetivo proposto.

O uso das duas técnicas de preparação de fontes tanto para a medida da atividade da solução de  $^{45}\text{Ca}$  como para a da solução de  $^{137}\text{Cs}$  apresentaram resultados concordantes, mostrando sua validade.

Podemos ressaltar no entanto a vantagem do uso da técnica de gotas devido à sua simplicidade, uma vez que não requer a preparação de uma solução mista, além do fato de necessitar menor quantidade de solução, seja do traçador, seja do emissor beta puro.

Observamos também que a proporção utilizada das soluções de traçador e de emissor beta puro no preparo das soluções mistas não é importante. Os resultados das padronizações do  $^{45}\text{Ca}$ , em que as proporções foram variadas, não sofreram modificações relacionadas a este aspecto.

Para trabalhos futuros, sugere-se a aplicação da metodologia, recentemente desenvolvida no laboratório de metrologia nuclear (LMN), do IPEN, de simulação do processo de detecção do sistema de coincidências pelo cálculo de Monte Carlo.

Esta simulação prediz o comportamento da curva de extrapolação, podendo ser utilizada como ferramenta auxiliar, principalmente para definir a região de alta eficiência, dificilmente alcançada com os dados experimentais.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- BAERG, A.P., MEGHIR, S. AND BOWES, G.C. (1963) Extension of the Efficiency Tracing Method for the Calibration of Pure  $\beta$ -Emitters. **Int.J.Appl.Radiat.Isot.** 15, 279.
- BAERG. A.P., (1966) Measurement of radioactive desintegration rate by the coincidence method. **Metrologia**, 2 (1) 23-32.
- BAERG. A.P., (1967) Absolute Measurement of Radioactivity. **Metrologia**, 3 (4) 105-108.
- BAERG, A.P., (1973) The efficiency extrapolation method in coincidence counting. **Nuclear Instruments and Methods**, 112, 143-150.
- CAMPION, P.J., (1975) Procedures for accurately diluting and dispersing radioactive solutions. Bureau Internacional de Poids et Mesures. (Monografie BIPM-1.
- CAMPION, P.J., (1959) The standardization of radioisotopes by the beta-gamma coincidence methods using high efficiency detectors. **Int.J.Appl.Radiat.Isot.** 4, 232-248.
- CAMPION, P.J., (1960) The efficiency tracing technique for eliminating self-absorption errors in  $4\pi\beta$ -counting. **Int.J.Appl.Radiat.Isot.**,8, 8-19.
- COX, D.R.; ISHAM, V. (1977) A bivariate point process connected with electronic counters. **Proc. Roy. Soc. A**, 356, 149-160.
- DIAS, M.S., KOSKINAS, M.F. (2003) Standardization of a  $^{204}\text{Tl}$  radioactive solution. **Applied Radiation and Isotopes**, 58, 235-238.
- DIAS, M.S., (2001) CONTACT: relatório interno - LMN (IPEN) - não publicado
- DIAS, M.S., (2004) CONTACT1: relatório interno - LMN (IPEN) - não publicado
- DIAS, M.S., (1999) LINFIT: relatório interno - LMN (IPEN) - não publicado



FRIEDLANDER, G. AND KENNEDY, J.W. (1981) Nuclear and Radiochemistry. Third Edition. John Wiley & Sons, Inc.

INTERNATIONAL COMMISSION IN RADIOACTIVITY MEASUREMENTS – Particle Counting in Radioactivity Measurements. (1994) ICRU REPORT 52

KNOLL, G.F.(2000) Radiation detection and measurement. Third Edition. John Wiley & Sons, Inc.

LAGOUTINE, F., LAGOUTINE, N. AND LEGRAND, J. (1984). **Table of Radionucléides**. Laboratoire de Métrologie des Rayonnements Ionisants. Bureau National de Métrologie.

LAVRAS, W.O. (2002) Desenvolvimento de métodos de medida de atividade de radionuclédeos utilizados em medicina nuclear – aplicação na padronização do  $^{51}\text{Cr}$  e  $^{153}\text{Sm}$ . **Dissertação (mestrado)** – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.

MOURA, L.P. (1969) Método de coincidência generalizado para a medida absoluta da atividade de radionuclédeos – aplicação na determinação do coeficiente de conversão interna de 279 Kev do  $^{203}\text{Tl}$ . **Tese(Doutoramento)** – Universidade de Campinas.

NATIONAL COUNCIL ON RADIATION PROTECTION AND MEASUREMENTS-A handbook of radioactivity measurements procedures. (1984) (NCRP REPORT N°58)

PRICE, W.J.(1958) - Nuclear Radiation Detection. McGraw-Hill.

RYTZ, A. (1985) Activity concentration of a solution of  $^{137}\text{Cs}$ : an international comparison. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research** 228, 506-511.

SAHAGIA, M.(1981) Some practical applications of tracing and extrapolation methods in absolute standardization. **Isotopenpraxis** 17, 211.

SAHAGIA, M., RAZDOLESCU, A., GRIGORESCU, A., LUCA A. AND IVAN C. (2000) The standardization of a  $^{204}\text{Tl}$  solution. **Int J.Appl.Radiat.Isot.** 52, 487.

SRIVASTAVA, P.K., (1977) Primary standardization of  $^{137}\text{Cs}$  for international intercomparison. **BARC** 949.

VENVERLOO, L.A.J.(1971) Practical measuring techniques for beta radiation . Macmillan.

WILLIAMS, A.(1964) An estimation of the inherent accuracy of the tracer technique for measurements of disintegration rate. **Int J.Appl.Radiat.Isot.**, 15, 709-712.

WILLYE, H.A., JOHNSON, E.P. AND LOWENTHAL, G.C. (1970) A procedure for stirring aliquots of radioactive solutions when making thin  $4\pi$  counting sources. **Int.J.Appl.Radiat.Isot.**,21,497.